UNIVERSITE BRETAGNE SCIENCES LOIRE POUR L'INGENIEUR

UNIVERSITÉ DE NANTES

THESE DE DOCTORAT DE

L'UNIVERSITE DE NANTES

ECOLE DOCTORALE N° 602
Sciences pour l'Ingénieur
Spécialité : *Génie des Procédés et Bioprocédés*

Par
Julian SEPULVEDA

Contribution au design d'un équipement innovant pour l'obtention de mousses à base de matrices alimentaires : caractérisation des phénomènes de rupture de bulles dans des microsystèmes à haut débit

Thèse présentée et soutenue à Nantes, le 05 Mars 2020
Rapporteurs avant soutenance :

Nathalie Le Sauze	Professeur des Universités, Université Paul Sabatier
Paul Menut	Professeur des Universités, AgroParisTech

Composition du Jury :

Président :	Geneviève Gesan-Guiziou	Directrice de Recherche, INRAE de Rennes
Examinateurs :	Alain Riaublanc	Chargé de Recherche, INRAE Nantes
	Claire Berton-Carabin	Maître de Conférences, Wageningen University
	Geneviève Gesan-Guiziou	Directrice de Recherche, INRAE de Rennes
	Arnaud Saint-Jalmes	Directeur de Recherche, CNRS
Dir. de thèse :	Agnès Montillet	Professeur des Universités, Université de Nantes
Co-dir. de thèse :	Dominique Della Valle	Maître de Conférences, ONIRIS

Remerciements

Ces trois années de thèse sont déjà passées et je me rends compte du privilège que j'ai eu d'avoir mené cette recherche à côté de mes encadrants Agnès MONTILLET, Dominique DELLA VALLE, Catherine LOISEL et Alain RIAUBLANC. Je voulais vous remercier énormément de m'avoir donné l'opportunité de vivre cette période si enrichissante et je tenais aussi à vous adresser une petite pensée à chacun : Agnès, merci pour ta gentillesse et ton écoute, mais aussi merci d'avoir su me motiver à approfondir mes réflexions. Dominique, merci pour ces expériences et connaissances que tu as partagées avec moi lors de nos échanges ; j'ai beaucoup aimé nos conversations sur plein de sujets différents et j'en garde de très jolis souvenirs. Catherine, merci beaucoup de m'avoir toujours poussé à voir les choses sous un autre angle avec cette gentillesse propre à toi. Ta façon douce d'aborder les choses m'a aidé maintes fois à reprendre confiance. Alain, merci pour la clarté et la simplicité avec lesquelles tu abordais les différents aspects de cette thèse. Tes commentaires perspicaces ont su me conduire à, comme tu l'as toujours dit, chercher l'histoire derrière mes résultats.

Je tiens également à remercier les membres du jury de ma thèse, Nathalie LE SAUZE, Paul MENUT, Geneviève GESAN-GUIZIOU et Claire BERTON-CARABIN d'avoir accepté effectuer ce travail de relecture et d'évaluation de mon manuscrit. Merci beaucoup pour vos remarques et pour la très agréable journée que j'ai passé avec vous le jour de ma soutenance. C'était un plaisir de vous avoir connu et un honneur de vous avoir eu dans mon jury. De même, je remercie Arnaud SAINT-JALMES et Gérard CUVELLIER, nos discussions lors des comités de suivi de thèse m'ont énormément aidé à faire évoluer cette étude.

J'aimerais aussi remercier Christophe COUEDEL (Oniris) pour son support dans la conception et la mise en place de l'installation pour cette étude, mais aussi pour ses conseils techniques qui m'ont aidé à surmonter les difficultés rencontrées pendant ma thèse. Je tenais aussi à remercier M. Jean-Luc HAUSER (IUT Saint Nazaire) pour la fabrication des dispositifs microfluidiques utilisés dans cette étude. Je remercie également Delphine QUVEAU, Luc GUIHARD, Patricia CORBIERE, Claire GUYON, Michelle MOREAU et Anthony OGE du département GPA d'Oniris et Elisabeth DAVID-BRIAND de l'INRAE Nantes pour toute leur aide, essentielle dans la réalisation de plusieurs expériences au cours de ma thèse.

Un grand remerciement aussi à toute l'équipe académique du département GPA avec qui j'ai eu aussi l'opportunité d'échanger pendant ces trois ans. En particulier, je tenais à remercier Sylvie CHEVALLIER pour son aide et sa disponibilité au sujet de l'analyse et le traitement des images obtenues pendant ma thèse. Je remercie aussi spécialement les professeurs Philippe COURCOUX et Michel SEMENOU du département MSC d'Oniris, vos explications statistiques ont aussi été précieuses pour mon étude.

Bien évidement, tout ceci n'aurait pas été possible sans le support de ma mère Patricia MAZUERA, mon père Aycardo SEPULVEDA et ma sœur Jimena SEPULVEDA qui malgré la distance m'ont toujours accompagné et motivé dans mes choix. Un grand remerciement aussi à ma copine Marie et à sa mère Elisabeth DAUVE qui ont eu la gentillesse de m'aider à plusieurs reprises dans les corrections de mes divers écrits en français. Je voulais aussi remercier Tomas MARTINEZ DE ANCA, quelqu'un qui est entré dans ma famille il y a quelques années et qui a contribué à mon développement personnel pendant ce temps. Finalement, je dois aussi beaucoup aux doctorants, masters et postdocs avec lesquels j'ai partagé à Oniris, mais aussi en dehors du travail. Merci infiniment pour ces incroyables moments de camaraderie qu'on a vécus ensemble.

Sommaire

Introduction 10
Chapitre 1 Bibliographie 16
1 Les mousses 17
1.1 Généralités 17
1.2 Structure des mousses 18
1.3 Mécanismes de déstabilisation 21
1.4 Stabilisation des mousses 22
1.4.1 Molécules avec activité de surface : le cas des protéines laitières 22
1.4.2 Gomme xanthane 25
1.5 Interaction protéines - polysaccharides 28
1.6 Propriétés des mousses 31
1.6.1 Distribution de la taille des bulles et fraction de vide 31
1.6.2 Rhéologie des mousses 34
2 Foisonnement et microfluidique 40
2.1 Procédés de production de mousses 40
2.2 Systèmes microfluidiques 42
2.3 Géométries de dispositifs et leurs applications 46
2.4 Ecoulements diphasiques 51
2.4.1 Régimes d'écoulement 51
2.4.2 Détermination de la fraction de vide dans le microcanal 55
2.5 Forces impliquées 55
2.6 Formation de gouttelettes et des bulles à l'intérieur des microcanaux 60
2.7 Déformation et fractionnement des interfaces 62
2.7.1 Premiers travaux 62
2.7.2 Le cas des microcanaux 65
2.7.3 Mécanismes de déformation des interfaces 66
2.7.4 Instabilités hydrodynamiques 70
2.8 Lois d'échelles pour les tailles de bulles dans les microcanaux 72
3 Conclusion 79
Chapitre 2 Matériels et méthodes 80
1 Matières premières 81
1.1 Protéines sériques 81
1.2 Gomme xanthane 81
1.3 Caséinates de Sodium 82
1.4 Glycerol 82
2 Préparation des solutions modèles 82
3 Caractérisation des solutions 83
3.1 Mesure de la masse volumique 83
3.2 Tension de surface 85

3.3 Rhéologie des solutions 86
3.3.1 Détermination du domaine linéaire viscoélastique 86
3.3.2 Détermination des modules mécaniques 87
3.3.3 Mesures en écoulement 88
3.3.4 Taux de cisaillement apparent et viscosité apparente de la solution dans le procédé 92
4 Description du banc expérimental 92
4.1 Installation 92
4.2 Dispositifs microfluidiques et cellule de visualisation en ligne 95
5 Élaboration de mousses (foisonnement) 97
5.1 Conditions opératoires 97
5.2 Étude hydrodynamique 98
5.3 Viscosité de la mousse dans le procédé 100
6 Caractérisation des bulles dans les microcanaux 101
6.1 Mise en œuvre des visualisations 101
6.2 Conditions d'acquisition à haute vitesse 102
6.3 Validation des dimensions mesurées des bulles capturées à haute vitesse d'écoulement 103
6.4 Traitement d'images 104
6.5 Granulométrie 105
6.6 Déformation et fractionnement des bulles 107
7 Caractérisation des mousses en sortie du procédé 108
7.1 Masse volumique et fraction de vide 108
7.2 Détermination de la carte d'écoulement 110
7.3 Acquisition d'images de la mousse en sortie du procédé 111
7.4 Traitement des images 113
7.5 Granulométrie 114
7.6 Rhéologie des mousses en sortie 115
7.6.1 Détermination du domaine linéaire viscoélastique 117
7.6.2 Détermination des modules mécaniques 118
7.6.3 Détermination de la viscosité 118
7.7 Stabilité des mousses 119
Chapitre 3 Résultats 120
1 Première partie : Étude prospective des microsystèmes vis-à-vis des propriétés de mousses obtenues 121
1.1 Introduction 121
1.2 Détermination des cartes d'écoulement 121
1.2.1 Effet de la concentration de xanthane 122
1.2.2 Effet de la longueur du tuyau de détente 123
1.2.3 Effet de la présence d'une singularité géométrique 124
1.2.4 Effet du diamètre hydraulique 125
1.3 Validation des mesures 128

1.4 Passage en revue des dispositifs microfluidiques 129
1.4.1 Sélection de la base liquide et la fraction de vide pour les mousses élaborées .. 130
1.4.2 Caractéristiques rhéologiques des mousses en sortie du procédé 131
1.5 Modification de la longueur de détente en sortie du dispositif 135
1.6 Conclusion 137
2 Deuxième partie : Foisonnement dans un dispositif microfluidique en croix 139
2.1 Introduction 139
2.2 Train des bulles 139
2.3 Profil de vitesse 141
2.4 Déformation et fractionnement dans le canal de mélange 144
2.5 Granulométrie dans le microcanal 147
2.6 Evolution des bulles et formation de la mousse en aval du microsystème 148
2.6.1 Visualisation en ligne du train de bulles 149
2.6.2 Visualisation de la mousse en sortie du procédé 152
2.7 Effet du débit sur l'écoulement diphasique dans le canal de mélange 153
2.7.1 Visualisations de l'écoulement 153
2.7.2 Granulométrie dans le canal de mélange (zone M1) et comparaison avec celle en sortie du procédé 155
2.8 Effet du diamètre hydraulique sur l'écoulement diphasique dans le canal de mélange 160
2.8.1 Visualisations du train de bulles 160
2.8.2 Granulométrie dans le canal de mélange (zone M1) 161
2.8.3 Fréquence de bullage 164
2.9 Effet de la concentration de xanthane sur l'écoulement diphasique dans le canal de mélange 166
2.9.1 Visualisations du train de bulles 166
2.9.2 Granulométrie dans le canal de mélange (zone M1) 166
2.9.3 Fréquence de bullage et vitesse des bulles 167
2.10 Conclusion 168
3 Troisième partie : Effet des singularités sur le train de bulles et le fractionnement 170
3.1 Introduction 170
3.2 Visualisation à l'intérieur des singularités géométriques 171
3.2.1 Le cas d'un canal en sinusoïde 171
3.2.2 Le cas du couple coude-élargissement 173
3.2.3 Le cas d'un élargissement 176
3.3 Déformation et fractionnement des interfaces dans un élargissement 177
3.3.1 Analyse courbe de Grace 181
3.3.2 Analyse de l'étirement des filaments 184
3.4 Train de bulles dans le canal de mélange pour CX-E-600 à fort débit 185
3.4.1 Granulométrie dans le canal de mélange M1 187
3.4.2 Modélisation de la taille des bulles dans le canal de mélange pour dispositifs CX600 et CX-E-600 187

3.4.3 Fréquence de bullage, vitesse des bulles et temps de séjour 190
3.5 Caractérisation de la mousse en sortie. 194
3.5.1 Effet dispositif 195
3.5.2 Effet du débit 197
3.5.3 Effet de la concentration en xanthane 198
3.6 Conclusion 200
4 Quatrième partie : Effet de la formulation sur le fractionnement dans un dispositif microfluidique en croix avec ou sans élargissement 201
4.1 Introduction 201
4.2 Rôle des protéines sériques dans la typologie du train de bulles à l'intérieur d'un dispositif microfluidique 202
4.3 Rôle de la gomme xanthane dans la typologie du train de bulles à l'intérieur du dispositif microfluidique 208
4.4 Effet des protéines et de la force ionique sur la typologie du train des bulles à l'intérieur du dispositif microfluidique. 214
4.5 Déformation et fractionnement des interfaces gaz-liquides 222
4.6 Caractéristiques complémentaires concernant l'effet de la formulation sur les bulles dans le canal de mélange 224
4.7 Conclusion 227
Conclusions et Perspectives 230
Annexes 240
Annexe A 241
Annexe B 246
Annexe C 251
Annexe D 258
Annexe E 261
Annexe F 265
Annexe G 267
Annexe H 268
Annexe I 269
Annexe J 270
Références 271
Relevé de la production scientifique 289

Nomenclature

Caractères Latins

a	Paramètre de transition du modèle Carreau-Yasuda
A	Section
B	Dimension maximale radiale d'une bulle
d	Diamètre à pression P
d_{atm}	Diamètre à pression atmosphérique
d_{eq}	Diamètre sphérique équivalent
d_{32}	Diamètre de Sauter
D_h	Diamètre hydraulique
f	Fréquence
g	Constante de gravité
G'	Module élastique
G''	Module visqueux
H	Hauteur de la mousse
K_s	Constante de Metzner et Otto
L	Dimension maximale axiale d'une bulle
m	Masse
M_{mol}	Masse molaire
P_{abs}	Pression absolue
P_{rel}	Pression relative
P_{inj}	Pression d'injection
P_{atm}	Pression atmosphérique
Q_G	Débit du gaz
Q_L	Débit du liquide
R	Constante des gaz parfaits
R_C	Rayon de courbure
U_G	Vitesse superficielle du gaz
U_L	Vitesse superficielle du liquide
V_{bulle}	Vitesse de bulle
V	Volume
V_{eq}	Volume équivalent sphérique
V_{obj}	Volume de l'objet utilisé pour détermination de la masse volumique des solutions
x	Paramètre lié à la pente de la région pseudoplastique dans le modèle de Carreau-Yasuda
T	Température
t	Temps
$W_{liquide\ deplacé}$	Poids du liquide déplacé

Dispositifs

CX600	Canaux en forme de croix avec un diamètre hydraulique de 600 µm
CX-E-600	Canaux en forme de croix avec un diamètre hydraulique de 600 µm et un élargissement en sortie de diamètre hydraulique de 1000 µm
CX-C-600	Canaux en forme de croix avec un diamètre hydraulique de 600 µm et deux coudes en sortie de diamètre hydraulique de 1000 µm

$CX\text{-}S\text{-}600$	Canaux en forme de croix avec un diamètre hydraulique de 600 µm et incluant un canal de sorite de forme sinusoïdale de diamètre hydraulique de 600 µm
$CX500$	Canaux en forme de croix avec un diamètre hydraulique de 500 µm

Symboles grecques

α	Fraction de vide
$\dot{\gamma}_{app}$	Taux de cisaillement apparent
λ	Temps de relaxation
δ	Rapport des viscosités des phases dispersée / continue
μ_G	Viscosité du gaz
μ_L	Viscosité du liquide
μ_M	Viscosité de la mousse
μ_1	Viscosité du1^{er} plateau newtonien
μ_2	Viscosité du 2ème plateau newtonien
ρ_G	Masse volumique du gaz
ρ_L	Masse volumique du liquide
ρ_M	Masse volumique de la mousse
σ	Tension de surface
Γ	Rapport d'aspect d'une bulle
ΔP	Chute de pression
ϕ_{max}	Fraction maximale de compactage
τ	Contrainte de cisaillement

Nombres adimensionnelles

Ca	Nombre capillaire
Ca_{bubble}	Nombre capillaire de la bulle
Re	Nombre de Reynolds
Oh	Nombre d'Ohnesorge
We	Nombre de Weber

Abréviations

XG	Gomme xanthane
WPI	Isolats de protéines sériques
CAS	Caséinates de sodium
CX	Croix
$CX\text{-}E$	Croix-Élargissement
$CX\text{-}C$	Croix-Coudes
$CX\text{-}S$	Croix-Sinusoïde
CVL	Cellule de visualisation en ligne
CVS	Cellule de visualisation en sortie
LVD	Région linéaire viscoélastique
ERM	Écart relatif moyen

Indices

0	Initial
m	Massique
v	Volumique
M	Mousse
G	Gaz
L	Liquide
exp	Expérimental
the	Théorique
app	Apparent
atm	Atmosphérique
abs	Absolu
f	Filament
c	Cristallisoir
$c+e$	Cristallisoir + échantillon

Indices zones du procédé

$M1$	Zone de mélange 1 – formation de bulles intersection Liquide-Gaz
$M2$	Zone de mélange 2 – Fin du microcanal de formation des bulles
$E1$	Début d'élargissement
$E2$	Fin d'élargissement
$C1$	Premier coude
$C2$	Deuxième coude
$S1$	Premier demi-cercle
$S2$	Deuxième demi-cercle
S	Sortie

Introduction

Les mousses sont des produits dans lesquels des bulles de gaz sont dispersées à l'intérieur d'une matrice liquide ou solide (phase continue). La création de ces bulles, connue comme opération de foisonnement, entraîne une expansion du volume (Vial & Djelveh, 2013). Cela confère aux produits finis des caractéristiques attendues telles que légèreté, consistance, isolation mécanique, thermique ou phonique (Cantat *et al.*, 2013 ; Salager & Choplin, 2008). Grâce à ces caractéristiques particulières, elles ont trouvé des applications dans presque tous les aspects de notre vie. C'est ainsi qu'on peut les retrouver dans les produits alimentaires, cosmétiques, d'assainissement, de lutte anti-incendie et bien d'autres encore (Cantat *et al.*, 2013 ; Stevenson, 2012).

Dans le domaine alimentaire, il existe une gamme très ample de produits foisonnés tels que les mousses de foie de volailles, de légumes, au chocolat, de fruit, etc… (Vial & Djelveh, 2013), ou bien d'autres produits dit aérés tels que le pain ou la crème glacée (Campbell & Mougeot, 1999 ; Vial & Djelveh, 2013). L'intérêt de ce type de structure aérée dans les applications alimentaires réside concrètement dans le fait qu'il est possible d'obtenir des produits allégés en calories, tartinables et homogènes avec des qualités sensorielles attrayantes (Vial & Djelveh, 2013). Les mousses alimentaires sont souvent des mousses dites aqueuses ayant des fractions volumiques de gaz (ou fraction de vide) comprises entre 0,50 et 0,75 (Borwankar & Case, 1997). Leur stabilité va de quelques secondes jusqu'à quelques jours (Campbell & Mougeot, 1999). La fraction de vide ainsi que la taille des bulles, propriétés structurelles qui déterminent les caractéristiques texturales, dépendent en grande partie de la conception et du fonctionnement de l'équipement utilisé pour l'opération de foisonnement (Campbell, 2003 ; Drenckhan & Saint-Jalmes, 2015 ; Francis, 1999, Müller-Fischer & Windhab 2005).

Différentes technologies coexistent pour les opérations de foisonnement. Le choix reste encore semi-empirique et donc basé sur des connaissances subjectives des produits et de l'équipement. Dans les technologies traditionnelles, on peut retrouver des procédés discontinus comme le battage et l'agitation. Ils sont généralement couteux en énergie et il n'existe pas de véritable contrôle du taux d'incorporation d'air et donc de la fraction de vide des mousses (Indrawati *et al.*, 2013 ; Laporte, 2014). Une autre technologie traditionnelle concerne l'utilisation des systèmes de type rotor-stator. Ce sont des équipements amplement utilisés dans les milieux industriels car ils permettent un fonctionnement en continu.

Cependant, ils présentent également des désavantages, principalement une surchauffe du produit sous fort cisaillement (Atiemo-Obeng & Calabrese, 2003 ; Laporte *et al.*, 2016 ; Müller-Fischer & Windhab, 2005). Des technologies plus modernes ont commencé graduellement à trouver leur place dans les opérations de foisonnement. Tel est le cas des mélangeurs statiques qui créent la mousse de façon passive par le passage de la solution et du gaz à travers plusieurs obstacles. Compte tenu de ce mode de fonctionnement passif, ces dispositifs sont énergétiquement intéressants. Ils présentent cependant l'inconvénient d'un nettoyage difficile et donc un risque de contamination élevé (Vial & Djelveh, 2013). Plus récemment, des dispositifs micro et millifluidiques ont commencé à être utilisés dans des opérations de foisonnement et d'émulsification en raison des multiples avantages que ces systèmes permettent, notamment des coûts de fabrication et d'opération moins élevés, mais aussi des mélange et transferts thermique et massique intensifiés (Afzal & Kim, 2014 ; Bandara *et al.*, 2015 ; Kandlikar *et al.*, 2014 ; Laporte *et al.*, 2016)

Cette technologie microfluidique est en fait présente dans une grande variété de disciplines en vue d'étudier des phénomènes physico-chimiques très divers tels que la mesure instantanée de la tension de surface (Muijlwijk *et al.*, 2016b), des mesures rhéologiques à hauts taux de cisaillements (Nghe *et al.*, 2011), les impressions 3D (Sochol *et al.*, 2018), la turbulence élastique (Copeland *et al.*, 2017 ; Pan, 2013), l'étude des écoulements élongationnels (Hudson *et al.*, 2004), l'analyse des molécules ADN (Lin & Basuray, 2011) et l'étude des réactions chimiques et enzymatiques (Duraiswamy & Khan, 2009 ; Joensson *et al.*, 2009 ; Lizarralde Iragorri *et al.*, 2018). En outre, pour l'étude des systèmes dispersés comme les mousses et les émulsions, les dispositifs microfluidiques se sont avérés intéressants car ils ont permis d'obtenir des produits avec une monodispersité améliorée (Garstecki *et al.*, 2004), mais aussi car ils permettent un accès visuel aux phénomènes de l'écoulement (Marmotant Raven 2009 ; Fu & Ma, 2015 ; Xiong & Chung, 2009).

L'étude de l'écoulement multiphasique liquide-liquide ou gaz-liquide à l'intérieur des dispositifs microfluidiques se fait dans la plupart des cas dans des conditions très contrôlées, notamment en utilisant des solutions newtoniennes (Mansour *et al.*, 2015) et des faibles débits souvent compris entre 0 et 1 $ml.min^{-1}$ (Cubaud & Ho, 2004 ; Fu & Ma, 2015 ; Garstecki et al 2004 ; Haase, 2016). Cependant, ces conditions ne représentent pas une situation réelle dans des applications industrielles agroalimentaires (Fu & Ma 2015). Gaillard (2016) a abordé la question de l'utilisation des canaux ayant de dimensions légèrement au-

dessus de 1 mm (millifluidique) pour une application de foisonnement en utilisant de forts débits d'injection de l'ordre de 0 à 300 $ml.min^{-1}$. Les solutions utilisées dans cette étude étaient cependant encore des fluides newtoniens comprenant des molécules tensioactives de sodium dodecyl sulphate (SDS).

A notre connaissance, seuls les travaux menés par Laporte (2014) proposent une production de mousses avec des dispositifs microfluidiques en appliquant des conditions plus proches de celles pratiquées dans le secteur agroalimentaire, notamment en termes de débits et de composition de la base liquide utilisée (non-newtonienne). Les travaux de cet auteur, menés au sein du laboratoire GEPEA (France), ont abordé la production des mousses à des débits allant jusqu'à 400 $ml.min^{-1}$. A ces débits, des taux de cisaillement de l'ordre de 10^5 s^{-1} ont été identifiés, comparables à ceux rencontrés dans un rotor-stator (Atiemo-Obeng & Calabrese, 2003). L'étude a aussi abordé l'utilisation des bases liquides non-newtoniennes préparées à partir des molécules biosourcées. Les molécules utilisées, des isolats de protéines sériques (WPI) et de la gomme xanthane (XG), sont typiquement rencontrées en tant qu'ingrédients et additifs dans des produits alimentaires.

Au cours des travaux menés par Laporte (2014) des évolutions de la taille des bulles, dans le sens d'une diminution de la taille moyenne, ont été constatées entre le point de génération des bulles au sein des microcanaux et la sortie de la mousse du procédé. Ce constat soulève des questionnements au sujet de l'influence des particularités géométriques rencontrées par le train de bulles le long du procédé et tout particulièrement de leur impact sur les phénomènes de fractionnement et de coalescence des bulles. Le rapport des forces entre les phénomènes de coalescence et de fractionnement détermine finalement la taille des bulles et donc les caractéristiques texturales des mousses produites.

Cette thèse reprend donc la question du fractionnement des interfaces dans les microcanaux soulevée par les travaux de Laporte (2014). L'objectif général est donc de mettre en évidence les possibles mécanismes de fractionnement des bulles au sein de dispositifs microfluidiques mis en œuvre à haut débit. Ce travail comprendra donc plusieurs étapes et démarches, notamment l'établissement des cartographies d'écoulement pour connaitre les plages de foisonnement convenables, la visualisation et la caractérisation de la typologie de l'écoulement et finalement, l'identification et la caractérisation des mécanismes de fractionnement. L'objectif ultime de ce travail est de dresser des préconisations en vue de

la conception d'un microsystème utilisant efficacement les différents leviers de fractionnement.

Afin de nous rapprocher des conditions relevant ou proches des conditions en application alimentaire, nous proposons une formulation adaptée à la production de mousses stables et compatibles avec une utilisation alimentaire. A cet égard, nous utiliserons en particulier des composés biosourcés comme les isolats de protéines sériques (WPI) en tant qu'agent moussant favorisant la diminution de la tension interfaciale (Vial & Djelveh, 2013). Les protéines du lactosérum ont en effet des bonnes activités foisonnantes et de stabilité des mousses (Loisel & Lefebvre, 2013). Également, nos solutions contiendront de la gomme xanthane, hydrocolloïde amplement utilisé en tant qu'agent épaississant dans des procédés industriels alimentaires mais aussi dans des applications cosmétiques, pharmaceutiques et pétrochimiques (Brunchi *et al.*, 2016 ; García-Ochoa *et al.*, 2000 ; Rosalam & England, 2006). Le xanthane permet en effet d'améliorer la stabilité des mousses en immobilisant les bulles par augmentation de la viscosité de la base liquide (Cantat *et al.*, 2013 ; Stevenson, 2012). D'autres formulations seront aussi évaluées afin de comprendre l'effet d'un changement de propriétés physico-chimiques (comportement rhéologique et configuration des protéines) de la phase continue.

De manière similaire, des débits élevés compris dans la gamme 50 à 350 $ml.min^{-1}$ (3 – 20 $L.h^{-1}$) seront employés pour l'opération de foisonnement. Ces débits sont nettement supérieurs à ceux traditionnellement mis en œuvre en microfluidique et plus proches des conditions des opérations industrielles de foisonnement. A titre d'exemple, d'après Vial et Djelveh (2013), l'un des systèmes rotors-stators couramment utilisés dans les industries a des capacités estimées de traitement compris entre 5 et 6400 $L.h^{-1}$, tandis que celle des mélangeurs statiques est d'environ 10 à 1000 $L.h^{-1}$. Nos conditions, comparativement aux débits industriels mentionnées, se situent dans les valeurs limites basses, mais restent dans la plage d'utilisation industrielle. Par conséquent, notre étude présente des efforts concrets entrepris pour s'approcher des conditions réelles de foisonnement en utilisant des dispositifs microfluidiques. Pour cette étude, plusieurs dispositifs ayant des géométries différentes seront évalués afin de cerner aussi leur efficacité sur le fractionnement.

Cette thèse comporte quatre chapitres. Dans le premier, on abordera l'étude de l'état de l'art sur les caractéristiques des mousses, les molécules biosourcées sélectionnées pour nos

solutions modèles et les procédés traditionnels de foisonnement. Les aspects essentiels sur l'écoulement multiphasique, les dispositifs microfluidiques et la déformation et fractionnement des interfaces seront passés en revue. Les matériels et méthodes mis en œuvre seront exposés dans un second chapitre. Celui-ci présentera les différentes méthodologies utilisées pour caractériser les propriétés des matières premières ainsi que celles des solutions moussantes. Ce chapitre détaillera également le banc expérimental et les dispositifs microfluidiques conçus tout spécialement pour cette étude.

Par la suite, le troisième chapitre sera dédié à l'analyse de l'ensemble des résultats obtenus. Ce chapitre est subdivisé en 4 parties. La 1ère partie se centrera sur la détermination des cartes d'écoulement et l'optimisation de quelques paramètres expérimentaux en vue de la suite des essais. La 2ème partie s'intéressera à une géométrie de base, la croix. Elle comprendra l'étude de la typologie des trains de bulles formés dans ce dispositif de référence, puis une discussion sur les phénomènes de déformation des interfaces gaz-liquide visualisés et une analyse de la granulométrie dans plusieurs parties du procédé. La 3ème partie portera d'abord sur la typologie de l'écoulement à l'intérieur des singularités géométriques ajoutées au dispositif de référence. Dans un deuxième temps, cette partie va exposer une étude plus approfondie de l'effet d'un élargissement (une des singularités incorporées au dispositif de référence) sur l'opération de foisonnement et également sur les mousses en sortie. La 4ème partie se focalisera sur l'écoulement siégeant lors du passage de diverses formulations circulant dans les mêmes conditions de débits à l'intérieur du dispositif de référence (géométrie de base en croix) et de l'élargissement.

Finalement, la conclusion viendra récapituler et synthétiser les principaux résultats. On fera un retour sur les mécanismes de fractionnement des interfaces identifiés dans les dispositifs microfluidiques, mais aussi sur le rôle des singularités géométriques sur le produit en sortie. On avancera également quelques conclusions à propos de l'effet de la formulation sur l'écoulement diphasique à l'intérieur des microcanaux dans nos conditions de hauts débits. Nous formulerons aussi des préconisations en termes de design et dimensionnement de microsystèmes innovants dédiés au foisonnement. La conclusion proposera enfin quelques perspectives visant à surmonter certaines contraintes techniques rencontrées au cours de ce travail, mais aussi à explorer de nouvelles pistes pour les futures recherches d'application des technologies microfluidiques à des procédés industriels.

Chapitre 1

Bibliographie

1 Les mousses

1.1 Généralités

Les mousses sont des systèmes dans lesquels une phase gazeuse est dispersée sous forme de bulles dans une matrice à l'origine liquide ; le produit final pouvant présenter un aspect variable. Leur structure particulière apporte une sensation de légèreté et d'onctuosité qui sont deux facteurs de préférence chez les consommateurs (Coussot, 2014 ; Mezzenga *et al.*, 2005). Grace à leurs caractéristiques texturales, elles sont utilisées dans plusieurs applications tels que les cosmétiques, la lutte contre les incendies et les industries agroalimentaires. Dans le cas de mousses alimentaires, il existe un grand éventail de produits développés (Damodaran *et al.*, 2008). C'est ainsi que nous mangeons ou buvons presque quotidiennement des produits foisonnés comme le cappuccino, la bière, la crème glacée, la crème fouettée et la mousse au chocolat, pour ce qui est des mousses liquides. Le pain, les chamallows, les tablettes de chocolats microaérées et les gaufres constituent des exemples de mousses dites solides (Campbell & Mougeot, 1999 ; Martin, 2012 ; Mezzenga *et al.*, 2005 ; Schramm, 2014). La figure 1 présente quelques exemples de mousses alimentaires consommées quotidiennement.



Figure 1. Quelques exemples de mousses alimentaires **a)** bière **b)** cappuccino **c)** crème glacée **d)** pain **e)** chocolat microaéré.[1]

[1] *Photos obtenues de https://pixabay.com/ and https://fr.depositphotos.com/*

En général pour qu'un système gaz-liquide soit considéré comme une mousse, il faut que la fraction volumique de gaz ou fraction de vide soit comprise dans la gamme de 0,5 à 0,9 et que les bulles aient des tailles d'environ 0,1 à 3 mm (Walstra, 1989). Dans le cas des mousses liquides alimentaires, elles ont généralement des fractions de vides allant de 0,5 à 0,75 (Borwankar & Case, 1997). Les systèmes ayant des fractions de vides inférieures à 0,5 sont souvent classifiés sous la dénomination « liquides pétillants » ou *bubbly liquids* en anglais (Cantat *et al.*, 2013).

1.2 Structure des mousses

Selon Fameau *et al.* (2013) définir la structure de la mousse sera toujours une tâche complexe du fait des différents niveaux dont elle est composée (figure 2). A l'échelle macroscopique, la mousse est étudiée dans son ensemble et sa stabilité est traditionnellement définie comme étant la durée de vie du volume de la mousse (Mezzenga *et al.*, 2005 ; Wierenga *et al.*, 2009). Cependant, à l'échelle des bulles, la stabilité est définie plutôt en fonction du grossissement de la taille des bulles (Mezzenga *et al.*, 2005). Pour l'étude des mousses à l'échelle des bulles, les techniques photographiques sont souvent utilisées et en conséquence, les bulles sont étudiées principalement en 2D. Un troisième niveau correspond à celui des films formés entre les bulles. L'amincissement et la rupture de ces films sont un phénomène largement étudié afin d'expliquer la coalescence des bulles (Colin, 2012). Enfin, c'est à l'échelle moléculaire qu'intervient l'étude des interfaces et les phénomènes qui y ont lieu telles que les cinétiques d'adsorption d'agents de surface et la rhéologie des interfaces en cisaillement et en dilatation (Couarraze *et al.*, 2014 ; Wierenga *et al.*, 2009).

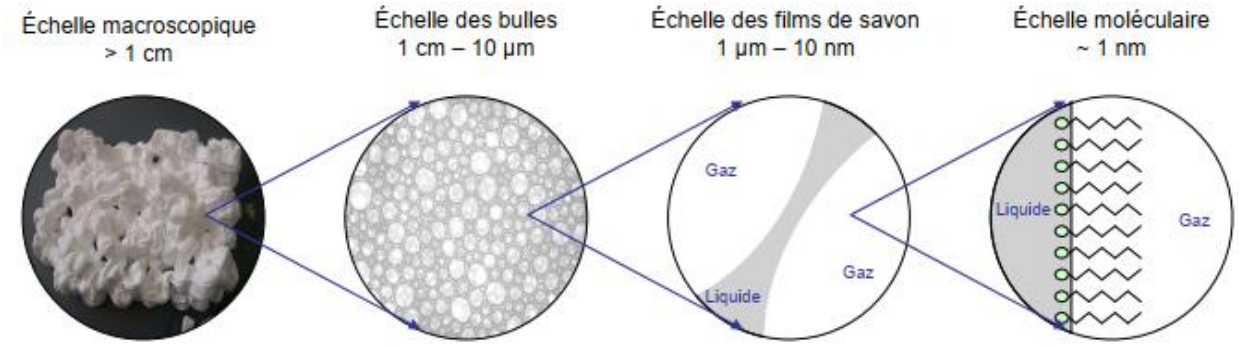


Figure 2. Echelles caractéristiques dans une mousse (Costa, 2012).

À l'échelle des bulles, une classification des mousses est habituellement faite par rapport à la fraction de vide. Il existe donc des mousses sèches ayant des fractions de vide

très élevées (> 0,90) et des mousses liquides avec des fractions de vide moins importantes, entre 0,5 et 0,80. Ces différences de fraction de vide entraînent aussi un changement de la structure et en conséquence des propriétés texturales des mousses. Les bulles de mousses liquides sont sphériques, tandis que celles des mousses sèches ont des configurations polyédriques (figure 3). Lorsque les bulles présentes dans les mousses liquides atteignent la fraction de compactage maximale, soit par incorporation d'un volume de gaz supplémentaire ou soit par diminution de la pression, elles perdent leur conformation sphérique et deviennent polyédriques (Canselier& Poux, 2004 ; Cohen-Addad & Höhler, 2014 ; Foegeding *et al.*, 2006 ; Luck *et al.*, 2002).

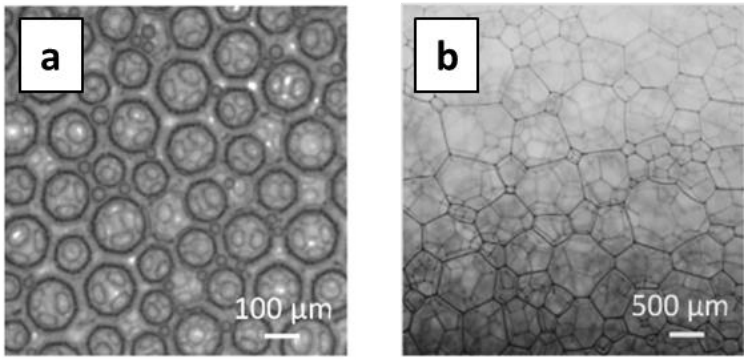


Figure 3. Structure des mousses en fonction de la fraction de vide **a)** mousse liquide **b)** mousse sèche (Cohen-Addad & Höhler, 2014).

La structure des mousses sèches repose sur un agencement de films voisins obéissant à des règles très précises connues sous le nom de lois de Plateau (Coussot, 2014). Ce réseau de structures polyédriques a depuis longtemps suscité l'intérêt scientifique étant donné sa ressemblance avec des configurations biologiques comme les alvéoles des nids d'abeilles et les configurations des tissus cellulaires (Cantat *et al.*, 2013). En général, il existe plusieurs applications autant pour les mousses liquides que pour les mousses sèches. La figure 4 montre des applications traditionnelles et d'autres plus récentes pour ces deux configurations structurales.

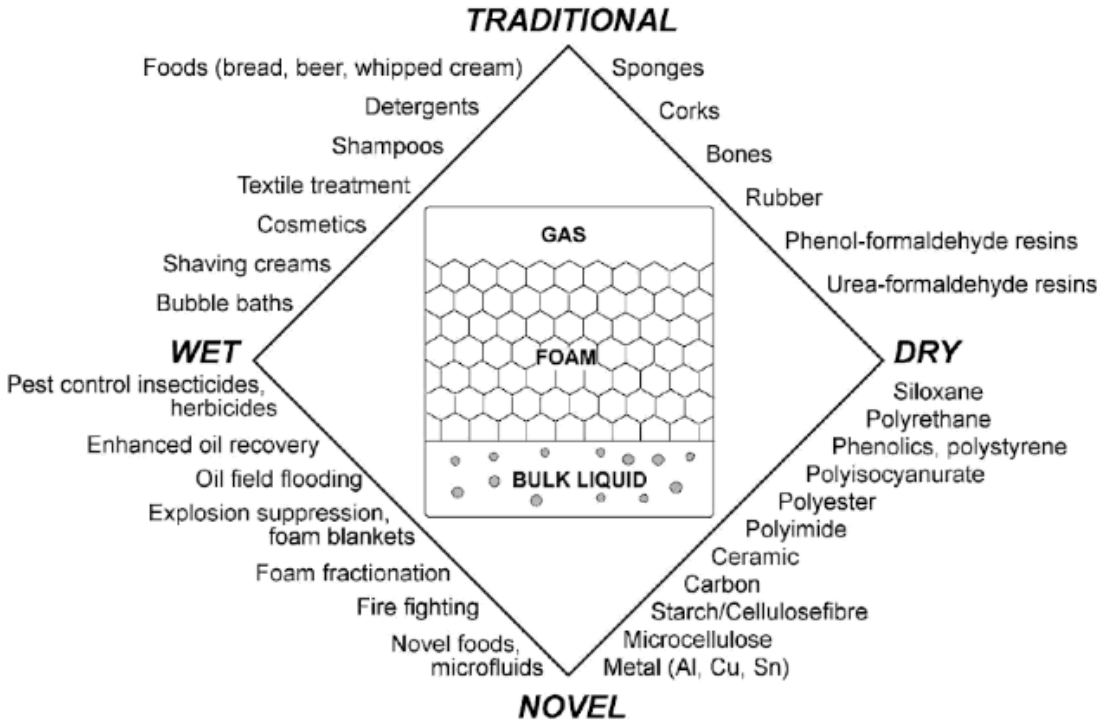


Figure 4. Quelques applications traditionnelles et plus récentes des mousses liquides et mousses sèches (Pugh, 2016).

Au niveau structural, le concept de pression de Laplace est fondamental pour la description du comportement des bulles. L'équation 1 correspond à l'équation générale de Young-Laplace tandis que l'équation 2 correspond au cas des bulles et gouttes sphériques (Schramm, 2014). P_A et P_B sont les pressions à l'intérieur et l'extérieur des bulles respectivement et R_1 et R_2 correspondent à deux rayons de courbure caractéristiques. La pression de Laplace correspond à la force interfaciale qui permet aux bulles d'acquérir et de garder une configuration sphérique énergétiquement plus stable (Fameau *et al.*, 2013). Une des conséquences les plus importantes de cette équation est le fait qu'une déformation d'une bulle entraîne une augmentation de la pression de Laplace. La bulle nécessitera donc l'application d'une contrainte externe du même ordre que la pression de Laplace pour se fractionner en bulles plus petites (Walstra, 1989). La pression de Laplace est inversement proportionnelle au rayon de la bulle. En conséquence, plus les bulles sont petites, plus la pression à l'intérieur est élevée et un apport d'énergie plus important sera nécessaire pour le fractionnement. (Mezzenga *et al.*, 2005). Ainsi d'après Walstra (1989) il est très difficile de créer des bulles dont le diamètre est inférieur à quelques dixièmes de mm de diamètre.

$$\Delta p = P_A - P_B = \sigma\left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}\right) \quad (1)$$

$$\Delta p = P_A - P_B = \frac{2\sigma}{R} \quad (2)$$

1.3 Mécanismes de déstabilisation

Les mousses sont des systèmes métastables et en conséquence leur structure évolue dans le temps, ce qui va provoquer une déstabilisation accélérée si aucune mesure particulière n'est prise (Coussot, 2014). Cette déstabilisation continue jusqu'à ce que les deux phases soient complètement séparées.

Il existe plusieurs mécanismes de déstabilisation de la structure des mousses ; lesquels ont été amplement décrits dans la littérature. Ceux-ci incluent la coalescence, le disproportionnément ou murissement d'Ostwald et le drainage (figure 5). Le drainage est provoqué par l'effet de la gravité et la grande différence de masse volumique entre le gaz et le fluide liquide (Mezzenga *et al.*, 2005). Une polydispersité importante des tailles des bulles entraîne quant à elle une déstabilisation de la structure par le phénomène de murissement d'Ostwald. En effet, les petites bulles ayant des pressions de Laplace plus élevées, le gaz qu'elles contiennent va diffuser progressivement vers les grosses bulles (Coussot, 2014) Enfin, la coalescence est caractérisée par la fusion de deux bulles se rencontrant afin de minimiser leur énergie de surface (Coussot 2014).

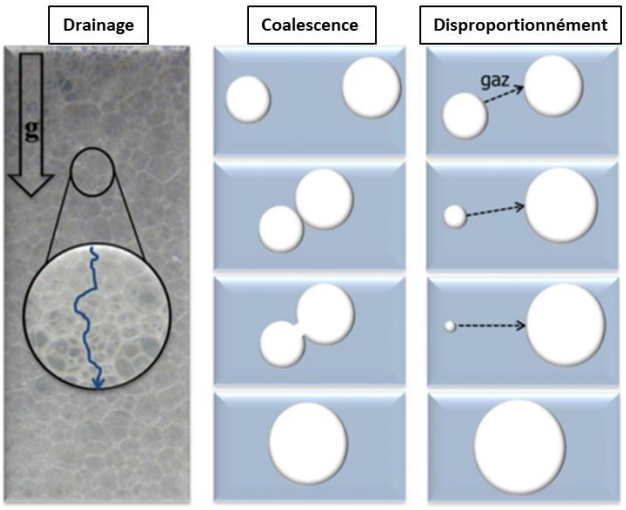


Figure 5. Mécanismes de déstabilisation de la structure des mousses (Fameau & Salonen, 2014).

1.4 Stabilisation des mousses

Plusieurs stratégies peuvent être mises en œuvre pour limiter les différents phénomènes de déstabilisation décrits précédemment. La stratégie la plus amplement utilisée pour stabiliser des interfaces concerne l'addition d'agents de surface (Martínez-Padilla *et al.*, 2015). Ce sont des molécules à caractère amphiphile, présentant un groupe hydrophobe et un groupe hydrophile qui s'adsorbent aux interfaces avec lesquels ils présentent une affinité. Ils permettent d'abaisser la tension interfaciale. La présence de ces molécules à l'interface représente une barrière stérique ou électrostatique contre la coalescence des gouttes ou des bulles (Coussot, 2014). Une autre façon de stabiliser les mousses, surtout pour limiter le drainage, mais aussi pour piéger les bulles évitant leur coalescence, consiste à moduler la viscosité de la phase continue. Ceci est fait habituellement en ajoutant des hydrocolloïdes afin d'épaissir ou gélifier la phase continue (Martínez-Padilla *et al.*, 2015 ; Mezzenga *et al.*, 2005 ; Pugh, 2016).

D'autres stratégies un peu moins étudiées peuvent contribuer aussi à la durée de vie de la structure d'une mousse. La production de mousses ayant des distributions de tailles plutôt resserrées permet, par exemple, de réduire la déstabilisation par disproportionnement. En effet, la production des bulles monodisperses limite l'apparition de gradients de pressions présents quand il y a des grosses et des petites bulles. D'où l'intérêt de la recherche de nouveaux procédés permettant d'obtenir des mousses avec des tailles de bulles plus monodisperses. De même, la diminution de solubilité de la phase gazeuse peut limiter le disproportionnement (Mezzenga *et al.*, 2005 ; Pugh 2016 ; Weaire & Hutzler 1999). Finalement, le changement d'état de la phase continue peut représenter une autre approche pour augmenter la stabilité d'une mousse comme dans le cas des crèmes glacées (Mezzenga *et al.*, 2005). Il ne sera pas évoqué ici l'utilisation de nanoparticules car ce mode de stabilisation ne répond pas aux objectifs fixés dans ce travail.

1.4.1 Molécules avec activité de surface : le cas des protéines laitières

Bien qu'il existe plusieurs types d'agents de surface, les protéines stabilisent la plupart des aliments et des structures biologiques (Mezzenga *et al.*,2005). Les protéines sont donc utilisées en tant qu'agents tensioactifs dans les procédés de foisonnement alimentaire pour stabiliser la structure des mousses élaborées (Dickinson, 1999 ; Foegeding et al., 2006 ; Martínez-Padilla *et al.*, 2015). L'effet le plus évident de l'adsorption de protéines est la

diminution de la tension interfaciale (Foegeding *et al.*, 2006). La tension interfaciale de l'eau à température ambiante est ≈ 72 $mN.m^{-1}$. En revanche, celle des solutions à base des protéines est généralement de l'ordre de 45 $mN.m^{-1}$ (Prins *et al.*, 1998)

Les protéines existent naturellement sous une configuration globulaire ou avec une structure plus «ouverte» (Mezzenga *et al.*, 2005). Les protéines ont des régions hydrophobes et hydrophiles et donc leurs configurations peuvent changer lors de l'adsorption à l'interface (Dickinson, 1999 ; Mezzenga *et al.*, 2005). En raison de l'irréversibilité de l'adsorption, les protéines peuvent former des multicouches, ce qui renforce la stabilité des bulles et gouttes par le biais de la viscoélasticité interfaciale (Cascao Pereira *et al.*, 2003 ; Wilde, 2000).

Les protéines de lait sont des ingrédients avec une haute valeur nutritionnelle et une large gamme de propriétés fonctionnelles ce qui en fait des ingrédients très recherchés dans le domaine alimentaire (Augustin *et al.*, 2011) Elles sont divisées normalement en deux catégories : les protéines du lactosérum ou protéines sériques (~20% en masse) et les caséines (~80% en masse) (Swaisgood, 2008). Les protéines sériques ont naturellement une configuration globulaire (très structurée) tandis que les caséines sont généralement des protéines avec une géométrie hélicoïdale ou de pelote statistique (Mezzenga *et al.*, 2005).

Leurs différences conformationnelles et de composition sont donc à l'origine de comportements et propriétés fonctionnels bien distincts. La figure 6 décrit de façon très schématique l'adsorption à l'interface de tensioactifs de bas poids moléculaire ainsi que des protéines globulaires ou de structure ouverte. Les protéines globulaires peuvent aussi changer leur conformation lors de leur adsorption et adopter des configurations plus ouvertes en fonction des interactions établies. Différentes propriétés des interfaces sont créées suite à ces arrangements particulaires sur l'interface qui conduiront finalement à des mousses ayant des propriétés fonctionnelles distinctes.

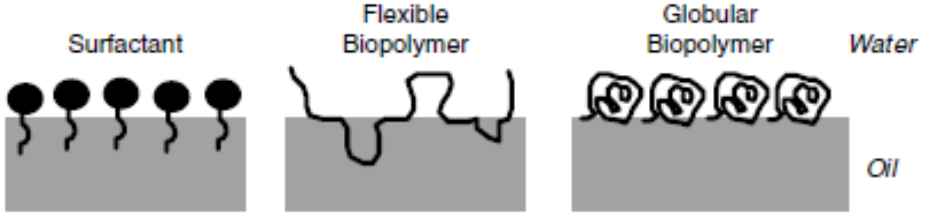


Figure 6. Schématisation de quelques configurations possibles pour l'adsorption des molécules à une interface. (McClements 2005).

Ces protéines sont habituellement commercialisées sous forme de poudres, contenant soit des concentrés de protéines (25–80% protéine) soit des isolats de protéines (>90% protéine) (Damodaran & Paraf, 1997 ; Huffman & Barros Ferreira, 2011 ; McClements 2005). Il est important de préciser qu'il est possible techniquement d'obtenir des fractions de protéines purifiées. Cependant, ces fractions purifiées ne sont pas ou guère utilisées dans les milieux industriels en raison de leurs coûts élevés. Néanmoins, elles sont utilisées en recherche pour élucider les propriétés fonctionnelles des protéines (McClements, 2005)

Protéines sériques

Les protéines sériques sont un mélange de différentes protéines individuelles : β-lactoglobuline (~55%), α-lactalbumine (~24%), albumine sérique (~5%) et immunoglobulines (~15%) (Swaisgood, 2008). En général, c'est la β-lactoglobuline qui domine les propriétés fonctionnelles des protéines sériques (McClements, 2005). Ce sont des protéines globulaires (Huffman *et al.*, 2011). Les protéines globulaires ont tendance à être assez solubles dans l'eau aux températures ambiantes, à condition que le pH soit suffisamment éloigné de leur point isoélectrique (McClements, 2005). Ayant des structures tertiaires et quaternaires bien définies, elles sont sensibles à la chaleur (O'Mahony & Fox, 2013 ; Patel & Patel, 2015).

La solubilité des protéines sériques est affectée par le pH, la concentration de protéine et la présence de sels et d'autres ingrédients comme les saccharides (Huffman & Barros Ferreira, 2011). En particulier, la présence de sels favorise les interactions attractives en masquant les charges dans certaines régions (Donato & Guyomarc'h, 2009). Les cations de sodium et calcium en particulier jouent un rôle dans l'agrégation par induction thermique des protéines sériques dans des systèmes modèles (Foegeding *et al.*, 2002). Cette altération des charges peut aussi être défavorable pour des applications de foisonnement ou émulsification en raison d'une diminution des forces répulsives électrostatiques et stériques (Dickinson, 2017).

Les protéines sériques apportent généralement une excellente valeur nutritionnelle en raison de leur composition en lysine, tryptophane et acides aminés soufrés (Cheftel & Lorient, 1982 ; Huffman & Barros Ferreira, 2011). Concernant leurs propriétés fonctionnelles, les protéines sériques ont été décrites comme ayant de très bonnes propriétés de foisonnement et de stabilisation d'interfaces (Narchi *et al.*, 2009 ; Nicorescu *et al.*, 2009).

Cette stabilité supérieure conférée aux bulles et gouttes par rapport aux caséines pourrait être liée à une couche multimoléculaire qu'elles semblent capables de développer dans l'interface (Cheftel & Lorient, 1982). Les isolats de protéines sériques (WPI) sont la source de protéines sériques la plus appropriée pour une application en foisonnement en raison de leur teneur réduite en composants lipidiques. La présence de matière grasse est en effet néfaste en raison de la perturbation hydrophobe de la tension superficielle du film (Huffman & Barros Ferreira, 2011)

Caséines et caséinates

Comme dans le cas des protéines sériques, les caséines sont un complexe de plusieurs protéines : $\alpha_{s,1}$ and $\alpha_{s,2}$-caseins, β-caséines and κ-caséines et γ-caséine (Augustin *et al.*, 2011 ; Möbius & Miller, 1998). Contrairement aux protéines sériques, les caséines sont dépourvues de structures secondaires, tertiaires et quaternaires bien définies ce qui leur permet d'être très résistantes aux traitements thermiques (Patel & Patel, 2015). Elles ont donc des structures désordonnées (Dickinson, 1999) et dans leur état naturel, elles ont tendance à former des agglomérats moléculaires appelés « micelles » lesquels sont en partie maintenus ensemble par des ions minéraux tels que le phosphate de calcium (Damodaran & Paraf, 1997 ; McClements, 2005). La structure ouverte et flexible des caséines ainsi que leur caractère amphiphile marqué leur confèrent d'excellentes propriétés tensioactives et elles donc sont idéales pour les opérations d'émulsification et de foisonnement (Huppertz *et al.*, 2018).

Les caséines sont peu solubles dans l'eau (Cheftel & Lorient, 1982). Cependant, par l'addition de bases, il est possible d'obtenir des formes hydrosolubles dénommées caséinates (Augustin *et al.*, 2011). Par exemple, les caséinates de sodium sont obtenus par traitement avec hydroxyde de sodium. Les caséines dans leur forme non-agrégée (caséinates de sodium) présentent des propriétés émulsifiantes plus importantes que leur contrepartie agrégée ou à l'état micellaire (Euston & Hirst, 2000). D'après Loisel et Lefebvre (2013), les caséines et caséinates ont aussi de bonnes propriétés foisonnantes, mais de faibles propriétés de stabilisation des mousses.

1.4.2 Gomme xanthane

Généralement, les protéines à elles seules ne peuvent pas fournir de mousses stables sans l'addition d'autres agents stabilisants (Narchi *et al.*, 2009). Les agents texturants d'origine glucidique sont amplement utilisés dans les milieux industriels en tant

qu'épaississants et gélifiants (Williams & Phillips, 2009). C'est leur capacité à augmenter la viscosité qui les rend particulièrement intéressants en tant qu'agents stabilisants.

Selon la concentration, on peut distinguer trois régimes : dilué, semi dilué et concentré (figure 7). Dans le régime dilué les polymères se déplacent librement dans la matrice. Au fur et à mesure que leur concentration augmente, il y a plus d'interactions entre les molécules (régime semi-dilué). Enfin, dans un régime concentré, les molécules peuvent s'enchevêtrer (Coussot, 2014). Ces différentes structures conduiront à des propriétés rhéologiques distinctes. En particulier, une augmentation de la concentration entraîne une augmentation de la viscosité, mais aussi de l'élasticité de la solution de polymères.

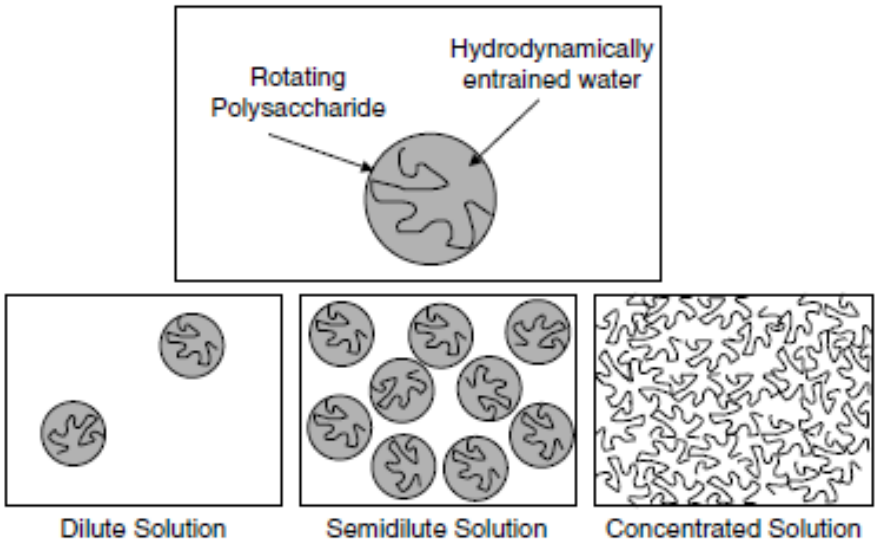


Figure 7. Régimes de concentration des solutions de biopolymères (McClements, 2005)

Le xanthane est l'un des hydrocolloïdes habituellement rencontrés dans les milieux industriels (García-Ochoa *et al.*, 2000). C'est un hétéropolysaccharide extracellulaire synthétisé par la bactérie *Xanthomonas Campestris* (García-Ochoa *et al.*, 2000 ; Stephen *et al.*, 2009 ; Tecante, 2005) ayant un poids moléculaire élevé d'approximativement 2×10^6 g.mol^{-1} (Narchi, *et al.*, 2009 ; Pacheco-Torgal *et al.*, 2015). Sa structure primaire consiste en unités penta saccharidiques répétées formées de deux unités glucose, avec un branchement latéral comportant deux unités mannose et une unité acide glucuronique (Figure 8).

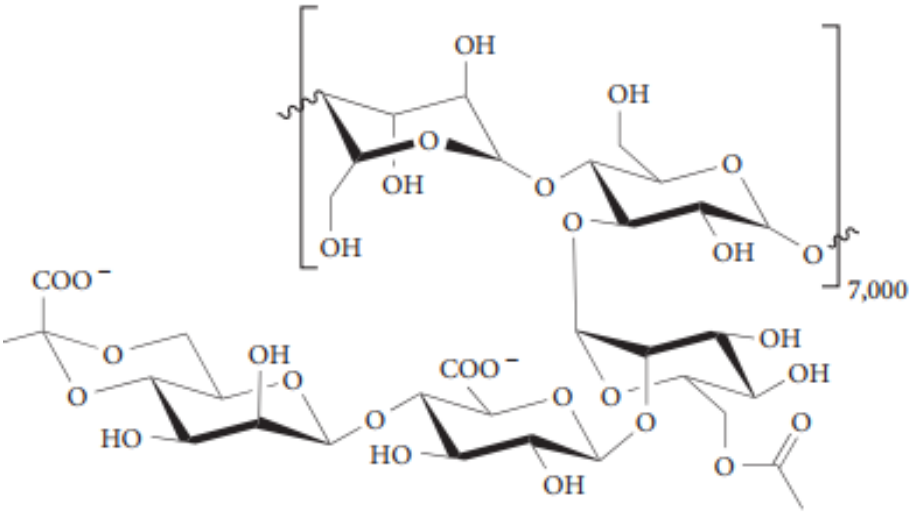


Figure 8. Structure chimique du xanthane (Rehm, 2010).

Les solutions de xanthane présentent un comportement viscoélastique très rhéofluidifiant (figure 9). Elles ont donc une viscosité très élevée au repos et une viscosité très faible à haut cisaillement (Kang & Pettitt, 1993 ; Tecante, 2005). Ces caractéristiques sont une conséquence de la rigidité des chaînes du xanthane et de la faiblesse du réseau entre les macromolécules impliquant des liaisons hydrogènes (Narchi *et al.*, 2009). Ces deux caractéristiques du xanthane sont très appréciées dans plusieurs applications industrielles. En effet, une viscosité élevée au repos améliore la stabilité de certains produits comme les mousses (Laporte 2014) et les émulsions (Martínez-Padilla *et al.*, 2015) tandis qu'une viscosité très faible à haut cisaillement facilite son transport dans différentes installations industrielles. Une autre propriété technologique avantageuse du xanthane est sa capacité de solubilisation à la fois dans l'eau froide et dans l'eau chaude (García-Ochoa *et al.*, 2000 ; Kang &Pettitt, 1993)

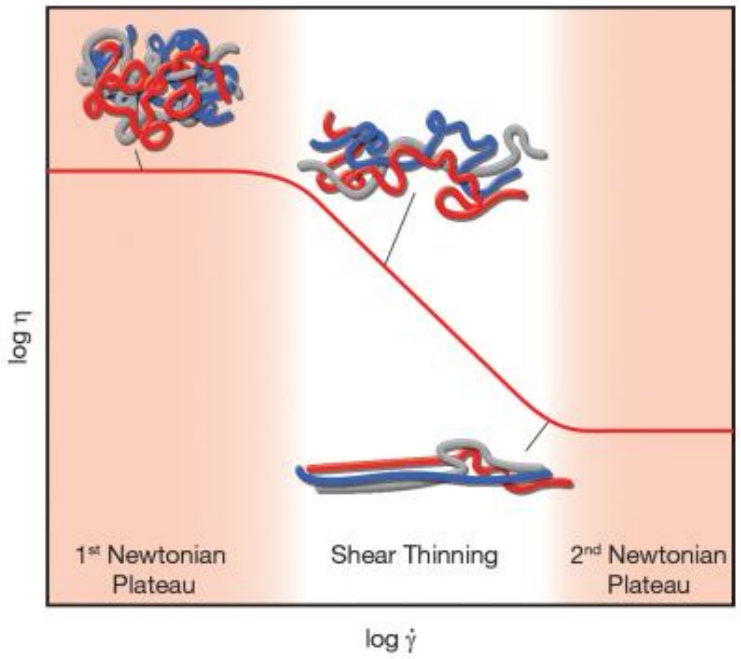


Figure 9. Courbe caractéristique d'une solution avec un comportement rhéofluidifiant (Oswald & Rudolph, 2014).

Le xanthane est donc un ingrédient utilisé dans de nombreuses applications couvrant un large éventail de domaines, notamment les industries alimentaire, pharmaceutique, cosmétique, agricole, du textile, de la céramique et du pétrole (Narchi *et al.*, 2009 ; Stephen *et al.*, 2009 ; Song *et al.*, 2006). Les concentrations du xanthane typiquement utilisées dans les applications alimentaires se trouvent dans la gamme de 0,05 à 0,5 % en masse (García-Ochoa *et al.*, 2000 ; ICF International, 2016 ; Paquin, 2009)

1.5 Interaction protéines - polysaccharides

Quand les protéines et les polysaccharides sont en solution, ils peuvent interagir et présenter des effets synergiques (Narchi *et al.*, 2009) ; ces interactions sont de plus en plus étudiées dans l'industrie alimentaire (Syrbe *et al.*, 1998) et les comportements observés sont divisés en trois régimes (figure 10) : co-solubilité, complexation ou coacervation complexe et incompatibilité (de Kruif & Tuinier, 2001).

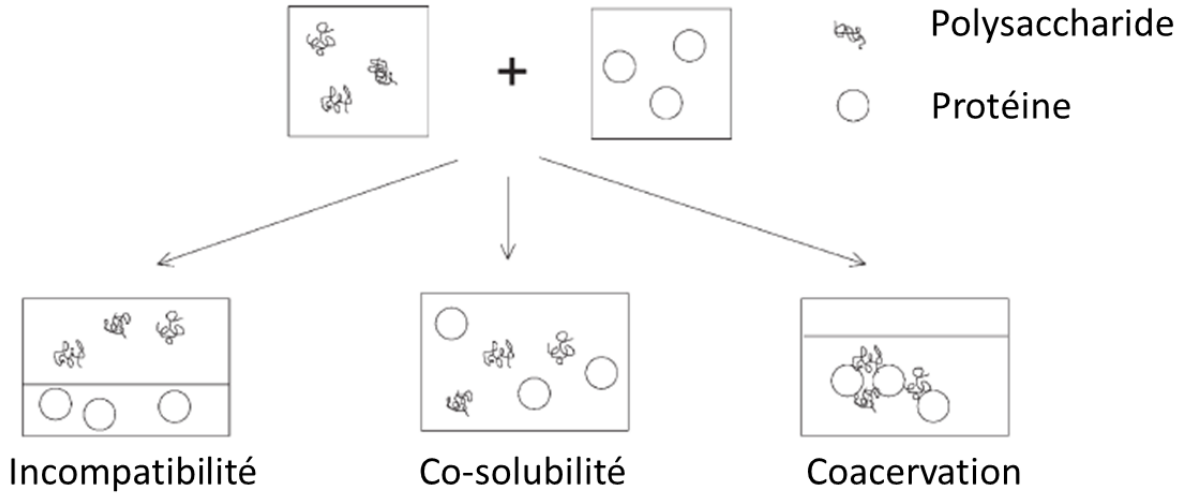


Figure 10. Principales interactions entre les protéines et les polysaccharides (de Kruif&Tuinier, 2001).

Dans le régime de co-solubilité, il y a une distance suffisante pour empêcher des interactions intermoléculaires (Benichou *et al.*, 2007) et les deux types de polymères sont solubilisés dans la phase continue. La coacervation complexe a lieu lorsque les biopolymères s'attirent et une séparation de phase peut se produire. Dans ce cas, une phase contient des coacervats, tandis que l'autre est dépourvue de polymères (Narchi *et al.*, 2009 ; Syrbe *et al.*, 1998). Enfin, L'incompatibilité thermodynamique concerne la séparation des phases lorsque les protéines et les polysaccharides se repoussent. Deux phases immiscibles sont obtenues, chacune enrichie d'une seule espèce de biopolymère (Narchi *et al.*, 2009 ; Syrbe *et al.*, 1998)

Le xanthane est un biopolymère carboxylé chargé négativement dans la plage de pH habituelle des aliments. Il peut par conséquent présenter des interactions électrostatiques avec les protéines (Narchi *et al.*, 2009). Benichou *et al.* (2007) ont étudié les interactions du xanthane avec les isolats de protéines sériques et ils ont proposé une carte des régimes pour l'interaction de ces deux biopolymères en solution (figure 11). Cette carte des régimes a été construite à une température de 20°C et pH de 7. A faible concentration des isolats de protéines sériques (≤ 4% en masse) et de xanthane (≤ 0.5% en masse), les deux biopolymères n'interagissent pas et sont solubles dans l'eau. A des concentrations plus élevées, les protéines sériques et le xanthane semblent avoir tendance à interagir et présenter des comportements inattendus en raison de nouvelles propriétés physicochimiques.

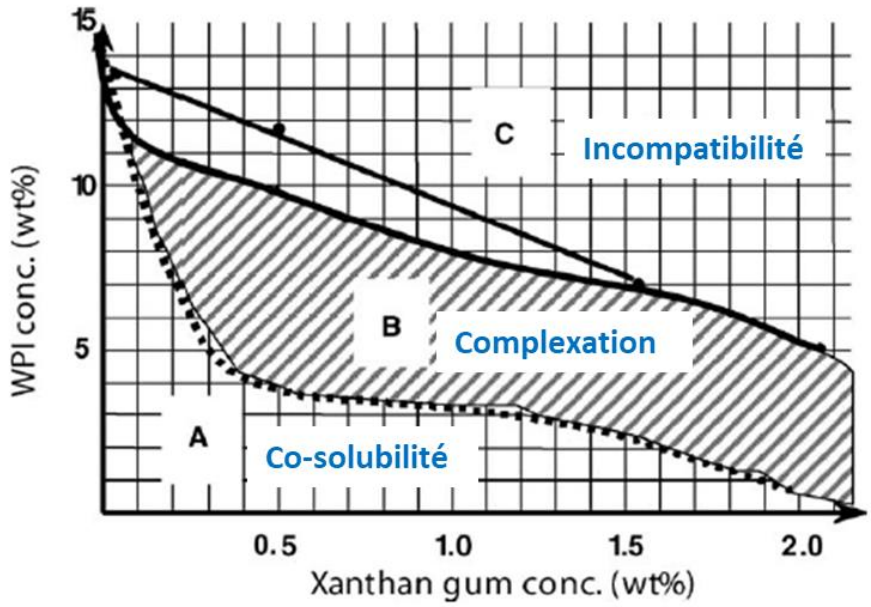


Figure 11. Carte des régimes d'interaction entre les isolats de protéines sériques (WPI) et la gomme xanthane en fonction de la concentration de ces deux molécules. Modifiée de (Benichou *et al.*, 2007).

La modification de la force ionique est un paramètre à surveiller lorsque l'on travaille avec des solutions à base de xanthane. En effet, l'ajout de sel masque les charges moléculaires et peut donc empêcher les interactions électrostatiques. Ceci peut donner lieu à des changements de la structure des polymères mais aussi avoir un impact sur leur compatibilité (Laporte, 2014 ; Wyatt *et al.*, 2011). Ces changements structuraux peuvent donc avoir des conséquences significatives sur les propriétés fonctionnelles des molécules du xanthane. Par exemple, dans Brunchi *et al.* (2014) la viscosité intrinsèque des solutions à base de xanthane a diminué après ajout du NaCl à cause d'une diminution du volume hydrodynamique des molécules du xanthane en raison de configurations plus compactes développées. Une diminution de la viscosité a aussi été remarquée par Khouryieh *et al.* (2007) pour des solutions à base de gomme xanthane et de gomme guar. Cependant, selon Wyatt *et al.* (2011) l'effet du sel dépend aussi du régime de concentration du xanthane. Ces auteurs ont montré que pour des solutions de xanthane dans un régime concentré, l'ajout du NaCl semble en fait augmenter significativement la viscosité.

1.6 Propriétés des mousses

1.6.1 Distribution de la taille des bulles et fraction de vide

Comme pour le cas des émulsions, les propriétés physiques des mousses dépendent principalement de leurs propriétés structurales, notamment de la fraction de gaz et de la distribution de tailles des bulles (Coussot, 2014 ; Drenckhan & Saint-Jalmes, 2015 ; Fameau & Salonen, 2014 ; Mary, 2011).

Fraction de vide

La fraction de vide ou fraction volumique de gaz correspond à la quantité de gaz incorporé dans la phase continue. Elle est donc un rapport entre le volume du gaz et celui de la mousse (équation 3). La fraction volumique du gaz est étroitement liée à la différentiation de la structure des mousses entre mousse sèche et mousse liquide (Langevin, 2017 ; Schorsch, 2007). En conséquence, la fraction de vide a une importance capitale lors de la production des mousses car elle peut occasionner des différences notables de la structure et donc de la texture et de la durée de vie pour un même produit (Mary, 2011). La figure 12 montre clairement comment la structure d'une mousse peut varier en fonction de la fraction volumique de gaz.

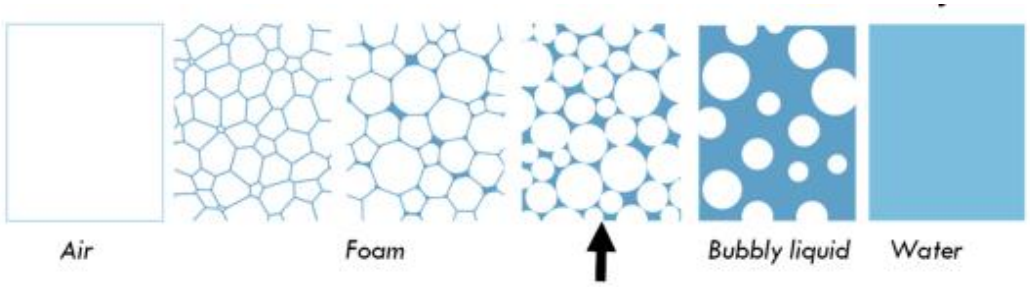


Figure 12. Structure d'une mousse en fonction de la fraction de vide (Langevin, 2017).

$$\alpha = \frac{V_{gaz}}{V_{mousse}} = \frac{V_{gaz}}{V_{liquide} + V_{gaz}} \quad (3)$$

Un autre paramètre important quand on parle d'incorporation du gaz est le taux de foisonnement également dénommé *Overrun* en anglais (Damodaran *et al.*, 2008 ; Mary 2011) ou *foaming power* (Schramm, 2014). Le taux de foisonnement (*TF*), calculé avec l'équation 4, renseigne sur l'augmentation de volume de la mousse obtenue par rapport au volume initial de liquide et donc permet d'évaluer la performance d'un procédé de foisonnement en termes de production mais également la performance des propriétés fonctionnelles des protéines

utilisées (Foegeding *et al.*, 2006). Le taux de foisonnement et la fraction de vide sont liés par la relation 5.

$$TF = 100\left(\frac{V_{gaz\ incorporé}}{V_{liquide}}\right) = 100\left(\frac{\rho_{liquide}}{\rho_{mousse}} - 1\right) \quad (4)$$

$$TF = \alpha\left(\frac{\rho_{liquide}}{\rho_{mousse}}\right)100 \quad (5)$$

Distribution de tailles des bulles

Comme indiqué précédemment, non seulement la fraction de vide, mais également la distribution de tailles des bulles affecte les propriétés texturales et organoleptiques des produits finis (Elgeti *et al.*, 2015). La détermination de la distribution de la taille des bulles est donc indispensable pour comprendre la structure interne d'un produit et son comportement face à des applications concrètes (Miskovic, 2011).

Il existe en fait plusieurs techniques selon les applications pour mesurer la distribution de taille. Ces techniques sont souvent classifiées comme intrusives ou non intrusives. Les techniques microscopiques sont un exemple de techniques intrusives dans lesquelles un échantillon doit être placé sur une lame de microscope, démarche méthodologique pouvant conduire à la déstructuration des bulles dans l'échantillon. Parmi les techniques non intrusives, il existe des méthodes photographiques-stroboscopiques (Laporte, 2014), la tomographie à rayons X (Lambert *et al.*, 2007), des méthodes basées sur l'utilisation des ultrasons (Chen *et al.*, 2017) et des techniques basées sur l'emploi de laser (Kulkarni *et al.*, 2004). Plusieurs autres méthodes ont été signalées par Vazquez *et al.* (2005) et Boyer *et al.* (2002).

Les techniques optiques d'observation sont les plus utilisées (Chen *et al.*, 2017 ; Kulkarni *et al.*, 2004). Cependant, elles peuvent présenter certains inconvénients telles que leur dépendance à l'égard de l'indice de réfraction et de la profondeur du champ, mais aussi l'impossibilité de bien caractériser les bulles dans les conduits cylindriques. (Kulkarni *et al.*, 2004).

Dans la réalité, les mousses et les émulsions ne sont pas complétement monodisperses et plusieurs tailles de bulles coexistent dans un même échantillon (figure 13). De ce fait, il est

important de déterminer la distribution de taille aussi appelée granulométrie (Canselier & Poux, 2004). Les différentes tailles des bulles sont classifiées en intervalles de classe et l'ensemble de ces intervalles donne forme à la distribution granulométrique. Malgré les différentes tailles des bulles présentes, il est courant de définir une taille unique pour caractériser l'ensemble de la distribution (Canselier & Poux, 2004 ; Kowalczuk & Drzymala, 2016 ; Merkus, 2009).

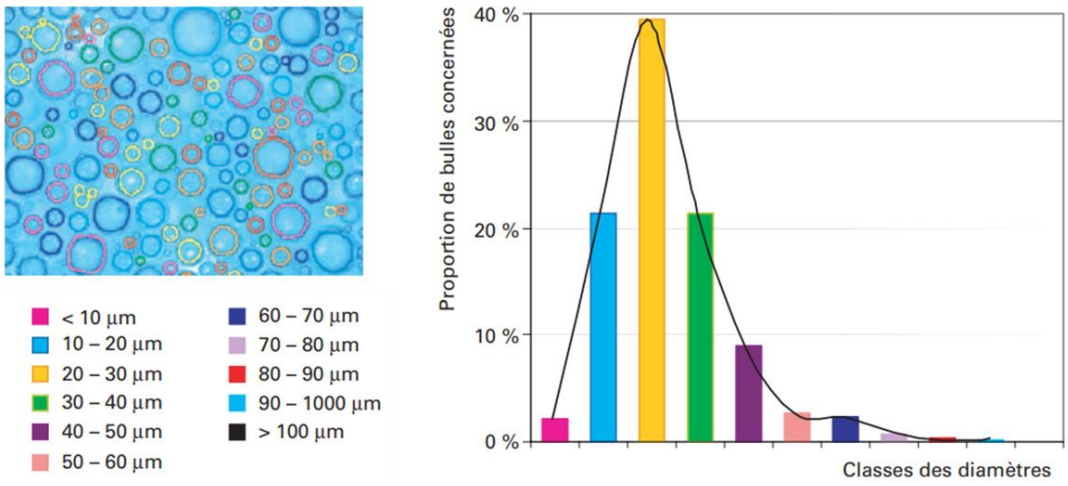


Figure 13. Distribution de tailles de bulles obtenue par analyse d'image pour une mousse laitière. Image modifiée tirée de (Schorsch, 2007).

Il existe en effet plusieurs types de diamètres qui permettent de caractériser l'ensemble des bulles. Le tableau 1 présente plusieurs diamètres souvent utilisés dans diverses opérations de classification de tailles des particules :n_i représente la fréquence d'occurrence (en nombre) de particules dans la classe de taille i ayant un diamètre moyen D_i. Le choix du paramètre à utiliser se fait en fonction du phénomène qui est pertinent à décrire. Ainsi, étant donné l'importance de la surface interfaciale dans les systèmes dispersés, le diamètre de Sauter (D_{32}), qui exprime le rapport de la surface sur le volume, est typiquement utilisé pour l'étude de systèmes dispersés (Canselier & Poux, 2004 ; Denkov *et al.*, 2012 ; Merkus, 2009).

Tableau 1 Diamètres moyens utilisés dans la description de tailles de particules (Merkus, 2009)

Symbol	Signification	Expression
$D_{1,0}$	diamètre moyen pondéré en nombre (moyenne arithmétique)	$\Sigma n_i D_i / \Sigma n_i$
$D_{3,2}$	diamètre moyen pondéré en surface (diamètre Sauter)	$\Sigma n_i D_i^3 / \Sigma n_i D_i^2$
$D_{4,3}$	diamètre moyen pondéré en volume (diamètre De Brouckere)	$\Sigma n_i D_i^4 / \Sigma n_i D_i^3$
$D_{3,0}$	diamètre moyen en volume	$(\Sigma n_i D_i^3)^{1/3}$

D'autres diamètres tels que le D_{10}, D_{50} ou médiane et D_{90} sont souvent utilisés commercialement pour établir des spécifications de produits (Merkus, 2009). Ces valeurs décrivent le diamètre où respectivement 10, 50 et 90% de la distribution présente une taille inférieure ou égale à celui-ci. D'autres diamètres ont été aussi répertoriés dans Mary (2011). Enfin, des paramètres sans dimension permettent de caractériser le niveau de dispersion ou étalement d'une distribution tel que le *span*, défini selon $(D_{90}-D_{10})/D_{50}$ (Mary, 2011). Le coefficient de variation, CV, peut être également utilisé à cet effet ; il est défini par le rapport de l'écart-type de la distribution sur sa moyenne. Ce paramètre est en particulier très utilisé pour caractériser des émulsions formées par des systèmes microfluidiques conventionnels.

Finalement, il est important de rappeler que les mousses sont des systèmes métastables. Les tailles des bulles dans les mousses évoluent donc très rapidement (figure 14), leur structure passe donc d'une mousse humide vers une mousse sèche. Cette rapide déstructuration rend complexe la définition d'une structure unique caractéristique pour une mousse fabriquée ainsi que la comparaison entre différentes mousses (Foegeding *et al.*, 2006).

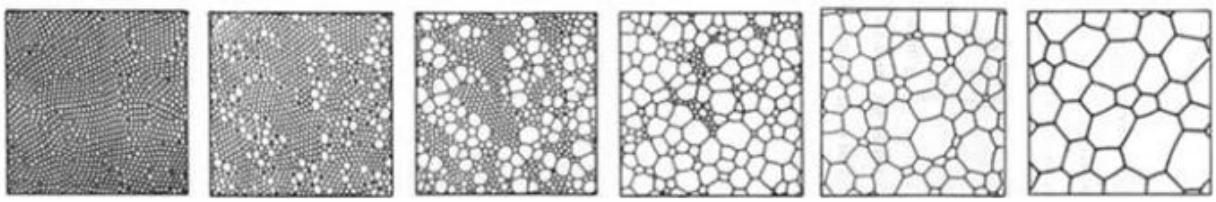


Figure 14. Evolution des bulles dans le temps (Cantat et al., 2013).

1.6.2 Rhéologie des mousses

La rhéologie est un outil important dans la compréhension des interactions alimentaires et de la structure alimentaire. De façon générale, les connaissances rhéologiques permettent de guider un développeur de produit ou de procédé pour manipuler et gérer les interactions entre ingrédients à son avantage. Dans le cas de mousses, l'étude de leurs caractéristiques rhéologiques a été abordée par diverses approches en raison de la complexité des systèmes diphasiques gaz-liquide, mais aussi à cause des multiples échelles présentes dans la structure d'une mousse (Dollet & Raufaste, 2014).

L'étude de la rhéologie des mousses reste malgré tout un sujet de recherche très actif. La plupart des études s'appuient sur des analyses rhéométriques à l'échelle de la mousse dans

son ensemble, couplées à des interprétations à l'échelle locale de bulles ou d'interfaces (Cohen-Addad & Höhler, 2014 ; Dollet & Raufaste, 2014). Du fait de l'importante métastabilité de ces systèmes, les caractéristiques mesurées ne décriront le produit que pour une durée limitée. Ceci rend complexe les comparaisons avec d'autres études et même entre les différents essais d'une même étude. Plusieurs considérations méthodologiques doivent être prises en compte afin d'assurer la robustesse des résultats obtenus. Idéalement les mousses doivent être caractérisées immédiatement après production afin de connaitre le vrai impact du procédé. Il est également nécessaire de veiller au phénomène de glissement des mousses lors de l'utilisation des méthodes de caractérisation rhéométriques.

Les mousses sont des systèmes assez structurés présentant des composants visqueux et élastiques. Elles se caractérisent également par un caractère rhéofluidifiant très marqué ainsi que par la présence d'un seuil d'écoulement. Le seuil d'écoulement marque le passage de la zone de déformation élastique réversible à la zone où s'installe un écoulement viscoplastique irréversible (Cohen-Addad & Höhler, 2014). Un des modèles traditionnellement utilisé pour décrire la relation entre la contrainte de déformation et la vitesse de cisaillement des mousses à l'échelle macroscopique est la loi phénoménologique de Herschel-Bulkley (Cohen-Addad *et al.*, 2013 ; Dollet & Raufaste, 2014) :

$$\tau = \tau_0 + k\dot{\gamma}^n \qquad (6)$$

Où τ_0 représente le seuil d'écoulement, k l'indice de consistance et n l'indice de comportement. Quand $n < 1$ le fluide à un comportement rhéofluidifiant et lorsque $n > 1$, on est dans un cas de comportement rhéoépaississant. La figure 15 présente deux caractérisations typiques de la rhéologie des mousses par rhéométrie. D'abord, la figure 15a montre une courbe correspondant à un test d'écoulement pour caractériser la viscosité d'une mousse élaborée à partir d'une solution modèle contenant du WPI et un mélange eau/glycérol (60/40). Quant à la figure 15b, elle présente une caractérisation de la viscoélasticité d'une mousse à raser en utilisant un test de balayage en fréquence avec plusieurs amplitudes de déformation.

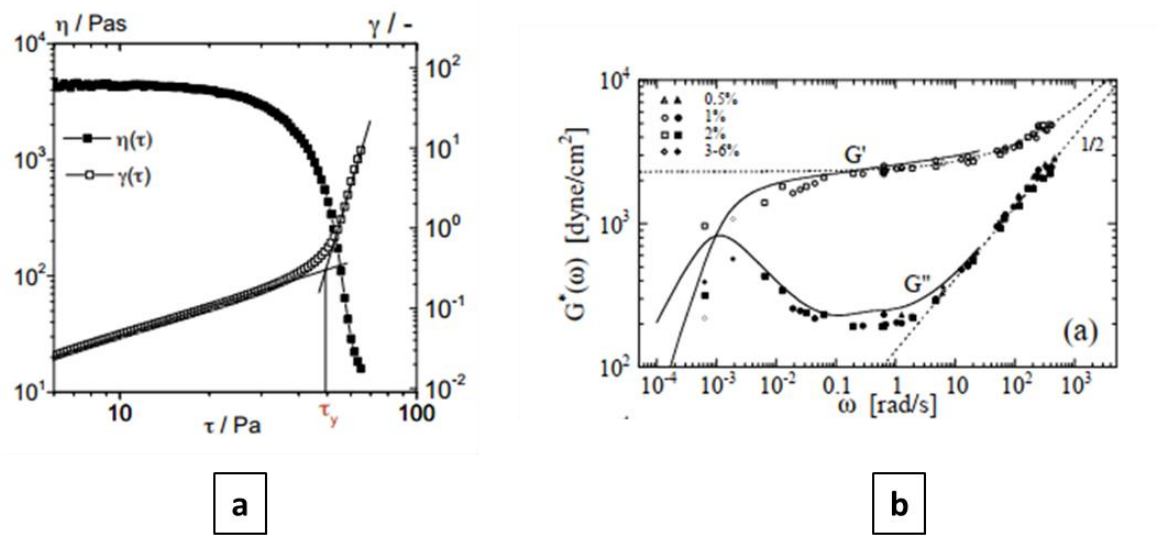


Figure 15. Caractérisations des mousses à échelle macroscopique par rhéométrie **a)** test d'écoulement pour mesure de la viscosité. τ_y représente le seuil d'écoulement (Lexis & Willenbacher, 2014a) **b)** balayage en fréquence pour caractérisation de la viscoélasticité (Gopal & Durian, 2003) pour différents pourcentages d'amplitude de contrainte imposée.

Lorsque l'écoulement est induit dans une mousse, les bulles doivent se déformer davantage et glisser l'une sur l'autre. Au cours de la déformation, les gouttelettes stockent de l'énergie et, par conséquent, de tels systèmes présentent une élasticité. Ces systèmes possèdent également une limite d'élasticité (seuil d'écoulement) qui doit être dépassée avant que l'écoulement puisse avoir lieu (Borwankar & Case, 1997). Avant de dépasser ce seuil, les mousses se comportent comme des solides viscoélastiques avec G ' (module élastique) >> G" (module visqueux) et commencent initialement à s'écouler au-dessus de cette contrainte critique (Lexis & Willenbacher, 2014a). Lorsqu'une mousse dépasse ce seuil, le flux plastique s'installe en raison de réarrangements de bulles locales qui relâchent le stress (Cantat & Pitois 2006 ; Cohen-Addad *et al.*, 2013). Dans une mousse sèche, ces changements topologiques sont appelés événements T1 (figure 16).

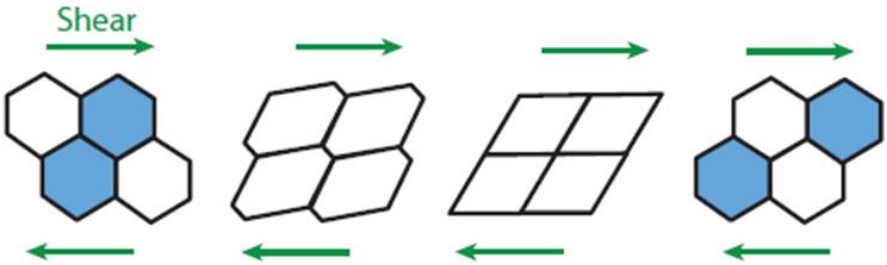


Figure 16. Evènements T1 pour une mousse 2D sous cisaillement (Cohen-Addad *et al.*, 2013).

Plus une mousse est sèche, plus le seuil d'écoulement et les composants élastiques sont importants. La classification des mousses en mousse sèche ou liquide, mais aussi le comportement liquide ou plutôt solide d'une mousse sont donc fortement liés à la fraction volumique du gaz comme présenté précédemment. La Figure 17 schématise ce comportement solide-liquide des mousses en fonction de la fraction volumique du liquide (= 1 - *fraction de vide*)

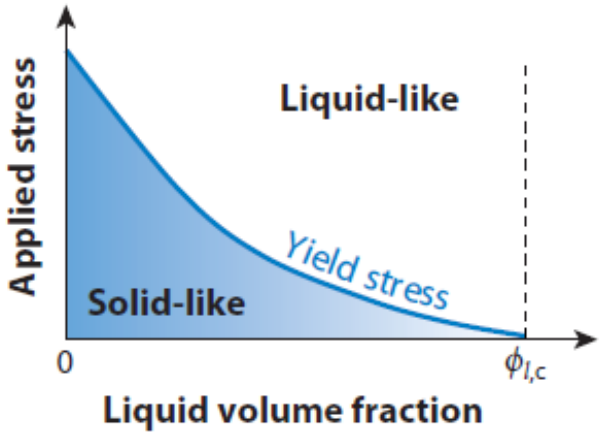


Figure 17. Comportement liquide ou solide d'une mousse en fonction de la fraction volumique du liquide (Cohen-Addad *et al.*, 2013).

Plusieurs modèles ont été donc proposés afin de décrire la rhéologie et tout particulièrement la viscosité d'une mousse en fonction de la fraction de vide. Ces modèles ont été développés à l'origine pour des suspensions (Mueller *et al.*, 2010), mais ils sont extrapolables en général pour d'autres systèmes dispersés comme les émulsions et les mousses. Un des premiers modèles proposés pour déterminer la viscosité d'une suspension diluée correspond au modèle d'Einstein (équation 7) valable pour des fractions de la phase dispersée inférieures à 0,1. Dans cette équation, μ représenterait la viscosité de la mousse, μ_0 la viscosité du solvant, α la fraction de vide et B est connue comme le coefficient d'Einstein. D'autres modèles ont été proposés pour des fractions plus élevées de la phase dispersée dans les régimes semi-dilués (Mueller *et al.*, 2010 ; Soleymanzadeh *et al.*, 2017). Concernant le régime concentré, le modèle de Krieger-Dougherty (équation 8) est celui qui historiquement a le mieux ajusté les données des suspensions (Mueller *et al.*, 2010). Où ϕ_{max} correspond à la fraction maximale de compactage. Ces mêmes auteurs ont avancé que ϕ_{max} et B peuvent être traités comme des paramètres d'ajustement pour les données expérimentales. Soleymanzadeh *et al.* (2017) et Shaw (2012) présentent un recueil de modèles empiriques utilisés dans la

littérature pour décrire la viscosité des suspensions en fonction de la fraction de vide, le compactage maximal et d'autres paramètres d'ajustement.

$$\mu = \mu_0(1 + B\alpha) \tag{7}$$

$$\mu = \mu_0 \left(1 - \frac{\alpha}{\phi_{max}}\right)^{-B\phi_{max}} \tag{8}$$

La dépendance de la rhéologie de la mousse avec la fraction de volume de gaz est également révélée par l'analyse d'autres paramètres rhéologiques importants. Dans la figure 18, Saint-Jalmes & Durian (1999) montrent l'évolution du seuil d'écoulement (figure 18a) et du module de cisaillement (figure 18b) en fonction de la fraction de vide pour des mousses élaborées par mélange turbulent à partir des solutions de α-Olefinsulfonate : σ_y étant le seuil d'écoulement, G le module de cisaillement et ϕ la fraction de vide. Des expressions empiriques pour modéliser le seuil d'écoulement, ou seuil de plasticité, (équation 9) et le module d'élasticité (équation 10) en fonction de la fraction de vide des mousses ont été également proposées dans la littérature (Cohen-Addad & Höhler, 2014 ; Lexis &Willenbacher, 2014a ; Lexis &Willenbacher, 2014b ; Mason *et al.*, 1995 Mason, *et al.*, 1996 ; Rouyer *et al.*, 2005 ; Saint-Jalmes & Durian, 1999).

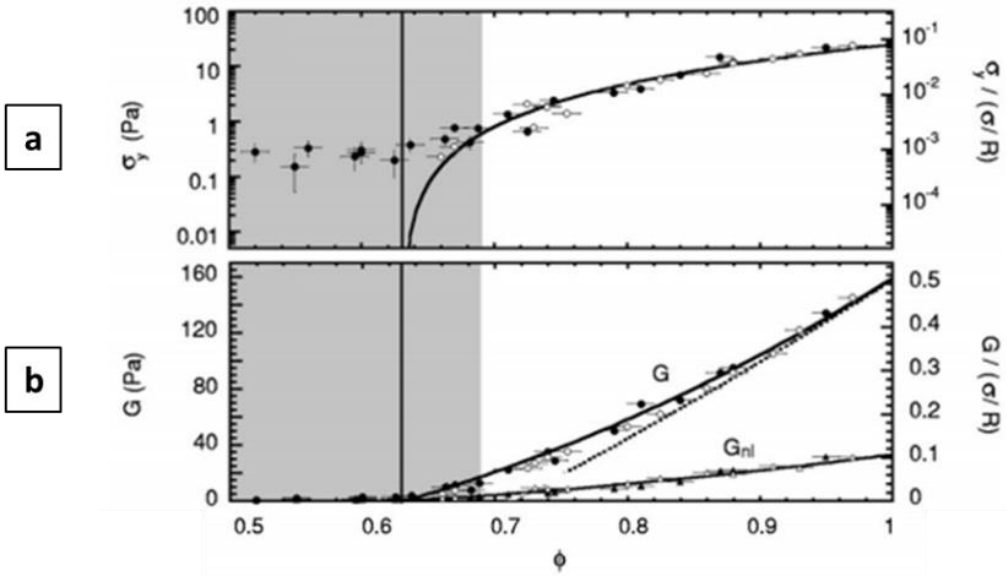


Figure 18. Dépendance des paramètres rhéologiques des mousses sur la fraction de vide **a)** seuil d'écoulement **b)** module de cisaillement. D'après Saint-Jalmes & Durian (1999).

$$\tau_y \simeq A\frac{\sigma}{r}(\alpha - \phi_{max})^2 \quad (9)$$

$$G_0 \simeq A\,\frac{\sigma}{r_{32}}\,\alpha(\alpha - \phi_{max}) \quad (10)$$

Finalement, de plus en plus de recherches s'intéressent à la rhéologie interfaciale. Les agents de surface couramment utilisés pour stabiliser les interfaces gaz-liquides peuvent en effet conférer aux films interfaciaux des propriétés rhéologiques (Cohen-Addad *et al.*, 2013) (Eugénie *et al.*, 2014) qui seraient liées au comportement rhéologique de l'ensemble de la mousse (Foegeding *et al.*, 2006). En effet, les couches d'agents de surface formées à l'interface vont donner lieu à une viscosité interfaciale (Wang *et al.*, 2016). Foegeding *et al.* (2006) avancent que la viscoélasticité de l'interface peut être impactée par plusieurs facteurs tels que le type de protéine, la présence de cosolutés et l'historique thermique de la solution. D'après Bos et van Vliet (2001), les protéines globulaires telles que la β-lactoglobuline, l'ovalbumine et le lysozyme ont tendance à former des films plus rigides que dans les cas des protéines moins ordonnées comme la β-caséine.

2 Foisonnement et microfluidique

2.1 Procédés de production de mousses

Le procédé de foisonnement a pour but d'augmenter le volume apparent du produit en y piégeant de fines bulles de gaz (Schorsch, 2007). La création de ces bulles implique donc l'augmentation de la surface interfaciale entre la phase gazeuse et la matrice liquide (Coussot, 2014 ; Hanselmann & Windhab, 1998). Un apport d'énergie au système est donc nécessaire. Plusieurs méthodes de foisonnement sont disponibles à cet égard et leur utilisation est souvent un choix des producteurs en fonction des performances des dispositifs, de la formulation, des caractéristiques du produit final, mais aussi des besoins spécifiques du procédé.

Les différentes techniques de foisonnement sont généralement classifiées en procédés continus et discontinus. Les procédés discontinus consistent en l'utilisation d'un agitateur pour foisonner un volume de solution se trouvant dans une cuve de volume donné. Le batteur électrique ménager et les agitateurs planétaires (figure 19a) sont des exemples de ce type de système (Schorsch, 2007). Le temps et la vitesse de battage sont les paramètres qui permettent d'avoir un certain degré de contrôle sur le taux de foisonnement dans ces appareils. Cependant, il est presque impossible de vraiment contrôler l'incorporation du gaz avec cette méthode et les distributions des tailles des bulles sont régulièrement très polydisperses allant de 0,1 à 3 mm. Au-delà d'une limite de temps de battage, il peut en plus exister un réchauffement de la mousse et en conséquence une diminution de sa stabilité (Pugh, 2016).

Dans le cas des procédés continus, utilisés généralement en milieux industriels, deux dispositifs sont typiquement rencontrés : l'échangeur à surface raclée (ESR) et le rotor-stator (figures 19b et 19c). Le choix du dispositif dépend du type d'application pour laquelle il sera employé. L'ESR est principalement utilisé dans le cas des opérations de foisonnement impliquant aussi un transfert thermique comme dans le cas de la crème glacée (González Méndez, 1990). Les rotor-stators sont les systèmes les plus largement utilisés dans les milieux industriels pour la production des mousses et des émulsions (Schorsch, 2007). Dans le cas de rotor-stator, le contrôle de la température constitue leur principale faiblesse (Narchi, 2008), pouvant conduire à l'échauffement du produit foisonné (Müller-Fischer &Windhab,

2005 ; Pugh, 2016). Ils sont en plus couteux en investissement et en fonctionnement (Pugh, 2016 ; Vial & Djelveh, 2013).

D'autres systèmes pour conduire l'opération de foisonnement ont été proposés au fil du temps. Les mélangeurs statiques (figure 19d) sont des systèmes jusqu'à présent sous-exploités qui commencent à trouver petit à petit une place dans les opérations de foisonnement (Laporte, 2014). Ces systèmes font partie des mélangeurs dits passifs, c'est-à-dire sans apport d'énergie en dehors du pompage des fluides. Ils sont constitués en général d'une conduite cylindrique à l'intérieur de laquelle plusieurs éléments définis servent d'obstacles géométriques au passage des fluides. La perte de charge apporte donc l'énergie nécessaire au foisonnement dans ces dispositifs. Leur principal désavantage concerne les risques de contaminations liés à la difficulté de nettoyage des recoins des obstacles, mais aussi les fortes pressions requises pour les milieux très visqueux (Vial & Djelveh, 2013).

Récemment, le développement du domaine micro et millifluidique a suscité l'intérêt scientifique dans l'utilisation de ce type de technologie pour des applications d'émulsification (Belkadi, 2015) et de foisonnement (Gaillard, 2016 ; Laporte, 2014 ; Pugh, 2016). L'utilisation de systèmes microfluidiques, comme celui de la figure 19e (Laporte, 2014) s'est avéré intéressant en vertu de leurs coûts de fabrication et d'opération moins élevés, d'un mélange intensifié et des transferts thermiques et massiques améliorés (Afzal & Kim, 2014 ; Bandara *et al.*, 2015 ; Kandlikar *et al.*, 2014 ; Laporte, 2014 ; Laporte *et al.*, 2016).

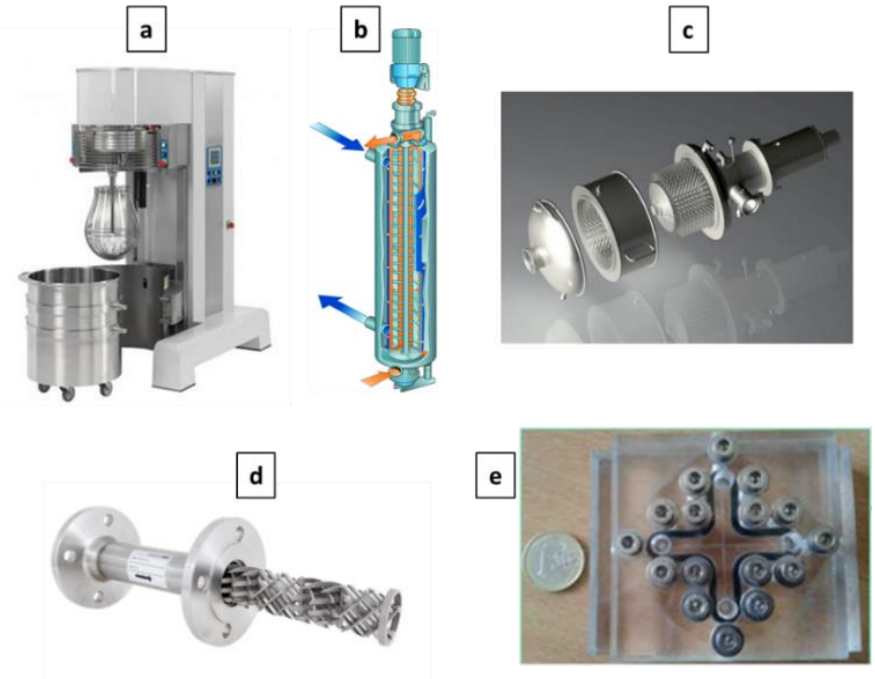


Figure 19. Technologies de foisonnement traditionnelles : **a)** batteur planétaire[2] (procédé discontinu) **b)** échangeur à surface raclée ESR[3] **c)** Rotor-stator (Hartel 2017). Nouvelles technologies : **d)** Mélangeur statique[4] e) dispositifs micro et millifluidiques (Laporte 2014).

2.2 Systèmes microfluidiques

La microfluidique est un domaine qui s'intéresse à la mise en œuvre de systèmes de tailles micrométriques agissant sur des petites quantités de fluide. Elle est maintenant établie comme un nouveau domaine de recherche (Beebe *et al.*, 2002 ; Tabeling, 2005 ; Whitesides, 2006).

La création de dispositifs miniaturisés est une conséquence de l'application des technologies conçues à l'origine pour l'industrie du microchip pour les applications électroniques (Madou, 2002). Le premier produit commercialisé à base d'une technologie microfluidique est l'imprimante à jet d'encre (Tabeling, 2005). Ensuite, il y a eu toute une série de développements de systèmes d'analyses chimiques et biochimiques miniaturisés connus couramment comme des applications lab-on-a-chip (Laboratoire sur une puce) ou aussi dénommés Micro Total Analysis Systems (µTAS) (Berg &Ramsey, 2001). Les microcanaux ont notamment permis d'aborder des questions physiques fondamentales comme l'étirement de la molécule d'ADN (Smith, 1998) ou bien de proposer d'autres développements présentés dans la figure 20.

[2] https://www.bakeit.it/en/product/industrial-planetary-mixer-200-liters/
[3] http://www.rheoheat.se/b17_heat.html
[4] https://www.verderliquids.com/

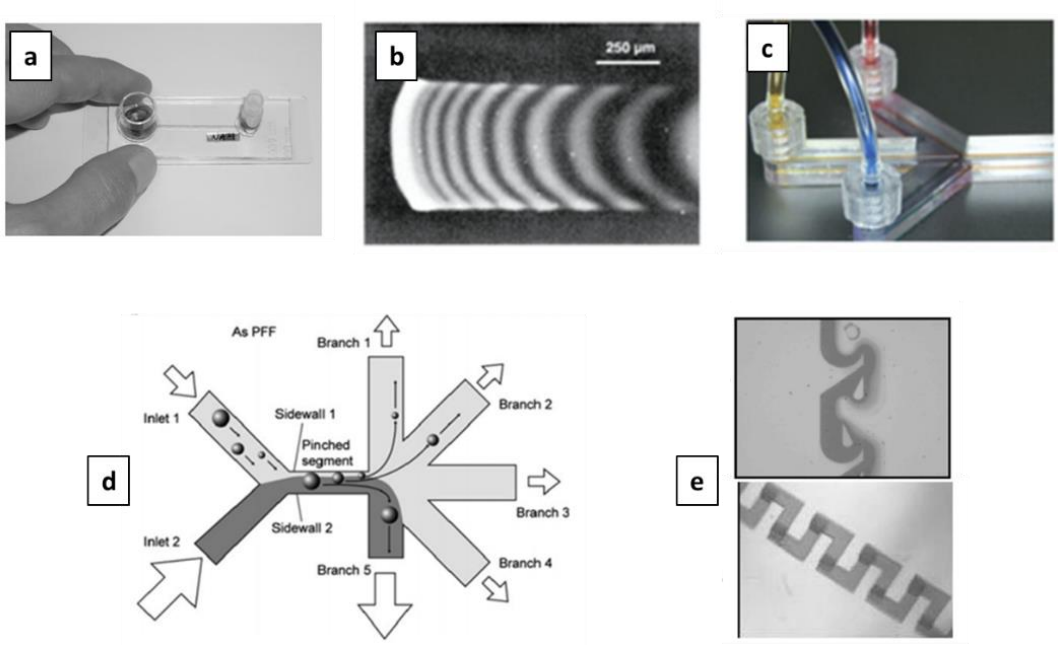


Figure 20. Applications de dispositifs microfluidiques **a)** application biologique culture d'embryon (*Beebe et al.*, 2002) **b)** analyse d'ADN (Lin &Basuray, 2011) **c)** impressions et impression 3D (Sochol *et al.*, 2018) **d)** procédé de séparation (Takagi *et al.*, 2005) **e)** opérations de mélange (Beebe *et al.*, 2002).

La microfluidique a donné naissance également à toute une série des nouveaux dispositifs spécialisés dans les mélanges, les micromélangeurs. Les micromélangeurs peuvent être classifiés comme passifs (sans apport d'énergie externe) ou actifs (utilisation d'énergie externe). Généralement ce sont les micromélangeurs passifs les plus utilisés. Dans ce cas, c'est la géométrie du dispositif qui va permettre un mélange effectif (Zhang *et al.*, 2017). D'après Hartman et Jensen, (2009) ces microdispositifs peuvent être usinés ou fabriqués avec des techniques spécifiques à partir de plusieurs matériaux tels que des polymères, du verre, de l'acier, du silicium et de la céramique (Figure 21). Le choix dépend souvent de la compatibilité du matériau avec les solutions utilisées et de la facilité de fabrication (Zhang *et al.*, 2017).

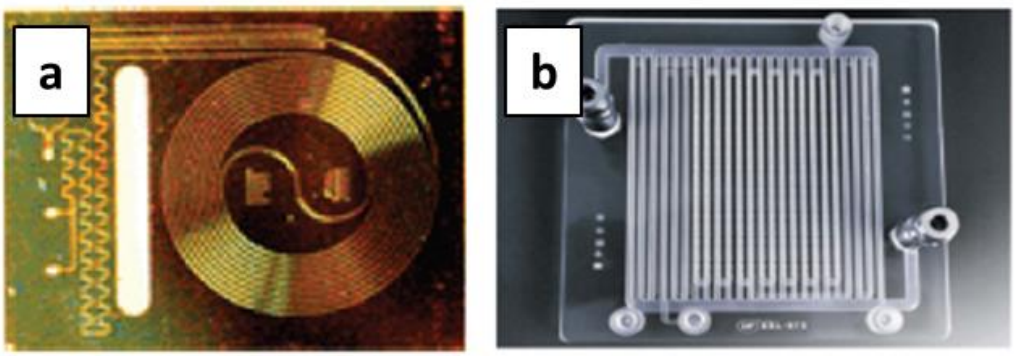


Figure 21. Divers matériaux pour fabrication de microcanaux **a)** en silicium **b)** en verre (Zhang *et al.*, 2017).

La microfluidique se base donc sur un ensemble de technologies permettant d'étudier des phénomènes chimiques, biologiques et physiques. Les dispositifs mis en œuvre sont pour la plupart portables, relativement faciles à fabriquer et ont un coût de fabrication relativement faible, avantage déjà mentionné plus haut (Stone *et al.*, 2004).

Application de la microfluidique dans la création de systèmes dispersés

Les microcanaux ont également un potentiel considérable dans la production de systèmes dispersés tels que les émulsions et les mousses. Ces dispositifs permettent en effet une production de gouttes et de bulles avec une uniformité sans précédent ainsi qu'une maitrise du volume et de la fréquence de production (Anna, 2016 ; Kawakatsu *et al.*, 1997 ; Shui *et al.*, 2007). Dans le cas des applications pour la structuration des matrices alimentaires, les microcanaux permettent un contrôle amélioré du taux d'incorporation d'air et distribution des tailles de gouttes (Laporte, 2014). La figure 22 présente les cas des bulles monodisperses obtenues avec un dispositif microfluidique.

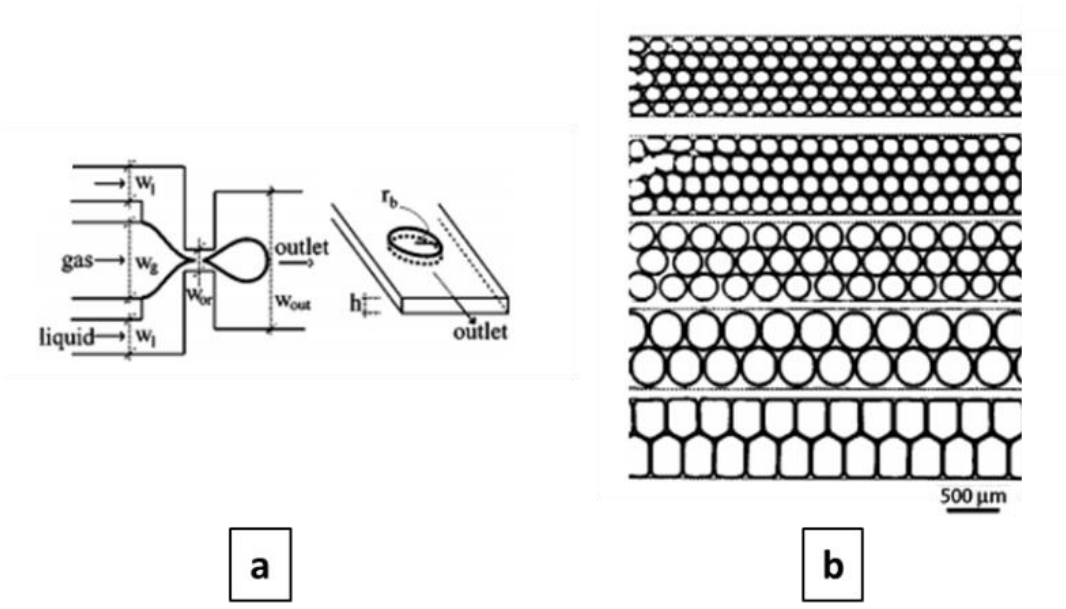


Figure 22. Monodispersité des bulles en microfluidique **a)** dispositif microfluidique utilisé **b)** bulles monodisperses obtenues (Garstecki *et al.*, 2004).

Les microcanaux offrent également un avantage technologique très apprécié par rapport à d'autres technologies de fabrication des émulsions et des mousses : l'observation directe de l'écoulement. En effet, l'utilisation de ces dispositifs donne un accès visuel direct aux phénomènes de formation des gouttes et des bulles ainsi qu'à leurs évolutions. En raison de la taille des microcanaux et selon les conditions du procédé, les bulles ou gouttes formées à

l'intérieur de ces dispositifs peuvent atteindre des vitesses non négligeables de l'ordre de 0,1 à 10 $m.s^{-1}$ (Fu et al., 2009 ; Laporte, 2014). En conséquence, la microscopie et la photographie à haute vitesse doivent être utilisées pour capturer les phénomènes transitoires dans les microsystèmes (Mohammadi & Sharp, 2013). La figure 23 présente quelques illustrations de visualisations réalisées pour la formation de bulles à l'intérieur des microcanaux.

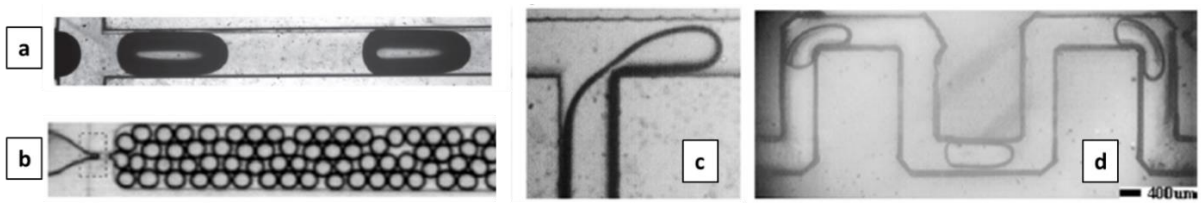


Figure 23. Visualisations des bulles à l'intérieur des microcanaux **a)** Base liquide 0,5%SDS-62% glycérol-eau (Fu *et al.*, 2009) **b)** base liquide de type liquide vaisselle de la marque *dreft* (Marmottant & Raven, 2009) **c)** base liquide, solution à base de SDS, glycérol et de l'eau (Fu & Ma, 2015) **d)** Base liquide eau-glycérol (Xiong & Chung, 2009).

En raison des nombreux avantages mentionnés, cette technologie suscite un fort intérêt pour son application dans des procédés visant la production des mousses (Laporte, 2014) et des émulsions (Belkadi, 2015). En outre, il est possible d'atteindre des cisaillements très élevés de l'ordre de10^{3}-$10^{5}s^{-1}$ dans ces dispositifs (Costa *et al.*, 2017 ; Gad-el-Hak, 2006 ; Laporte, 2014 ; Pan, 2013 ; Pipe *et al.*, 2008 ; Sharp & Adrian, 2004). Les gradients de vitesse atteints avec ces systèmes sont donc comparables à ceux du rotor-stator (Paul *et al.*, 2004), technologie largement utilisée dans la production de mousse (Müller-Fischer & Windhab, 2005). L'avantage principal des microsystèmes par rapport aux dispositifs traditionnels comme le rotor-stator est d'offrir un meilleur contrôle des propriétés structurales des mousses (fraction de vide et taille des bulles), mais aussi des temps de séjour plus courts qui évitent des effets de surchauffe du produit.

L'utilisation de ces dispositifs pour des applications de foisonnement ou d'émulsification d'ordre industriel implique aussi l'exploration de nouvelles plages de conditions opérationnelles ; plages qui s'éloignent de celles traditionnellement utilisées en microfluidique. En effet, la plupart des applications des microsystèmes jusqu'à présent ont impliqué l'utilisation de conditions très contrôlées telles que des débits très faibles de l'ordre de 0 à 1 $ml{\cdot}min^{-1}$ (Cubaud & Ho, 2004 ; Fu & Ma, 2015 ; Garstecki *et al.*, 2004 ; Haase, 2016) et des solutions ayant un caractère newtonien (Galindo-Rosales et al., 2013). Les

travaux de Laporte (2014) et de Gaillard (2016) ont permis des avancées dans l'exploration des conditions hydrodynamiques de la production des mousses avec des systèmes micro et millifluidique à des débits significativement plus élevés que ceux traditionnellement utilisés (allant même jusqu'à 400 ml·min^{-1}), mais il reste encore à élucider les mécanismes de formation des bulles, la typologie de l'écoulement diphasique en utilisant différentes formulations et les éventuels mécanismes de fractionnement des interfaces.

2.3 Géométries de dispositifs et leurs applications

Les premiers dispositifs microfluidiques proposés pour des écoulements multiphasiques étaient classifiés en trois groupes (figure 24) selon leur géométrie : T-junction, co-flow et flow-focusing (Pugh, 2016 ; Van Hoeve, 2011). La géométrie T-Junction, présentée parfois comme cross-flow (Pugh, 2016), correspond au cas de deux canaux se rencontrant à un angle de 90°. En conséquence, il est possible qu'un des fluides soit fortement ralenti par la paroi située devant lui. Dans la géométrie co-flowing, deux fluides se déplacent en parallèle à travers deux canaux concentriques. Un des fluides voyage par un canal intérieur, tandis que l'autre voyage à travers le canal extérieur. Les trois canaux finissent par se transformer en un seul canal et le cisaillement provoqué par le gradient de vitesse permet de détacher les bulles/gouttes formées par le fluide voyageant par le canal central. Enfin, un arrangement des canaux en croix est caractéristique de la géométrie flow-focusing. Un fluide voyage par deux canaux se faisant face tandis que l'autre fluide arrive par un canal à un angle de 90°.

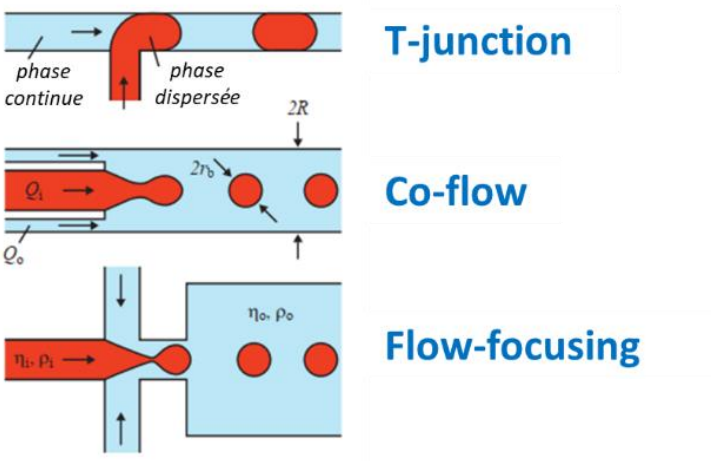


Figure 24. Classification des microsystèmes selon leur géométrie (van Hoeve, 2011).

Actuellement, un grand nombre de nouvelles géométries de plus en plus complexes sont proposées dans différentes applications et la classification des systèmes microfluidiques s'est élargie et complexifiée aussi en fonction de la configuration d'injection des fluides

(Haase, 2016 ; Mashaghi *et al.*, 2016 ; Pimenta & Alves, 2018 ; Seemann *et al.*, 2012 ; Zhu & Wang, 2017). La figure 25 présente une compilation de plusieurs géométries microfluidiques avec les configurations d'injection de fluides représentés par les flèches bleues et rouges. Un recueil exhaustif de plusieurs études utilisant ces géométries pour des applications micro et millifluidiques peut être trouvé dans Haase (2016)

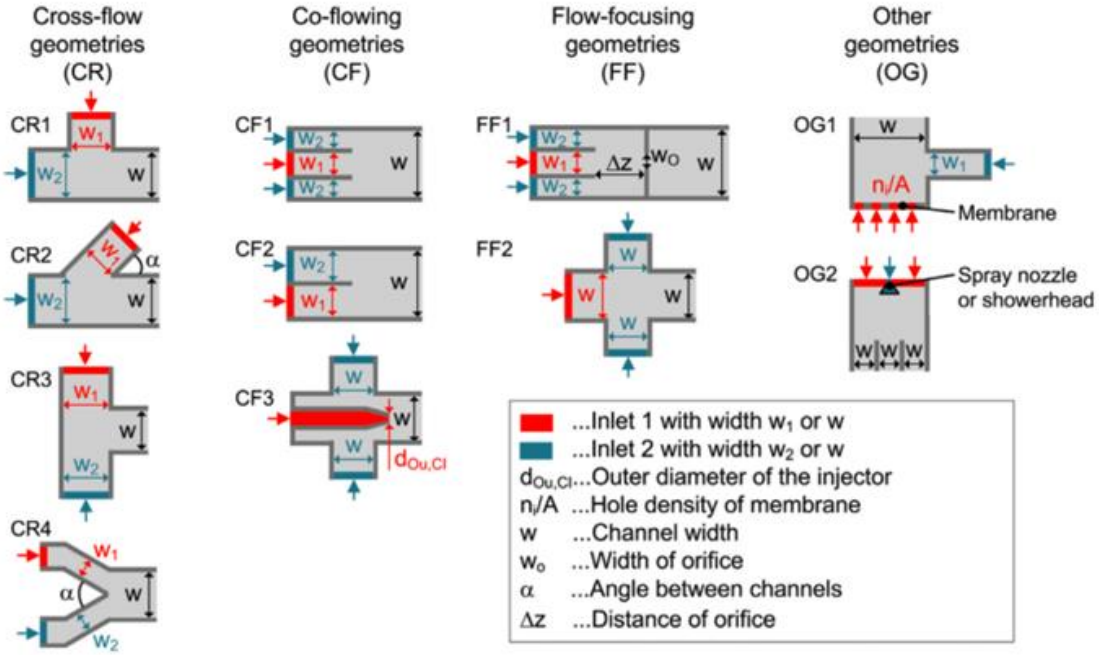


Figure 25. Géométries des microsystèmes et configurations d'injection des fluides rencontrés dans diverses applications micro/millifluidiques (Haase, 2016).

D'autres classifications ont également été proposées. Par exemple Zhang *et al.* (2017) présentent une classification des microsystèmes en fonction du principe de l'opération de mélange (figure 26). Chacune de ces structures présente une série d'avantages et de désavantages selon les conditions opératoires requises pour le procédé et aussi selon les coûts et complexité de fabrication.

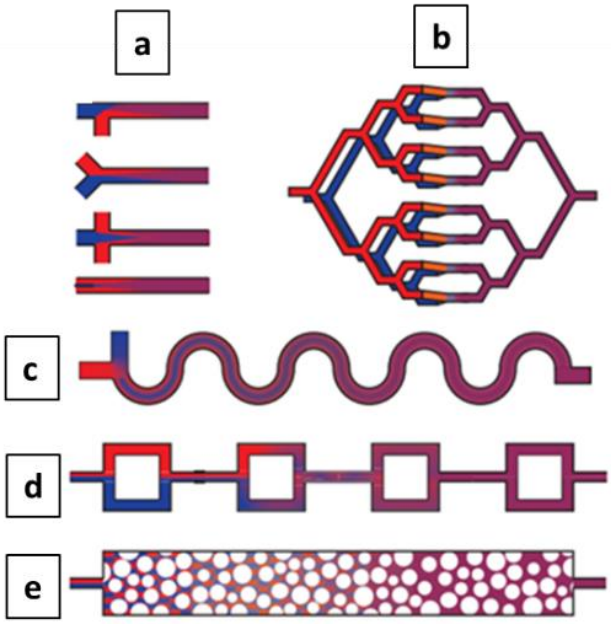


Figure 26. a) structures de contact simple **b)** structures multicouches **c)** structures hélicoïdales et incurvées **d)** structures divisées-recombinées **e)** structures statiques périodiques (Zhang *et al.*, 2017).

Il est ainsi évident que non seulement les paramètres opérationnels (comme les débits) et la formulation (comme la nature rhéologique des solutions) vont déterminer les domaines d'application de microsystèmes mais aussi la géométrie qui joue un rôle important dans le développement de nouvelles applications. Les travaux de Muijlwijk *et al.* (2016b) offrent une illustration de la richesse des applications des géométries microfluidiques. Ces auteurs ont utilisé des microsystèmes avec une géométrie Y-Junction pour la détermination presque instantanée (de l'ordre de quelques millisecondes) de la tension de surface des solutions de dodécyl sulfate de sodium (SDS) avec l'hexadécane (>99%) comme phase dispersée. En utilisant des techniques de visualisation, ils ont pu observer le détachement progressif d'une goutte à l'intérieur des microcanaux et relier ces mesures aux valeurs de la tension de surface. La figure 27 présente les résultats obtenus pour l'évolution de la tension de surface pour les solutions de SDS en utilisant la mesure microfluidique et aussi un tensiomètre à goutte. L'utilisation de la technique microfluidique a permis d'explorer la mesure de la tension de surface à des échelles de quelques millisecondes, des régions normalement inaccessibles avec les techniques traditionnelles. D'autres travaux ont également fait avancer l'étude des phénomènes interfaciaux avec l'utilisation de technologies microfluidiques (Cabral & Hudson, 2006 ; Hudson *et al.*, 2005 ; Martin & Hudson, 2009).

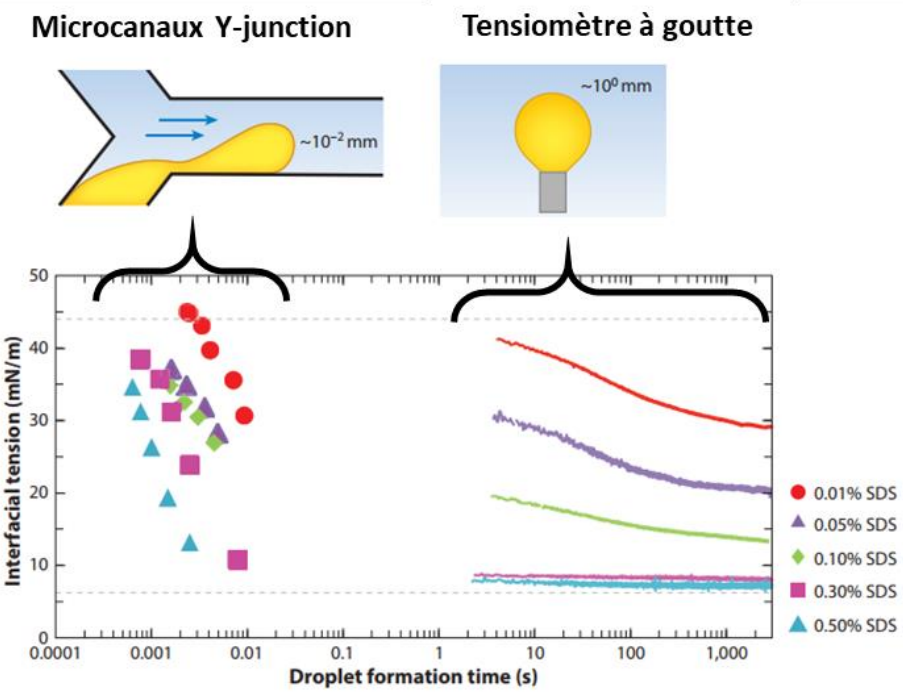


Figure 27. Détermination de la tension de surface avec une technologie microfluidique et avec la méthode de la goutte montante pour des solutions à base de SDS. Figure modifiée tirée de (Muijlwijk *et al.*, 2016b ; Berton-Carabin *et al.*, 2018).

Un autre exemple de l'utilisation de la géométrie d'un microsystème pour l'étude d'un phénomène physicochimique correspond aux travaux de détermination de la viscosité élongationelle dans (Galindo-Rosales *et al.*, 2013). Ces auteurs ont montré que la configuration cross-slot (arrangement des canaux en croix) serait appropriée pour la création des zones de stagnation susceptibles de donner lieu à des écoulements élongationnels. La figure 28 présente et compare plusieurs méthodologies permettant la caractérisation des propriétés élongationnelles. Les microcanaux de type cross-slot offrent la possibilité d'atteindre des régions inexplorées dans la caractérisation des propriétés élongationnelles. Ces dispositifs permettent en effet de caractériser les propriétés élongationnelles de fluides ayant des viscosités de cisaillement très faibles.

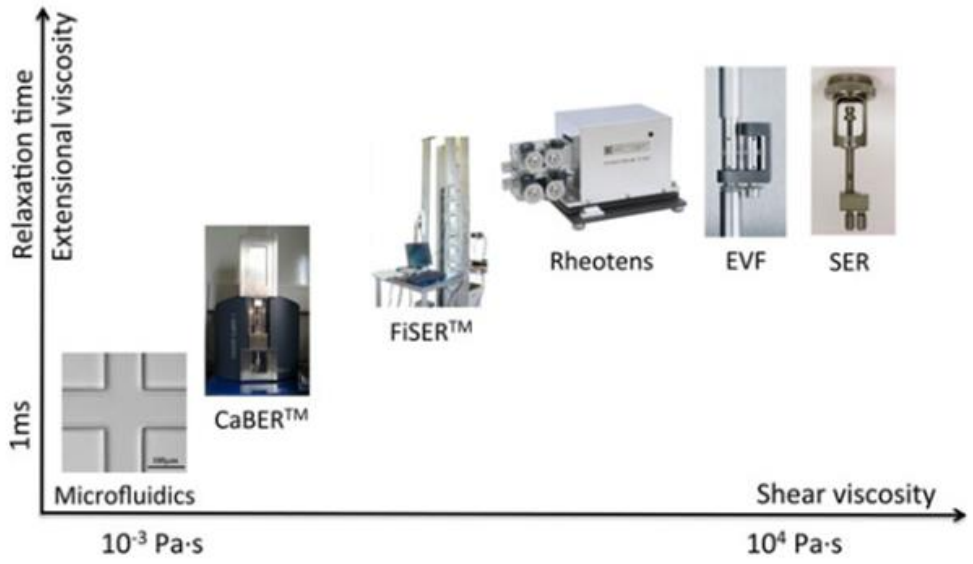


Figure 28. Schématisation de la zone d'action de divers dispositifs pour la mesure des propriétés élongationnelles des fluides (Galindo-Rosales *et al.*, 2013).

Finalement, la diversité des géométries dans les systèmes microfluidiques a aussi permis de développer des systèmes d'analyse pour l'étude en continu du fractionnement des polymères suivi de la mesure de la viscosité des fluides complexes (Nghe *et al.*, 2011). La figure 29 présente un schéma du dispositif étudié par ces auteurs.

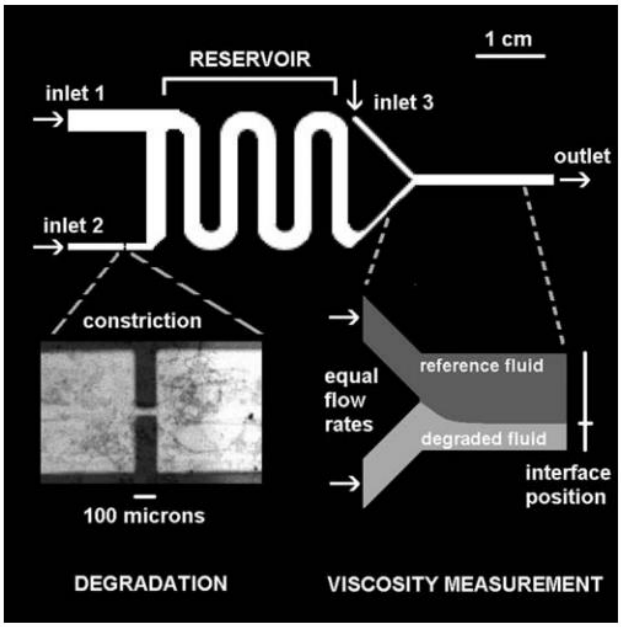


Figure 29. Station d'analyse composée par des microcanaux pour l'étude du fractionnement des polymères en solution et la détermination de la viscosité de fluides complexes (Nghe *et al.*, 2011).

Sur le principe, un rétrécissement (constriction) accélère fortement l'écoulement tout en créant une composante élongationelle importante, laquelle conduit finalement au fractionnement des polymères par les fortes contraintes mécaniques créées. Ensuite, dans l'étape de la mesure de la viscosité, un fluide de référence de viscosité connue (η_1) se déplace en co-écoulement avec le fluide à étudier (η_2). Si les débits sont similaires, il est possible de calculer la viscosité du fluide inconnu avec l'équation 11. La détermination de la largeur du canal occupée par chaque fluide (w) s'effectue simplement en utilisant des techniques d'imagerie.

$$\frac{\eta_1}{\eta_2} = \frac{w_1}{w_2} \tag{11}$$

La mesure de la viscosité dans les dispositifs microfluidiques s'avère particulièrement intéressante en raison des très petites tailles des canaux ; lesquelles permettent d'atteindre des taux de cisaillement très élevés tout en conservant un caractère laminaire pour l'écoulement. Ceci facilite les mesures de la viscosité de cisaillement des fluides fortement rhéofluidifiants dont l'identification précise du deuxième plateau newtonien, ce qui est difficilement possible avec un rhéomètre classique.

Tous ces exemples dénotent de la richesse des applications de la géométrie de microcanaux et en général des technologies microfluidiques. De nouvelles géométries sont constamment proposées afin d'étudier l'effet de la géométrie sur les écoulements multiphasiques et de mieux comprendre le rôle de ce paramètre sous différentes conditions. Ceci permettrait éventuellement d'intégrer des nouvelles connaissances dans le design et la conception de dispositifs performants pour des applications spécifiques.

2.4 Ecoulements diphasiques

2.4.1 Régimes d'écoulement

L'utilisation des écoulements multiphasiques a plusieurs avantages au niveau industriel tels que des mélanges améliorés et la prévention de l'encrassement des canaux par dépôt d'un des fluides à transporter. Dans les écoulements multiphasiques, deux fluides immiscibles sont mélangés et l'écoulement résultant peut acquérir différentes formes tels que des gouttes suspendues, des bouchons ou des films recouvrant les parois des conduits

(Günther & Jensen, 2006). La figure 30 présente un exemple des différentes configurations qui peuvent être adoptées dans un écoulement diphasique gaz-liquide dans un conduit.

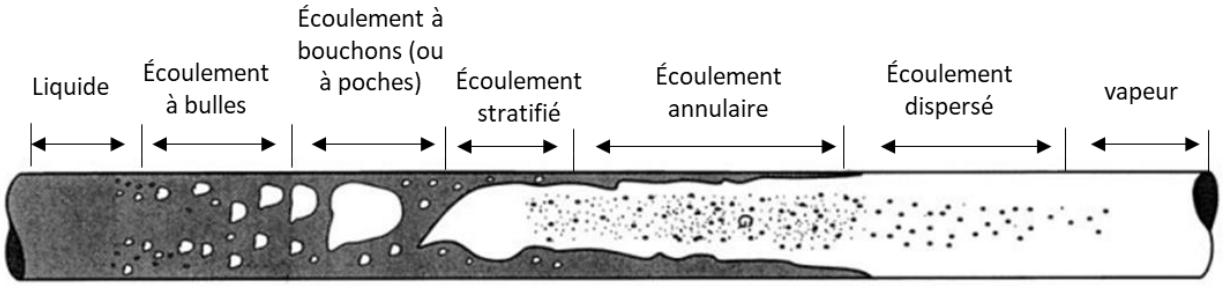


Figure 30. Configurations des écoulements dans un conduit. Schéma modifié de (Brennen, 2006).

Dans un écoulement à bulles, la phase dispersée se trouve finement répartie à l'intérieur de la phase continue. C'est pourquoi ce régime est aussi connu sous le nom de régime dispersé. Dans les écoulements à bouchons, des poches de gaz sont séparées par des bouchons liquides (Taitel *et al.*, 1978). Quand les débits de gaz sont trop importants, le gaz se déplace par le centre du conduit donnant lieu au régime annulaire. Finalement l'écoulement peut aussi s'inverser conduisant à un nouvel écoulement dispersé, mais dans ce cas c'est la phase continue qui devient la phase dispersée dans le deuxième fluide. Ces régimes sont une conséquence directe des paramètres du procédé tels que la température et les débits des fluides (Brennen, 2006 ; Günther & Kreutzer, 2009 ; Taitel *et al.*, 1978).

Dans le cas de canaux de diamètres compris entre 0,01 et 3 mm, les configurations d'écoulement peuvent être différentes de celles observées à macro-échelle. Par exemple, dans les cas de macro conduits, il y a souvent une distinction entre conduits verticaux ou horizontaux. Dans les microsystèmes, la gravité ayant un effet négligeable (nombre de Bond petit), cette distinction est rarement rencontrée (Cheng, 2016). La figure 31 montre des exemples pour des écoulements diphasiques à l'intérieur des canaux de petite taille. Les écoulements de la figure 31a correspondent à des écoulements dans des conduits capillaires (Kreutzer *et al.*, 2005). La figure 31b présente à son tour des visualisations de l'écoulement diphasique eau-air dans des microcanaux ayant des tailles de 100 µm de diamètre interne (Cheng, 2016).

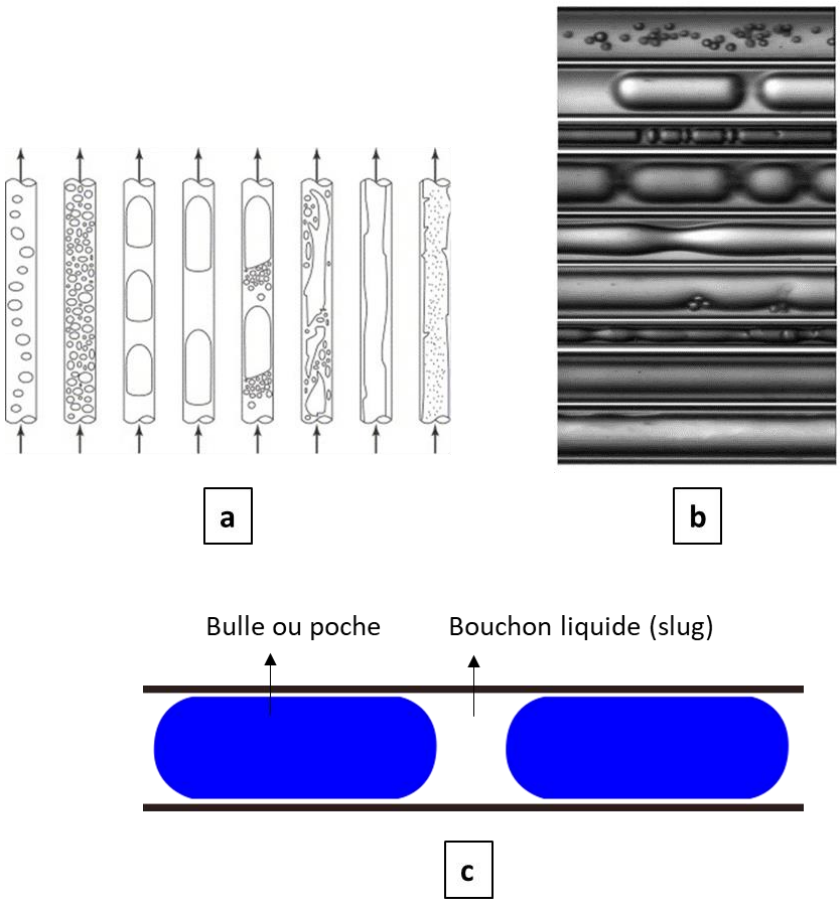


Figure 31. Régimes d'écoulement dans des canaux submillimétriques **a)** schématisation des régimes pour des conduits capillaires (Kreutzer *et al.*, 2005) **b)** photographies des régimes dans des microcanaux circulaires (Cheng, 2016) **c)** schématisation d'un écoulement de Taylor.

Les configurations observées correspondent de façon générale à celles décrites auparavant pour les macroconduites. Un cas particulier dans les systèmes miniaturisés correspond au régime à bouchon (ou poches) qui peut être trouvé dans la littérature sous plusieurs noms (Taylor flow, bubble train flow, plug flow, slug flow, segmented flow, intermittent flow) (Abadie, 2013 ; Kreutzer *et al.*, 2005 ; Yue *et al.*, 2009). Dans les microcanaux, la particularité observée est que les bulles allongées occupent la totalité du conduit (figure 31c) et qu'elles divisent donc la continuité de l'écoulement en segments (Garstecki *et al.*, 2005). La bulle formée reçoit ainsi le nom de poche tandis que le liquide qui sépare deux bulles est dénommé bouchon (slug en anglais) (Fitremann, 1983 ; Ghiaasiaan, 2008). Une compilation de corrélations existantes pour la taille de bouchons et de poches de ce type d'écoulement peut être trouvée dans (Haase, 2016).

L'étude des écoulements diphasiques implique donc la détermination des limites entre les différents régimes (Taitel *et al.*, 1978). Ces résultats sont présentés en forme de

cartographies construites par exemple sur la base de la vitesse superficielle du liquide en fonction de la vitesse superficielle du gaz dans les cas des écoulements diphasiques gaz-liquide. Triplett *et al.* (1999) ont déterminé des limites pour un écoulement diphasique air-eau dans des conduits ayant des diamètres légèrement au-dessus de 1mm. La figure 32 présente la cartographie développée ainsi que la superposition des visualisations des régimes d'écoulement.

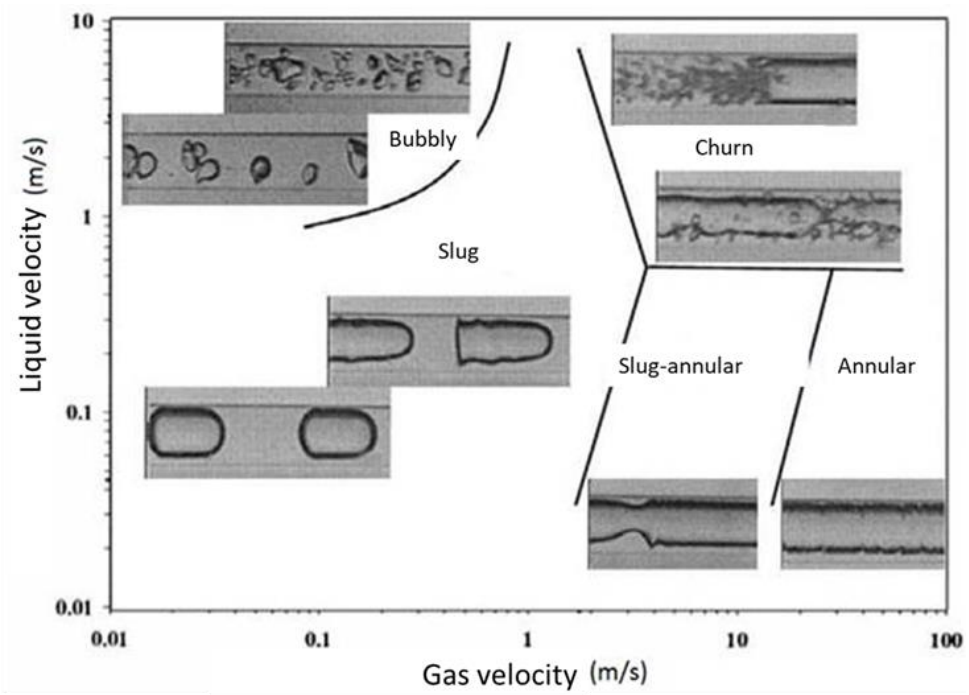


Figure 32. Carte d'écoulement soulignant les limites entre les différents régimes d'écoulement pour un système eau-air à l'intérieur des canaux de section circulaire de 1mm de diamètre (Triplett *et al.*, 1999). Bubbly (dispersé), slug (à poches), churn (agité), slug-annular (slug-annulaire) and annular (annulaire).

La détermination des cartes d'écoulement est une démarche expérimentale qui se fait systématiquement car elle est affectée par les conditions dans lesquelles elle est élaborée (formulation et paramètres du procédé). Par exemple, (Cubaud & Ho, 2004) ont effectué des déterminations des régimes d'écoulement pour le même système air-eau, mais en utilisant des dispositifs microfluidiques ayant des canaux de section carrée avec des diamètres hydrauliques de 200 et 525 µm. Les configurations des régimes ainsi que la carte d'écoulement de ces expériences sont présentées dans la figure 33. Malgré le fait d'avoir des régimes similaires à ceux préalablement décrits, les limites présentées dans leur cartographie diffèrent amplement de ceux trouvés par (Triplett *et al.*, 1999) dans la figure 32.

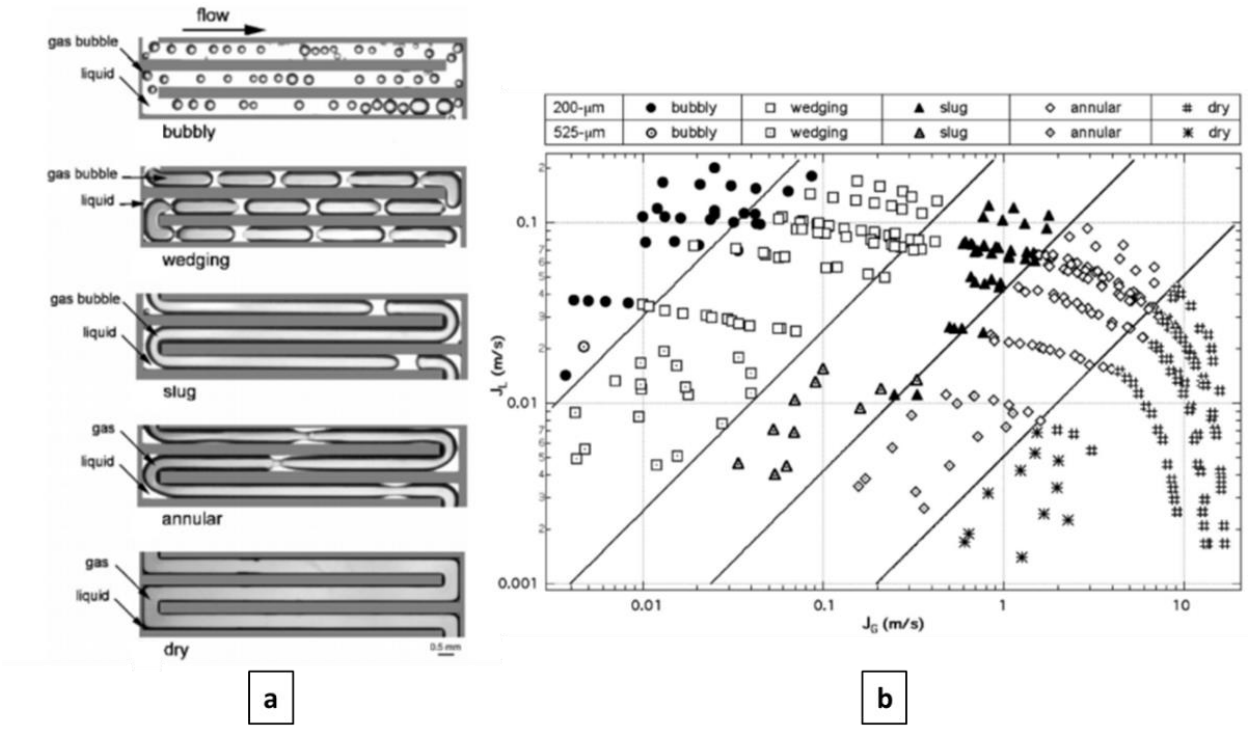


Figure 33. Ecoulement diphasique à l'intérieur des microcanaux. **a)** photographies des configurations des régimes d'écoulement **b)** carte d'écoulement et limites de régimes d'écoulement pour un système air-eau. Figures tirées de (Cubaud & Ho, 2004).

2.4.2 Détermination de la fraction de vide dans le microcanal

Dans les écoulements diphasiques, un autre paramètre fondamental à déterminer est la fraction de vide. Ce paramètre permet de calculer d'autres variables comme les coefficients de transfert de chaleur, la chute de la pression, les vitesses moyennes de phases, etc (Ghosh *et al.*, 2016). Pour les microcanaux, Serizawa *et al.* (2002) ont calculé une approximation de la fraction de vide à partir d'une analyse d'image de l'écoulement en supposant des formes symétriques pour les bulles. La fraction de vide peut aussi être estimée théoriquement à partir des vitesses superficielles des fluides (Ghosh *et al.*, 2016). Il existe aussi dans la littérature, plusieurs corrélations et méthodologies pour la détermination de la fraction de vide compilées dans (Coddington & Macian, 2002 ; Kawahara *et al.*, 2002 ; Xiong & Chung, 2007)

2.5 Forces impliquées

Dans les systèmes en écoulement, l'interaction complexe entre les forces interfaciales, gravitationnelles, visqueuses et inertielles est responsable des nombreuses combinaisons écoulement/distribution de phases observées ; l'ensemble doit être pris en compte dans le développement de modèles d'écoulement (Günther & Kreutzer, 2009). Ces mêmes auteurs ont aussi signalé que grâce aux régimes laminaires développés dans les applications

conventionnelles de la microfluidique et la domination des forces interfaciales, les interfaces gaz-liquide et liquide-liquide sont en général de forme très régulière. L'interaction de ces forces est souvent présentée sous forme de nombres adimensionnels. Ce type de représentation permet d'étendre les conclusions tirées à petite échelle à des processus d'une plus grande envergure, par exemple pour des applications industrielles futures.

L'effet des forces gravitationnelles dans les microécoulements est en général négligeable, mais il est pris en compte surtout dans les macroécoulements (écoulements en macroconduits). Cet effet est présenté sous la forme du nombre adimensionnel de Bond (Bo) :

$$Bo = \frac{\Delta \rho g d_h^2}{\sigma} \tag{12}$$

Dans la figure 34, Günther et Jensen (2006) récapitulent les résultats publiés par divers auteurs concernant la valeur du nombre Bond dans des applications qui relèvent du domaine de la microfluidique. Il est donc évident que le nombre de Bond est très faible dans les écoulements à échelles submillimétriques. En conséquence les forces gravitationnelles sont souvent négligées à ces échelles.

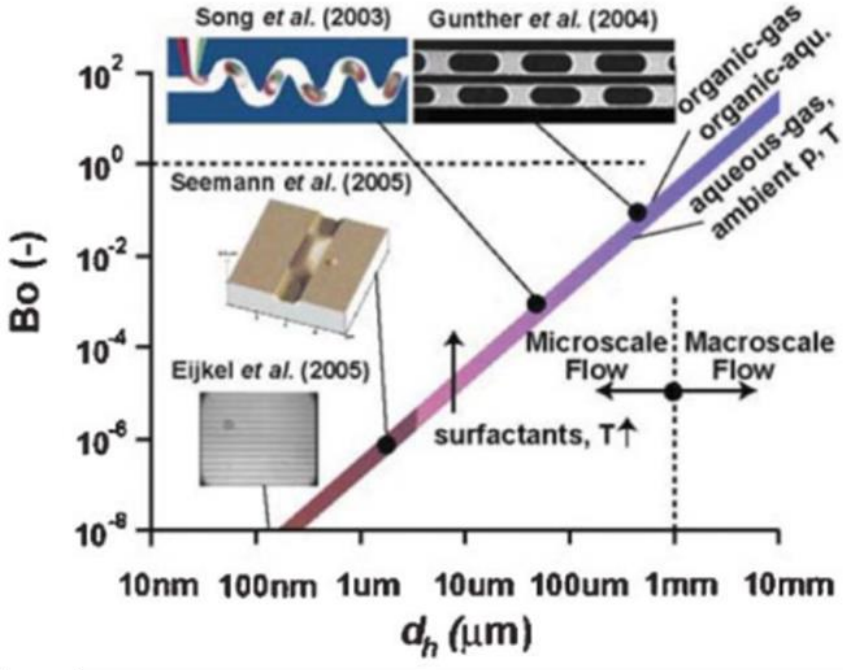


Figure 34. Ordre de grandeur du nombre de Bond en fonction des différentes échelles. Tirée de (Günther & Jensen, 2006).

La dynamique de l'écoulement multiphasique à l'intérieur des dispositifs microfluidiques est généralement caractérisée de manière satisfaisante en termes de nombres sans dimension comme les nombres de Reynolds et le nombre capillaire (Stone *et al.*, 2004). Le nombre capillaire (*Ca*) représente le rapport entre les forces visqueuses et forces interfaciales :

$$Ca = \frac{U\mu}{\sigma} \tag{13}$$

Le nombre de Weber (*We*), quant à lui, met en relation l'équilibre entre les forces inertielles et les forces interfaciales. Celui-ci est un nombre amplement utilisé dans la description du fractionnement des gouttes dans les procédés d'émulsification où les écoulements turbulents sont les responsables du fractionnement (Schubert, 1997) :

$$We = \frac{\rho U^2 d_h}{\sigma} \tag{14}$$

Le nombre de Reynolds (*Re*) est un nombre sans dimension largement connu dans les milieux scientifiques. Il indique la contribution des forces d'inertie par rapport aux forces visqueuses (équation 15). Il peut aussi être représenté comme le rapport entre les nombres de Weber et capillaire $Re = We/Ca$ (Elvira *et al.*, 2013 ; Mary *et al.*, 2013 ; Squires & Quake, 2005)

$$Re = \frac{\rho U d_h}{\mu} \tag{15}$$

La figure 35 montre la variation de la contribution des forces gravitationnelles, visqueuses et inertielles par rapport à la force interfaciale (nombres adimensionnels de Bond, capillaire et Weber respectivement) en fonction des variations de la vitesse superficielle de la phase dispersée et du diamètre hydraulique du canal à pression et température ambiantes (Günther & Jensen, 2006). Le plan jaune indique les conditions dans lesquelles les forces considérées s'équilibrent. Les conditions dans lesquelles les forces interfaciales dominent les autres trois forces correspondent aux conditions de faibles vitesses et des petites tailles de canal, c'est-à-dire, les conditions sous le plan jaune (Günther & Kreutzer, 2009). A des vitesses de l'ordre de quelques mètres par seconde, les forces d'inertie semblent avoir une contribution plus importante que les forces visqueuses et gravitationnelles (Ajaev & Homsy, 2006 ; Günther & Kreutzer, 2009 ; Ory *et al.*, 2000). Dans ces conditions, les bulles/gouttes

sont plus petites que le diamètre hydraulique du canal (Günther & Jensen, 2006). La détermination de l'importance relative des forces contribue à une meilleure classification des études expérimentales qui sont continuellement proposées, mais aussi permet d'enrichir les lignes directrices dans la conception et le design de dispositifs microfluidiques visant des objectifs particuliers (Günther & Kreutzer, 2009).

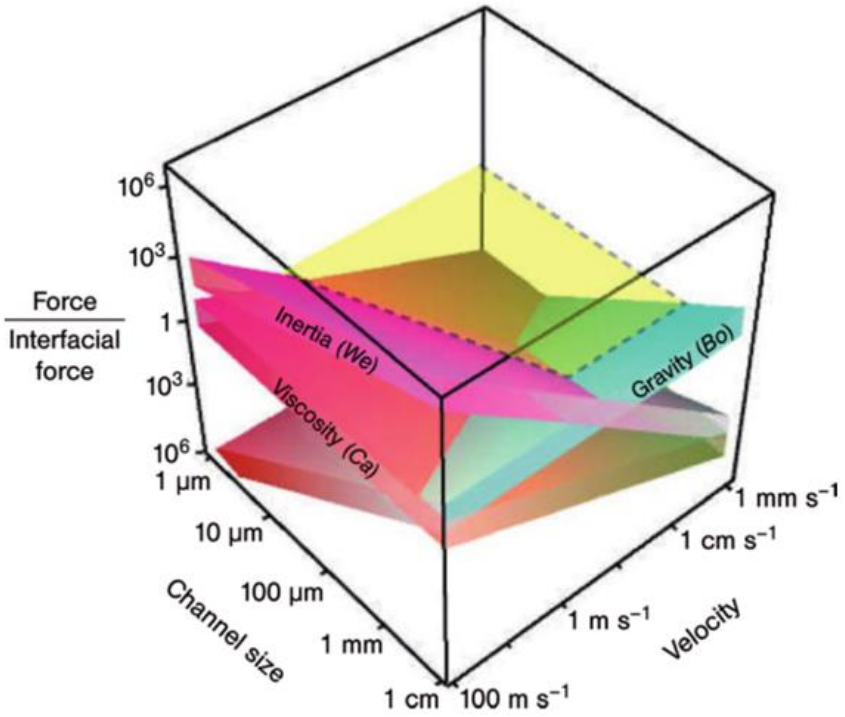


Figure 35. Contribution des différentes forces aux phénomènes de l'écoulement en fonction de la vitesse et de la taille du canal pour des écoulements multiphasiques à l'intérieur des microcanaux. L'axe vertical représente le rapport entre la force considérée (signalée sur la tranche des enveloppes) et les forces interfaciales. Figure tirée de (Günther & Kreutzer, 2009).

Dans les écoulements multiphasiques, il faut toujours préciser par rapport à quel fluide ces nombres adimensionnels sont calculés. Habituellement, ils sont calculés par rapport au fluide qui contribue le plus au comportement de l'écoulement observé (Christopher & Anna, 2007) ce qui est en général, et surtout pour le cas de mousses, le fluide externe ou phase continue.

Un autre nombre adimensionnel pertinent pour le fractionnement de la phase dispersée dans les systèmes colloïdaux est le nombre d'Ohnesorge (*Oh*). Il est utilisé pour décrire la dynamique de l'instabilité Rayleigh-Plateau rencontré dans l'étude du fractionnement des filaments liquides (Driessen *et al.*, 2013 ; Eggers & Villermaux, 2008). Ce nombre représente un rapport entre les phénomènes visqueux et capillaires (Driessen *et al.*, 2013) et il est défini par l'équation 16 où R_0 représente le rayon du filament liquide (goutte étirée). D'autres

paramètres signalés comme contribuant à la description des phénomènes de l'écoulement multiphasique dans les dispositifs microfluidiques sont le rapport des débits et le rapport de la viscosité de la phase dispersée et la phase continue (Anna 2016 ; Grace, 1982 ; Fu & Ma, 2015)

$$Oh = \frac{\mu}{\sqrt{\rho \sigma R_0}} \tag{16}$$

Chhabra (2006) affirme qu'il est également nécessaire d'introduire au moins un nombre adimensionnel qui intègre une mesure des forces élastiques lors de l'utilisation des fluides viscoélastiques. Deux nombres adimensionnels sont souvent rencontrés dans la littérature à cet effet : le nombre de Weissenberg (*Wi*) présenté dans l'équation 17 et le nombre d'élasticité (*EI*) présenté dans l'équation 18 (Galindo-Rosales *et al.*, 2013 ; Nghe *et al.*, 2011).

$$Wi = \dot{\varepsilon} \tau_{rex} \tag{17}$$

$$EI = \frac{Wi}{Re} = \frac{\mu \tau_{rex}}{\rho l^2} \tag{18}$$

Où ρ correspond à la masse volumique du fluide, τ_{rex} est la constante de relaxation du polymère, μ représente la viscosité dynamique, l la dimension caractéristique et $\dot{\varepsilon}$ correspond au taux de déformation, lequel est égal au taux de cisaillement dans un écoulement de cisaillement et au taux d'élongation pour un écoulement élongationnel (Nghe *et al.*, 2011).

Dans les écoulements macroscopiques, le nombre *EI* est très faible (*EI*<<1), mais il devient important aux échelles microscopiques (*EI*>1) (Nghe *et al.*, 2011 ; Pipe & McKinley, 2009 ;). Les systèmes miniaturisés ont donc permis d'étudier des dimensions de l'espace *Wi-Re* auparavant inaccessibles (Rodd *et al.*, 2005). Ceci a permis à son tour d'accéder à des instabilités viscoélastiques qui peuvent conduire à l'établissement d'un nouveau type de turbulence à très faible nombre de Reynolds généralement *Re* < 1 et liées aux contraintes normales, *la turbulence élastique* (Copeland *et al.*, 2017 ; Galindo-Rosales *et al.*, 2014 ; Groisman & Steinberg, 2000 ; Larson, 2000 ; Lieu, 2014 ; Searl, 2017 ; *Sousa et al.*, 2018). La figure 36 montre deux applications de la turbulence élastique : dans une étude sur le transfert de chaleur par convection à Re < 1en utilisant une solution à base de polymères

(figure36a) et dans une application d'émulsification à des faibles Reynolds, Re < 1 (figure 36b).

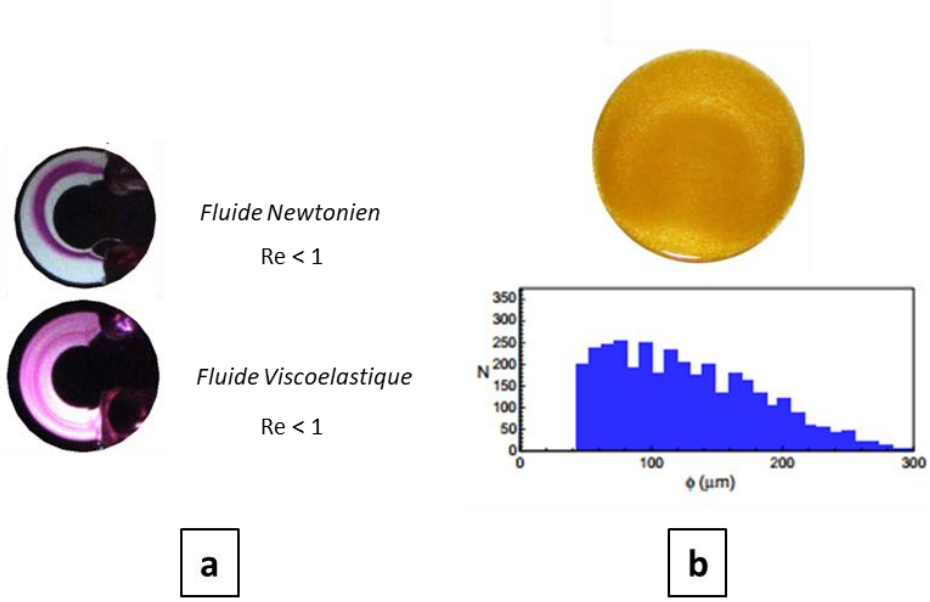


Figure 36. a) transfert intensifié par turbulence élastique (Copeland *et al.*, 2017) **b)** fractionnement des gouttes en utilisant la turbulence élastique dans une application d'émulsification (Poole *et al.*, 2012).

2.6 Formation de gouttelettes et des bulles à l'intérieur des microcanaux

Même s'il existe plusieurs géométries microfluidiques, les mécanismes de formation des bulles et gouttes à l'intérieur de ces dispositifs présentent des similitudes pour la plupart de ces géométries (Anna, 2016). Trois régimes distincts, réunis dans la figure 37, sont identifiés dans la genèse de bulles avec les microcanaux : squeezing, dripping and jetting (Anna, 2016 ; Pugh, 2016). Dans les recherches microfluidiques, les forces visqueuses constituent communément l'une des forces dominantes dans la formation des bulles ou gouttes (Utada *et al.*, 2007 ; Wang *et al.*, 2013a ; Zhang *et al.*, 2014, Fu & Ma, 2015). En conséquence, le nombre capillaire, rapport des forces de rupture (forces visqueuses) et des forces de conservation (tension interfaciale), est le paramètre utilisé pour décrire la formation des bulles et gouttes dans les écoulements diphasiques en microfluidique.

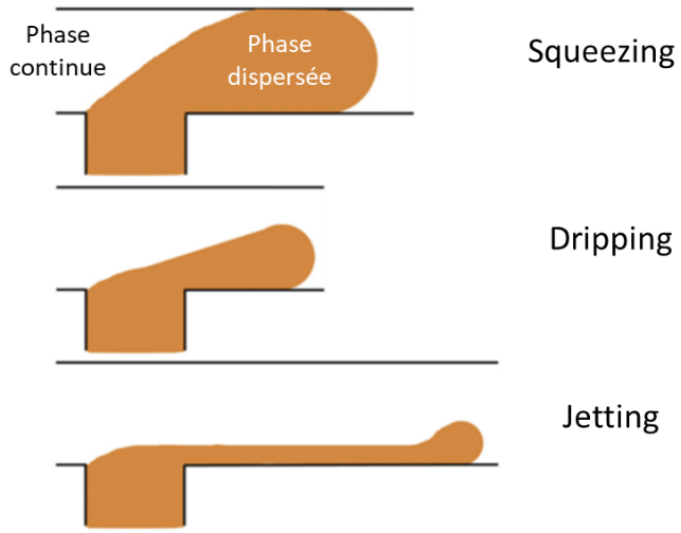


Figure 37. Régimes de formation de bulles ou gouttes dans la géométrie T-junction. (Muijlwijk *et al.*, 2016a).

A de faibles nombres capillaires ($Ca < 0{,}01$), la genèse des bulles/gouttes suit le régime dit « squeezing » qui est caractérisé par l'obstruction de la phase continue liquide (Anna, 2016). Le liquide ne pouvant circuler qu'à travers les films et gouttières entre la bulle et les parois va créer une pression locale autour de la bulle. Ces pressions conduiront finalement au détachement des bulles (Garstecki *et al.*, 2006). Les bulles générées à partir de ce régime occupent la totalité du canal et sont décrites comme un écoulement confiné (Fu & Ma, 2015). Ce type de bulles est aussi rencontré dans la littérature sous le nom de bulles de Taylor et la configuration du train de bulles est décrite comme un écoulement à poches ou à bouchons (slug régime), comme décrit précédemment (Fu & Ma, 2015 ; Abadie, 2013).

Une augmentation du nombre capillaire ($Ca > 0{,}01$) conduit à d'autres régimes de formation des bulles qui sont souvent décrits comme dripping et jetting (Anna, 2016). Ces régimes sont souvent traités comme non-confinés en raison des tailles des bulles plus petites que les canaux où elles sont formées (Fu & Ma, 2015). D'après Anna (2016), dans ces régimes, des filaments du fluide de la phase dispersée, formés lors de la rencontre avec l'autre fluide, sont fractionnés par des instabilités dites absolues (dripping) ou convectives (jetting). Au-dessus d'un nombre capillaire égal à 0,1 (Anna, 2016 ; Amaya-Bower & Lee, 2011 ; Herrada *et al.*, 2013), c'est le régime jetting qui va complètement gouverner la formation des bulles. Dans ce régime les tailles de bulles ont tendance à être moins uniformes puisque l'instabilité est conduite le long du filament et donc le point de détachement n'est pas stationnaire (Utada *et al.*, 2007 ; Utada *et al.*, 2008). Une illustration de l'utilisation du nombre capillaire pour la description des régimes de formation de gouttes dans les

microcanaux sont les travaux de Cubaud et Mason (2008). La figure 38 montre les différents régimes de formation de gouttes que ces auteurs ont établi en fonction des nombres capillaires des deux phases de l'écoulement où Ca_1 correspond à la phase continue (glycérol) et Ca_2 à la phase dispersée (huile de silicone Polydiméthylsiloxane).

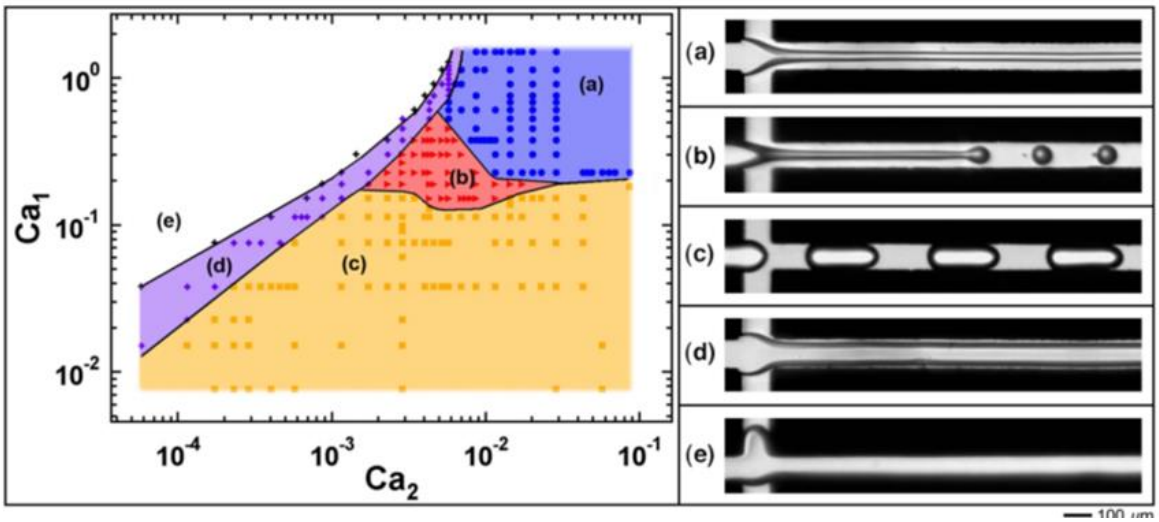


Figure 38. Régimes de formation de gouttelettes dans une géométrie flow-focusing et cartographie en fonction des nombres capillaires des deux fluides pour le système glycérol- huile de silicone Polydiméthylsiloxane **a)** threading **b)** jetting **c)** dripping **d)** tubing **e)** viscous displacement. Tirée de (Cubaud & Mason (2008).

La taille de bulles/gouttes formées est souvent modélisée en fonction du nombre capillaire. Pour certaines conditions d'opération, surtout dans le cas du régime jetting où les forces inertielles peuvent être significatives, d'autres nombres adimensionnels tels que le nombre de Reynolds ou le rapport des débits sont intégrés dans les modèles de description de la taille des bulles. Fu et Ma (2015) offrent une révision générale de plusieurs modèles expérimentaux décrivant la taille des bulles au moment de leur formation en fonction des rapports des forces qui interviennent (représentées par des nombres adimensionnels).

2.7 Déformation et fractionnement des interfaces

2.7.1 Premiers travaux

Les premiers travaux qui ont abordé la question du fractionnement des interfaces ont été les recherches menées par Taylor (1934) et Rayleigh (1878). Rayleigh (1878) a étudié l'équilibre entre les forces capillaires et inertielles qui rend un fil cylindrique instable provocant une rupture en plusieurs gouttelettes. Quant à Taylor (1934), ses travaux étaient axés principalement sur la déformation de gouttes dans des écoulements élongationnels et de

cisaillement. Il a décrit la déformation des gouttes par un rapport de déformation et a introduit le nombre capillaire dans la caractérisation de la déformation et rupture des gouttes.

Un des travaux des plus récents qui a fortement marqué l'étude de systèmes dispersés est celui de Grace (1982). Il a créé des courbes maîtresses pour le fractionnement des gouttes dans des écoulements de cisaillement mais aussi élongationnels sur une large gamme de rapports de viscosité. La figure 39a montre les fractionnements schématisés dans ces deux types d'écoulement tandis que la figure 39b présente les courbes délimitant le fractionnement des gouttes développées originalement par Grace (1982). Les courbes ont été élaborées à partir d'un nombre capillaire de la goutte (équation 19) en fonction du rapport des viscosités des phases impliquées (équation 20). Il convient de signaler que ces travaux ont été développés sur la base de l'étude d'une goutte isolée.

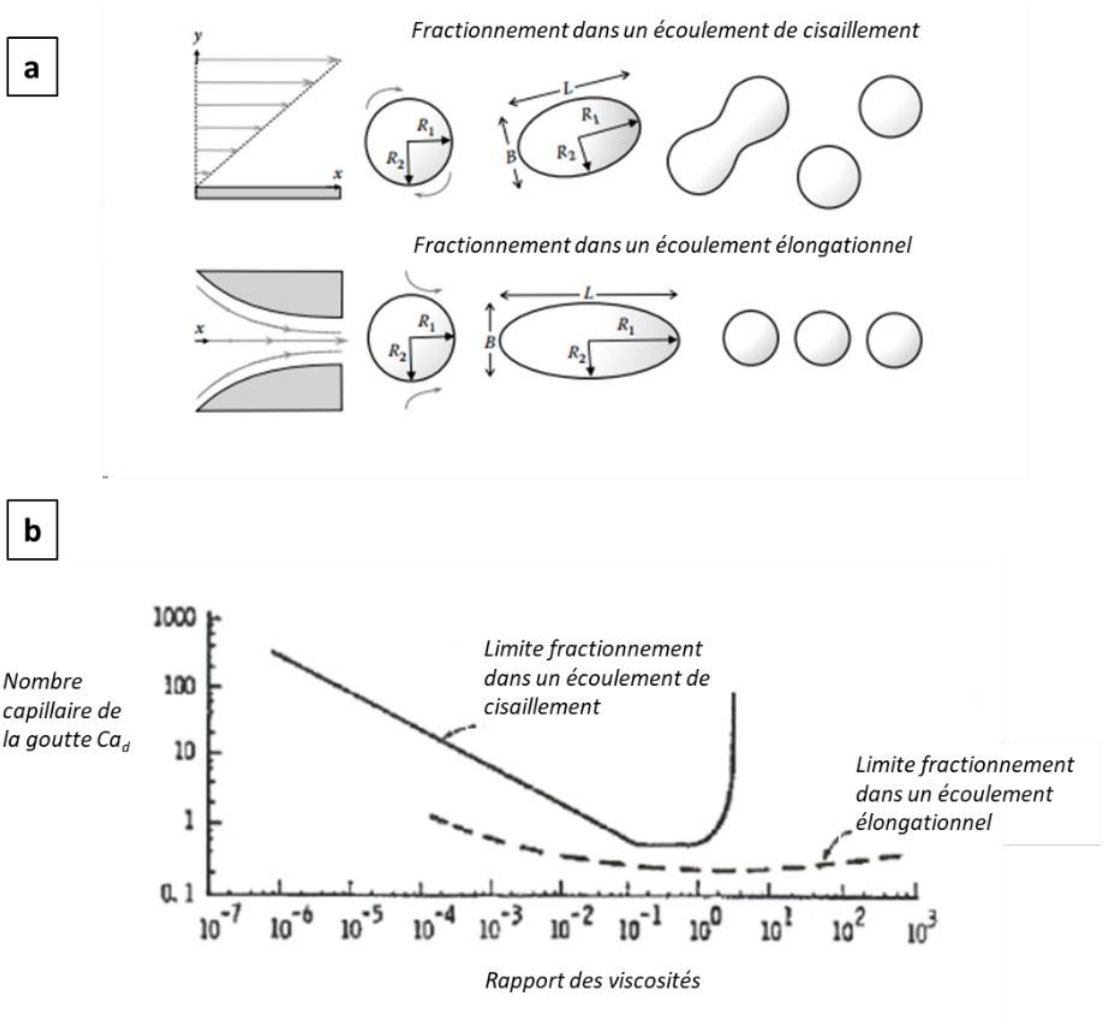


Figure 39. a) écoulements schématisés (Rayner & Dejmek, 2015) **b)** Courbes maîtresses originales présentées par Grace pour un écoulement de cisaillement et un écoulement élongationnel (Grace 1982). Le rapport des viscosités présenté est le rapport de la viscosité de la phase dispersée sur celle de la phase continue (μ_d/μ_c).

$$Ca_b = \frac{\mu_L \dot{\gamma} d_b}{2\sigma} \quad (19)$$

$$\delta = \frac{\mu_d}{\mu_c} \quad (20)$$

D'autres auteurs ont continué à enrichir les travaux de Grace (1982) en développant des courbes de fractionnement pour différents types d'écoulement (Bentley & Leal, 1986). La figure 40a présente différents types d'écoulement. α étant ici un paramètre qui décrit le type d'écoulement et qui représente une mesure du rapport entre le taux de déformation et la vorticité dans le flux non perturbé (Stone *et al.*, 1986). α varie entre α = +1, pour un écoulement hyperbolique ou élongationnel, et α = -1 pour un écoulement purement rotationnel. α = 0 correspond à un écoulement de cisaillement simple. D'après Stone *et al.* (1986), ce sont les écoulements caractérisés par α > 0 qui donnent les plus grandes déformations et sont donc appelés écoulements « forts ». La figure 40b présente les différentes courbes correspondant aux écoulements de la figure 40a. Quelques auteurs présentent la courbe de Grace en fonction du nombre de Weber critique plutôt que du nombre capillaire critique.

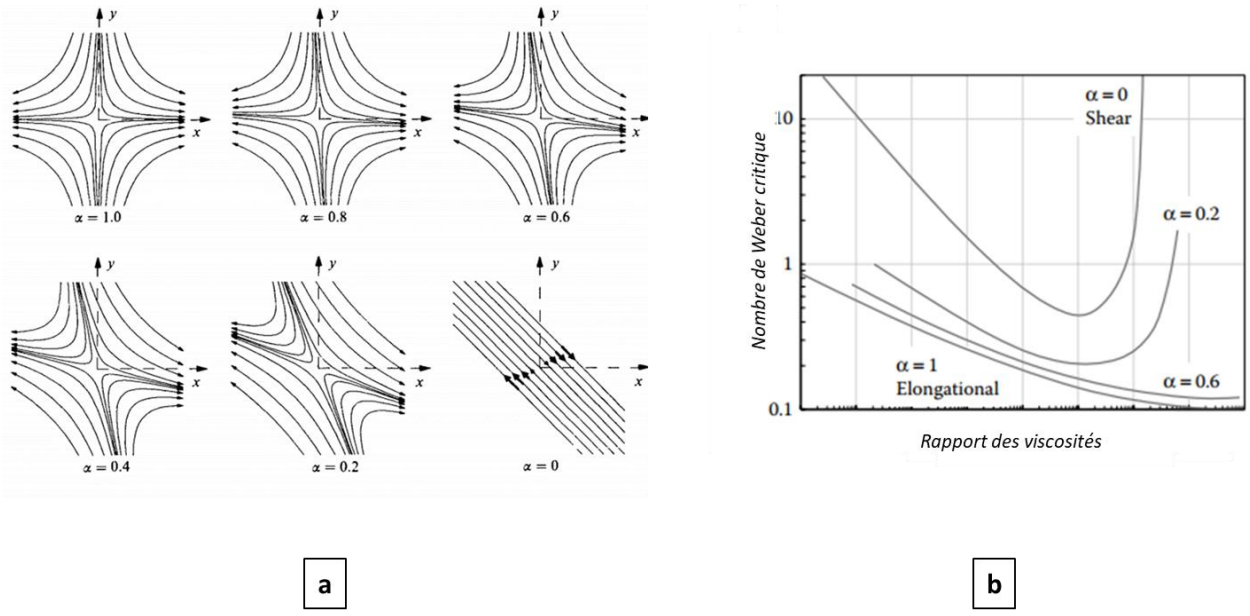


Figure 40. a) représentation des différents types d'écoulements (Stone *et al.*, 1986) **b)** courbes de fractionnement des gouttes à différentes conditions d'écoulement (Rayner & Dejmek, 2015). Le rapport des viscosités est μ_d/μ_c.

Les travaux de Grace (1982) ont permis de faire avancer les connaissances sur l'opération de dispersion. Ils ont eu une application directe dans les domaines des solutions et des polymères fondus à haute viscosité destinés à la production de fibres, de films et de plastiques. Ils ont aussi été pertinents pour les systèmes dispersés comme les émulsions. Bien qu'originalement développés pour des systèmes dispersés liquide-liquide, ils ont été également extrapolés aux systèmes dispersés gaz-liquide (Müller-Fischer *et al.*, 2008).

2.7.2 Le cas des microcanaux

Après leur formation, les bulles/gouttes peuvent subir des déformations et même du fractionnement à l'intérieur des dispositifs micro et millifluidiques selon les conditions du procédé. Link *et al.* (2004) se sont par exemple intéressés au fractionnement des gouttes selon la géométrie du dispositif (figure 41a). Ils ont utilisé une série de canaux avec une géométrie en T afin de fractionner davantage les bulles. De façon similaire, Gaillard (2016) a évalué pour les bulles, l'effet sur le fractionnement d'une série de constrictions et d'élargissements successifs dans un dispositif millifluidique (figure 41b).

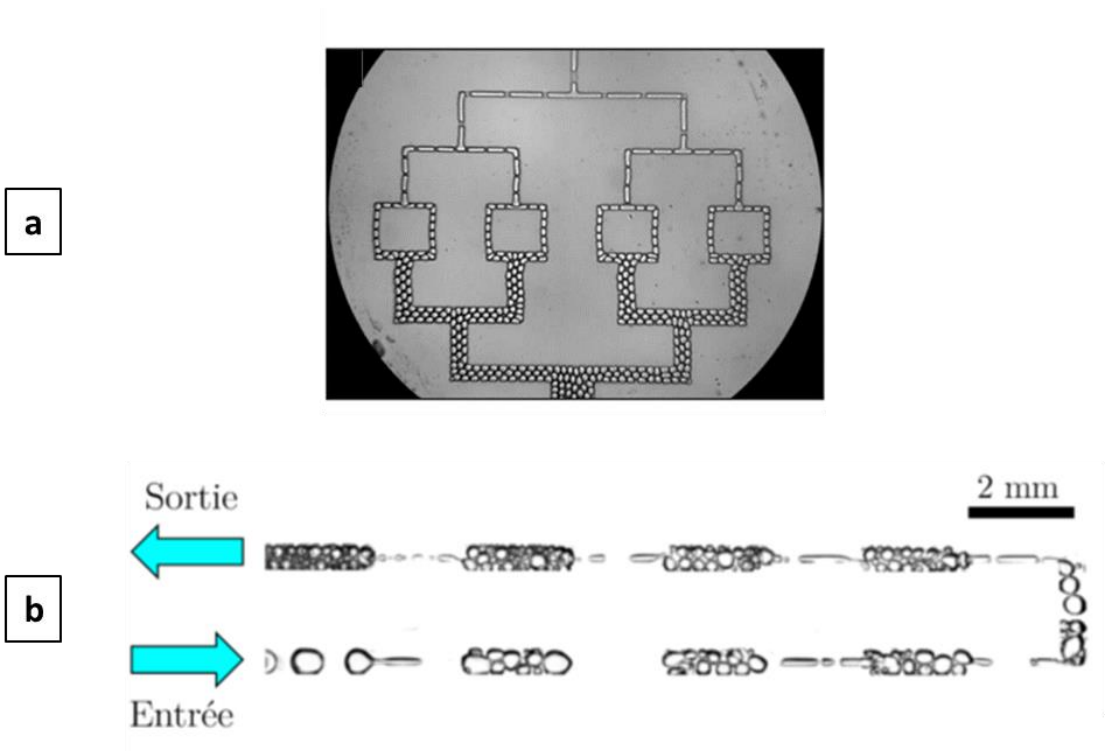


Figure 41. Déformation des interfaces le long d'un dispositif microfluidique **a)** arrangements de microcanaux avec géométrie T-junction pour fractionner des gouttes (Link *et al.*, 2004) **b)** constrictions-élargissements successifs pour fractionner des bulles (Gaillard, 2016).

Il est donc évident que les interfaces peuvent continuer à se déformer voire se fractionner dans les dispositifs milli et microfluidique en faisant varier des paramètres du procédé comme la géométrie des dispositifs et les débits. Il est alors essentiel de comprendre non seulement les mécanismes de formation de bulles/gouttes, mais aussi les mécanismes de déformation et fractionnement de ces dispersions le long des microcanaux, voire dans l'ensemble d'une installation comportant divers micro et macro conduits. Un des enjeux dans ce cas pourrait être d'identifier les paramètres du procédé qui favoriseraient le fractionnement dans les microcanaux. Il serait aussi d'importance capitale de comprendre les mécanismes possibles impliqués dans ces fractionnements.

2.7.3 Mécanismes de déformation des interfaces

Les différents travaux sur des systèmes dispersés menés au cours de plusieurs décennies ont conduit à l'identification progressive et systématique de plusieurs mécanismes de rupture des interfaces dans des conditions d'écoulement précises dans différentes applications de mélange et dispersion. La figure 42 est une représentation schématique des principaux mécanismes de fractionnement dans le domaine de dispersion de systèmes colloïdaux.

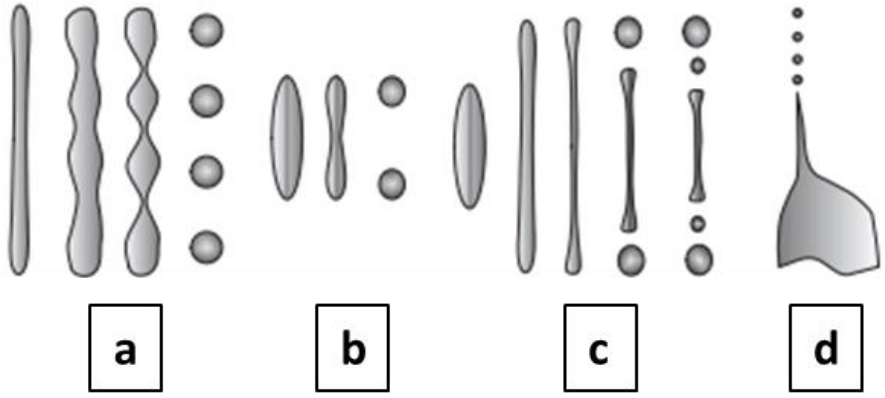


Figure 42. Schéma des mécanismes de fractionnement des interfaces **a)** fractionnement capillaire **b)** necking ou fractionnement binaire **c)** end-pinching **d)** tip-streaming. Tirée de (Roisman & Tropea, 2017).

Fractionnement capillaire

Les écoulements élongationnels sont capables d'étirer les bulles/gouttes et de former de longs filaments. Ces filaments ne peuvent pas continuer à s'étirer indéfiniment et selon les conditions, ils finiront par se fractionner. En effet, dans le but de minimiser son énergie potentielle interfaciale, le filament ayant un rapport de longueur suffisamment élevé devrait

donc se diviser en plusieurs petites bulles/gouttes (Coussot, 2014). L'instabilité de Rayleigh-Plateau est signalée normalement comme étant à l'origine du fractionnement de ces ligaments allongés (Drenckhan & Saint-Jalmes, 2015). La figure 43 présente le cas d'un filament qui se développe à partir d'une goutte d'huile de silicone ayant une viscosité de 300 mPa.s. Le filament devenu instable, finit par subir une rupture irrégulière à plusieurs endroits.

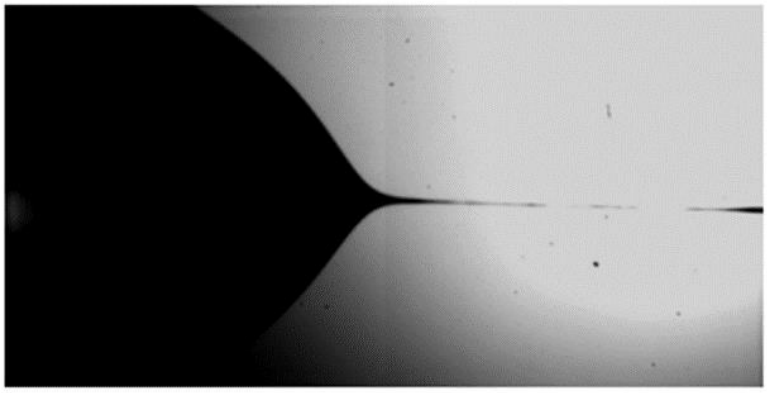


Figure 43. Rupture d'un filament. Photo prise de (Eggers &Villermaux, 2008).

Necking

Ce type de fractionnement est en réalité un fractionnement binaire dans lequel le taux de cisaillement critique a été dépassé. La goutte/bulle développe un cou, souvent au milieu, qui s'amincit progressivement et finit par se fractionner en deux parties de dimensions similaires (Barthès-Biesel & Acrivos, 1973 ; Janssen *et al.*, 1994).

End-pinching

Ce mécanisme a été remarqué lorsque les bulles sont d'abord étirées et qu'ensuite l'écoulement est arrêté. La figure 44 schématise ce mécanisme de fractionnement. La bulle/goutte semble essayer de regagner sa forme sphérique, mais la déformation continue à évoluer et la goutte développe un cou (un étranglement ?) pour finalement subir une rupture (Coussot, 2014). Ce phénomène peut se produire bien en dessous du capillaire critique décrit dans la courbe de Grace. Drenckhan et Saint-Jalmes (2015) et Stone (1994) ont aussi signalé qu'il est possible de rencontrer ce mécanisme de fractionnement lors d'un changement vers de zones de nombre capillaire inferieur sans nécessairement arrêter complètement l'écoulement.

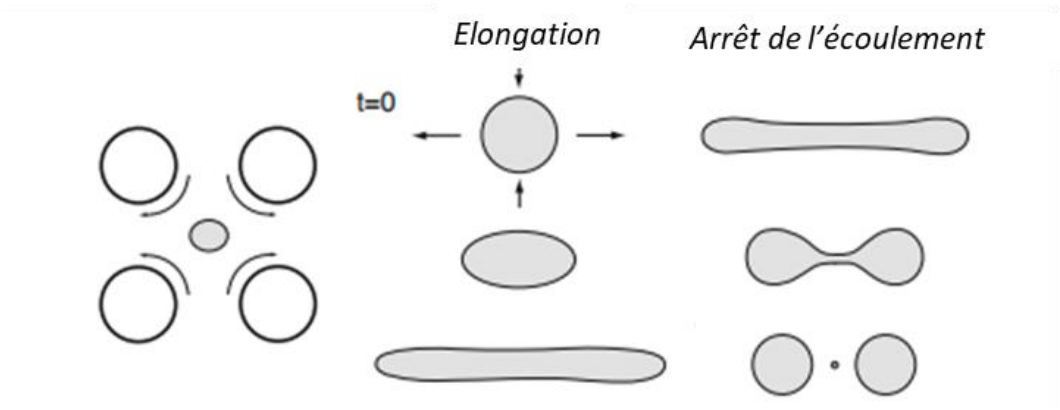


Figure 44. Schéma du fractionnement d'un goutte ou bulle par un mécanisme d'end-pinching. Figure de (Coussot, 2014).

Tip-streaming

Ce mécanisme est le résultat des gradients de tension interfaciales (De Bruijn, 1989 ; De Bruijn, 1993). De forts écoulements balaient les tensioactifs le long de l'interface vers la pointe émergente. Les tensioactifs qui se désorbent lentement ne peuvent pas facilement échapper de la région de la pointe ; celle-ci devient donc une zone de forte concentration en tensioactif et cela entraîne une réduction de la tension interfaciale dans cette région (Anna, 2016). Il s'ensuit un allongement de la pointe et consécutivement une érosion de la bulle en forme de minuscules gouttes/bulles satellites. Pour le cas de gouttes non-confinées, Grace (1982) a trouvé également une courbe délimitant les conditions dans lesquelles ce mécanisme de rupture pourrait être rencontré (figure 45)

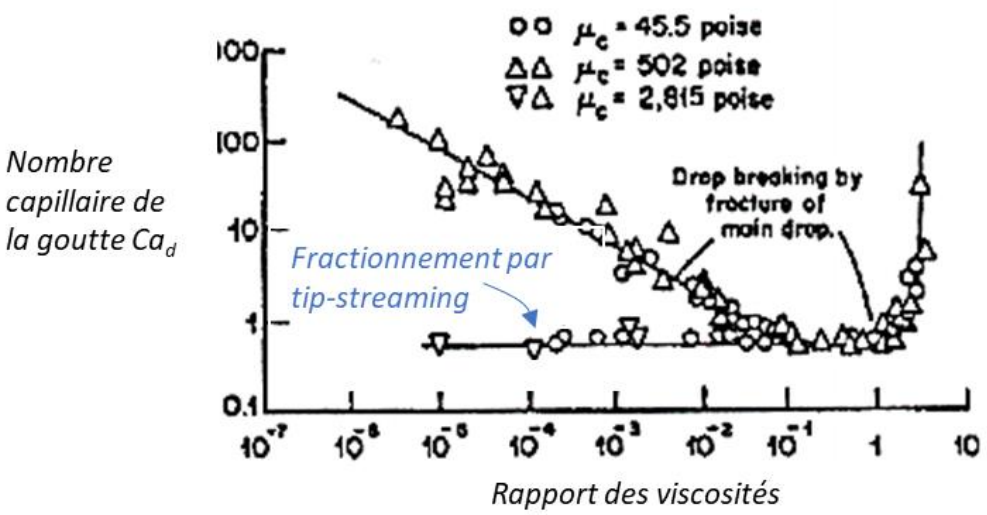


Figure 45. Courbes de Grace (Grace, 1982) pour le fractionnement de gouttes dans un écoulement de cisaillement et pour le fractionnement du type tip-streaming. Le rapport des viscosités est μ_d/μ_c.

Le terme tip-dropping est parfois retrouvé dans la littérature. La différence réside dans le fait que le tip-dropping se produit lorsque les gouttes ou bulles détachées de la pointe sont plus grosses et éjectées de manière plus intermittente (Janssen *et al.*, 1994). D'après (Jain, 2017) ce phénomène intervient lorsque la concentration de tensioactifs dans l'interface est plus importante que pour le cas de tip-streaming.

Autres mécanismes

Lorsque les forces inertielles deviennent importantes et aussi en présence de changements de directions dans les conduits, l'éclatement des bulles/gouttes par impact pourrait constituer un autre mécanisme de fractionnement. Wildeman *et al.* (2016) ont mené une étude numérique sur la déformation des gouttes qui impactent une surface lisse. Ils ont modélisé la déformation de la goutte (D_m) en fonction des propriétés du procédé (vitesse de goutte) et des propriétés du fluide, tension de surface, viscosité, masse volumique (figure 46). Toutes les propriétés ont été reliées par les nombres adimensionnels de Reynolds et de Weber.

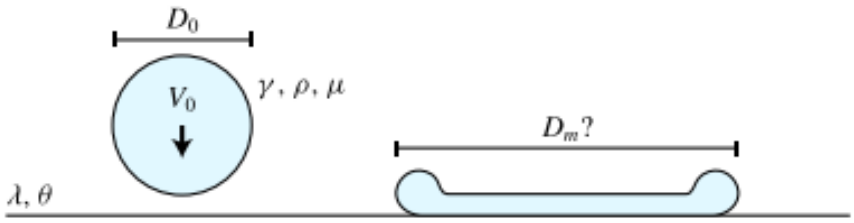


Figure 46. Déformation d'une goutte par impact. Étude numérique menée par Wildeman *et al.* (2016).

Le sujet de l'éclatement des gouttes par impact a aussi été abordé pour le cas des microcanaux par (Yap *et al.*, 2014). Les auteurs ont étudié numériquement le phénomène d'une bulle rencontrant une bifurcation en T. Le phénomène était gouverné par plusieurs nombres adimensionnels comme le nombre de Reynolds, capillaire, Prandtl, Marangoni, etc. L'étude a été menée à de très faibles Reynolds, ce qui permettait d'avoir un phénomène très contrôlé (figure 47).

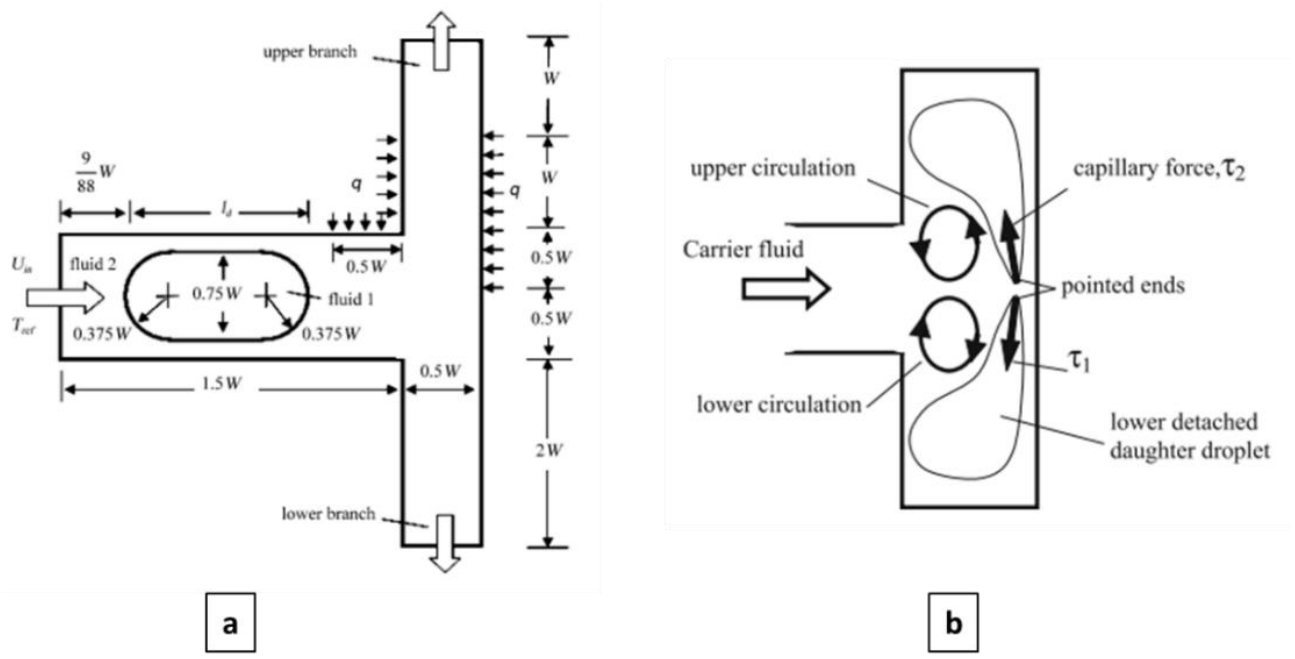


Figure 47. a) schéma de la goutte dans le dispositif T-junction **b)** schéma du fractionnement de la goutte par impact. Modifiée de (Yap *et al.*, 2014).

D'après Roisman et Tropea (2017) plusieurs procédés concernent l'impact des gouttes sur des surfaces. Cependant, des relations universelles pour décrire ce phénomène n'existent pas à cause de la complexité et du grand nombre de paramètres impliqués tels que le nombre de Reynolds et le nombre de Weber de la goutte, l'orientation de la surface, la structure de la surface et sa composition chimique et la température de la surface entre autres.

2.7.4 Instabilités hydrodynamiques

Plusieurs instabilités hydrodynamiques pourraient être liées aux phénomènes de déformation et fractionnement des interfaces. Voici un aperçu des principales instabilités impliquées dans l'étude des interfaces et qui seraient à l'origine du fractionnement des bulles/gouttes dans les microsystèmes :

Kelvin-Helmholtz (KH)

Ces instabilités (figure 48) sont caractéristiques des ondes qui se forment dans l'interface à cause du cisaillement entre deux fluides qui se déplacent horizontalement à différentes vitesses (Günther & Kreutzer, 2009). À l'intérieur des microcanaux et selon les conditions opératoires, un fluide pourrait se déplacer à une vitesse relative par rapport à l'autre fluide. Ceci pourrait occasionner l'apparition d'une instabilité de Kelvin-Helmholtz (KH) laquelle pourrait contribuer au fractionnement des bulles à l'intérieur des microcanaux.

Mathématiquement, Chandrasekhar (1961) a trouvé que la tension de surface supprime l'instabilité KH lorsque :

$$(U_1 - U_2)^2 < 2\sqrt{g\sigma(\rho_1 - \rho_2)}\frac{\rho_1 + \rho_2}{\rho_1\rho_2} \quad (21)$$

Des vitesses relatives de plusieurs mètres par seconde sont normalement nécessaires pour déstabiliser les systèmes gaz-liquide (Günther & Kreutzer, 2009). Ce sont des vitesses trop élevées pour les applications microfluidiques classiques. Funada et Joseph (2001) ont mené des recherches sur cette instabilité dans un canal carré ; cependant l'étude approfondie de cette instabilité dans les cas des microcanaux n'a pas été complètement abordée et moins encore dans le cas des interfaces liquides-gaz se déplaçant à des vitesses de plusieurs mètres par seconde.

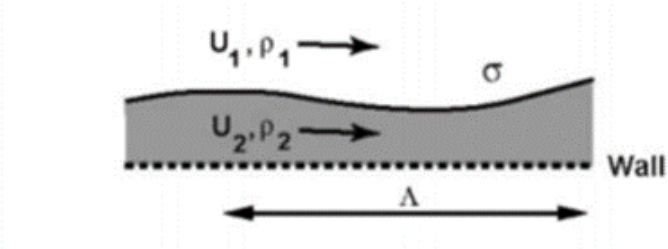


Figure 48. Schéma de l'instabilité KH (Günther & Jensen, 2006).

Rayleigh-Plateau (RP)

Cette instabilité concerne le fractionnement de filaments (ou jets) d'un fluide qui normalement est stable par l'action des forces capillaires (figure 49a). Lorsque les déformations sont symétriques et suffisamment importantes, le filament sera fractionné (Chandrasekhar, 1961 ; Driessen *et al.*, 2013 ; Link et al., 2004). Cette instabilité est aussi souvent rencontrée sous le nom d'instabilité capillaire. La force motrice la plus importante de la dynamique des jets est la pression de Laplace ; la tension interfaciale joue donc un rôle crucial dans le fractionnement des filaments (Eggers & Villermaux, 2008). Un des défis du fractionnement de cylindres, encore d'actualité, est précisément le mode de désintégration et le nombre d'éléments en lesquels il se désintègre (Rayleigh, 1878)

Cette instabilité est souvent décrite comme responsable du détachement des bulles ou gouttes au moment de leur formation dans les géométries flow-focusing (figure 49b).

Cependant, elle pourrait aussi expliquer le fractionnement des interfaces (bulles/gouttes) déjà formées soumises à un écoulement élongationnel, par exemple celui présent lors d'un fractionnement par le mécanisme end-pinching (Stone, 1994).

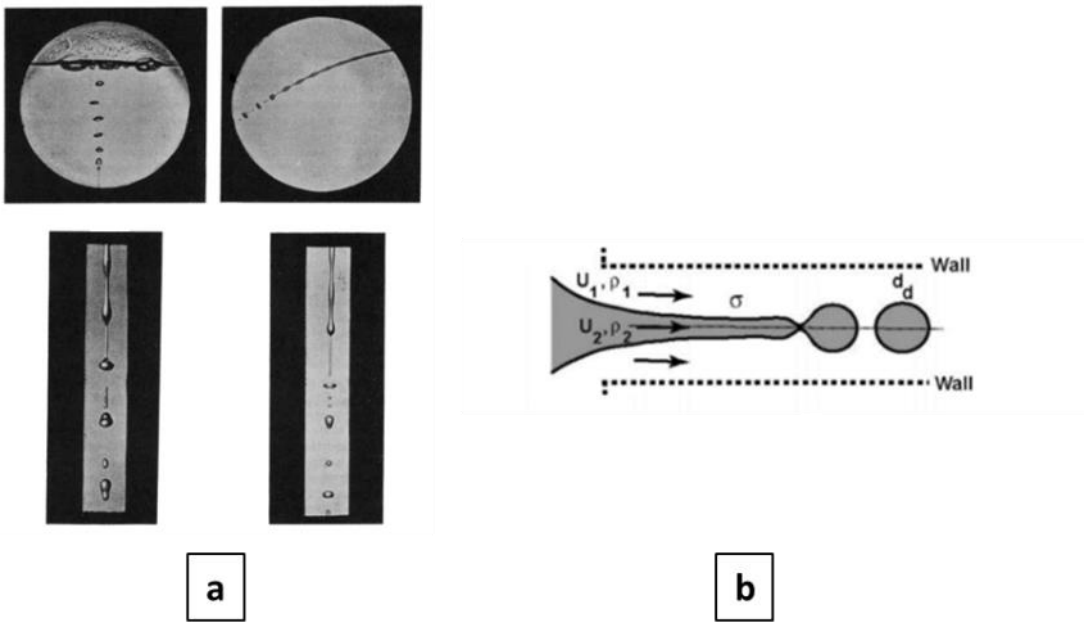


Figure 49. a) photographies de l'instabilité Rayleigh-plateau (Eggers & Villermaux, 2008 ; Rayleigh, 1891) **b)** schématisation de l'instabilité Rayleigh-Plateau dans un conduit (Günther & Jensen, 2006).

Rayleigh-Taylor (RT)

La stabilité de Rayleigh-Taylor est moins décrite pour les écoulements en conduits. Cependant, elle pourrait aussi jouer un rôle important. En effet, cette instabilité apparaît lorsqu'un fluide est accéléré vers un autre fluide ayant une masse volumique moins importante (Brennen, 2006 ; Chandrasekhar, 1961). Elle est rencontrée dans une grande variété de contextes, tels que la combustion, machines tournantes, fusion par confinement inertiel, explosions de supernova et géophysique (Zeytounian, 2011). Elle a été également remarquée dans des processus impliquant de nombreux aspects de la turbulence, du transport et de la diffusion dans des écoulements de masse volumique non uniformes soumis à des forces externes (Cook & Dimotakis, 2001).

2.8 Lois d'échelles pour les tailles de bulles dans les microcanaux

Comme indiqué précédemment, l'accès visuel aux phénomènes de l'écoulement est l'un des avantages les plus importants des microcanaux lorsqu'il s'agit de systèmes dispersés. Cela a permis de mesurer les caractéristiques des bulles au moment de leur formation, telles que

leur taille, forme, fréquence et vitesse. Plusieurs études ont été donc consacrées à la modélisation de la taille des bulles formées dans ces systèmes microfluidiques.

Dans leurs recherches, Garstecki *et al.* (2004) ont décrit le volume des bulles produites avec un dispositif *flow-focusing* en utilisant de l'eau et des solutions à base de glycérol et de tween 20 à différentes concentrations comme bases liquides. Le schéma du dispositif utilisé et ses dimensions sont présentés dans la figure 50a. *L* et *h* correspondent à la longueur et hauteur du canal en sortie. La figure 50b présente la prédiction du volume des bulles produites à une même pression de 27,6 kPa pour des solutions ayant différentes viscosités (μ) et tensions interfaciales (γ) (différents marqueurs). Le volume des bulles et donc leur taille est corrélée avec des caractéristiques géométriques du microsystèmes (*L* et *h*), les propriétés physiques de la phase continue (μ) et les débits liquides utilisés (q). Selon leurs conditions expérimentales, ces auteurs ont pu déterminer deux mécanismes de production des bulles séparés par la ligne verticale dans la figure 50b. Le mécanisme 1, à gauche de la ligne verticale, se caractérisait par une production de bulles ayant des tailles plus uniformes.

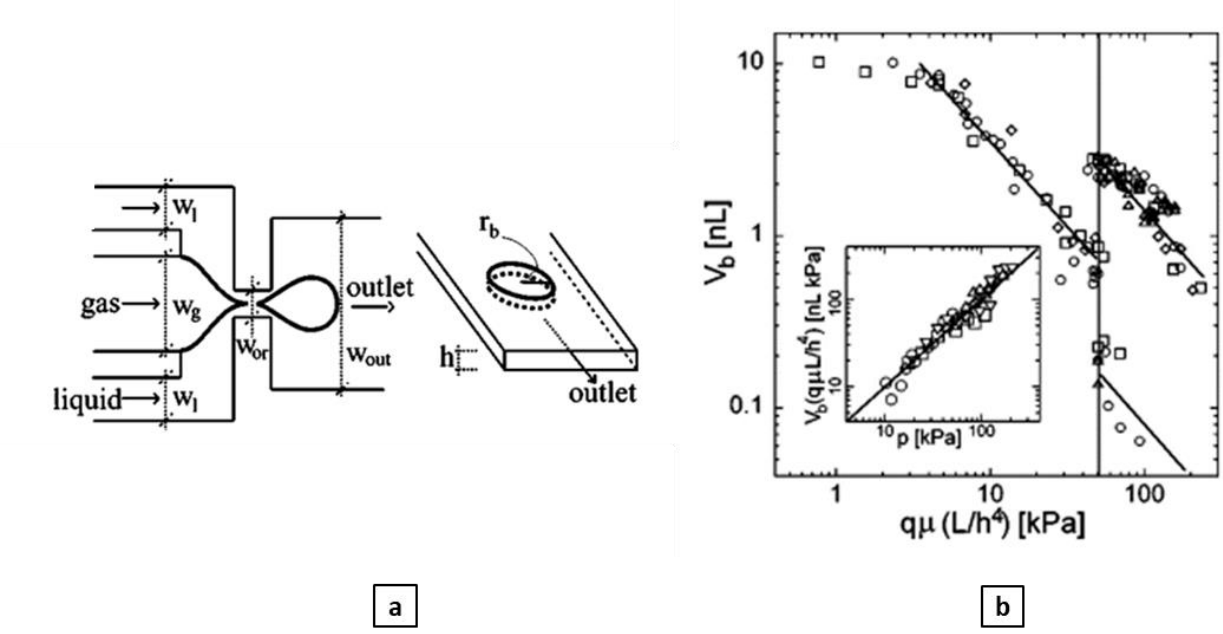


Figure 50. a) dispositif et dimensions. W_l = 250 μm, W_g = 200 μm, W_{or} ϵ {30,60,90,120 μm} et W_{out} ϵ {250,500,750,1000 μm} **b)** prédiction du volume des bulles à pression de 27,6 kPa et les dimensions W_{or} = 30 μm, W_{out} = 750 μm et L = 30 mm. Les marqueurs correspondent à différentes paires de conditions viscosité-tension interfaciale. (○) μ = 0,92 mPa, γ = 37,0 mN/m ; (Δ) μ = 0,92 mPa, γ = 72,0 mN/m ; (□) μ = 6,1 mPa, γ = 31,6 mN/m ; (◊) μ = 10,84 mPa, γ = 33,1 mN/m. Le graphique inséré est une corrélation de la taille des bulles avec la pression. Une paire des conditions viscosité-tension interfaciale est fixée et plusieurs débits (différents marqueurs) sont testés.

Avec une géométrie similaire Garstecki *et al.* (2005) ont suivi la formation d'une bulle. Ils ont suivi en particulier l'évolution du cou (W_m) qui relie la bulle en formation avec le fil du gaz duquel elle se détache. Les auteurs ont trouvé que l'évolution du cou (dW_m/dt) pouvait être décrit uniquement en fonction du débit liquide (q) (figure 51). La figure 51a présente le dispositif utilisé ainsi qu'un grossissement sur la zone de rupture de la bulle et quelques dimensions caractéristiques. La figure 51b montre quant à elle, l'évolution du cou jusqu'au moment du détachement de la bulle en formation. Enfin, la figure 51c présente la corrélation pour l'évolution du cou avec le débit liquide.

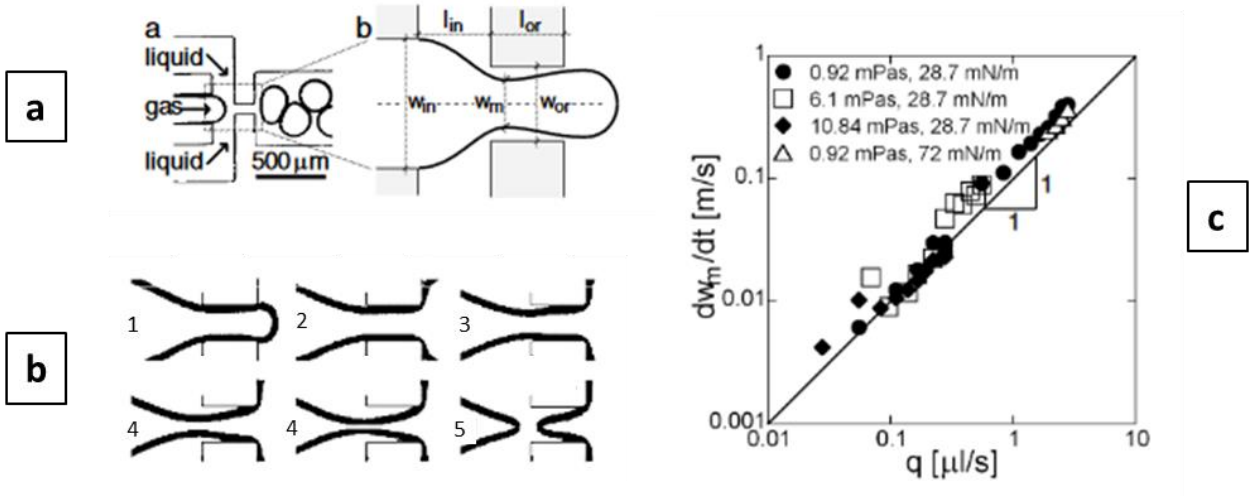


Figure 51. a) Schéma d'injection des fluides et quelques dimensions **b)** évènement de rupture du filament **c)** vitesse de la fragmentation du filament en fonction du débit liquide. Modifiée de (Garstecki *et al.*, 2005).

Lee *et al.* (2009) ont modélisé par analyse dimensionnelle la taille des gouttes, produites avec un système microfluidique *flow-focusing*, en fonction de la géométrie du dispositif et des propriétés du fluide correspondant à la phase continue. Le dispositif est schématisé dans la figure 52a. D'abord l'effet du débit (figure 52b) sur la taille des gouttes est présenté pour des expériences dans lesquelles on a fait varier quelques paramètres de la géométrie du dispositif (différents marqueurs). Les débits employés dans ce type d'application classique de la microfluidique sont plutôt faibles (0 à 12 mL.h^{-1}). En conséquence, les forces inertielles sont négligées et la taille des bulles (d) est décrite en fonction du nombre capillaire qui est le rapport entre les forces visqueuses et la tension interfaciale (figure 52c). D_h représente le diamètre de l'orifice où la goutte est formée. Le diamètre des gouttes diminue en fonction du nombre capillaire à la puissance un tiers, soit : $d \propto Ca^{-1/3}$. Pour ces conditions, les auteurs ont identifié deux mécanismes de production des gouttes détaillés précédemment, les régimes de formation squeezing et dripping (figure 52d).

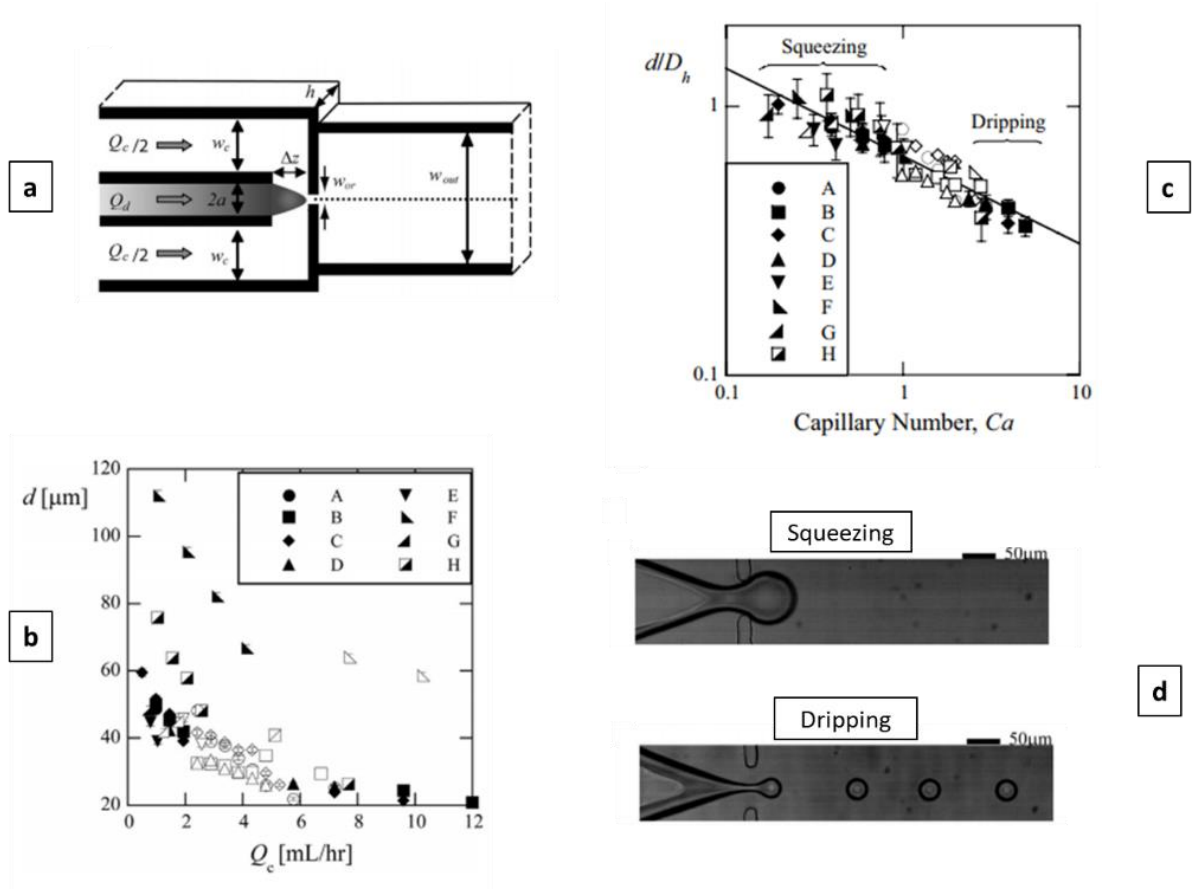


Figure 52. a) caractéristiques du dispositif microfluidique **b)** diamètre des gouttes en fonction du débit pour des dispositifs de géométrie variée (A-H) **c)** corrélation du diamètre des bulles en fonction du nombre capillaire **d)** photographies des régimes observés pour la formation des gouttes. Figures prises de (Lee *et al.*, 2009).

Présenter les lois d'échelles en fonction du nombre capillaire est une conséquence de l'importance des forces visqueuses dans la formation des bulles/gouttes. Cependant, dans certains cas où les forces inertielles sont importantes et peut-être plus importantes que les forces visqueuses, le nombre capillaire peut éventuellement être aussi utilisé comme paramètre prédominant pour la description de la taille de bulles/gouttes. Cela peut être dû à l'utilisation répandue de ce nombre adimensionnel dans la description du fractionnement des bulles proposée par Taylor (1934) et Grace (1982). Par exemple, Mary *et al.* (2013) ont modélisé par analyse dimensionnelle la taille des bulles produites avec un *rotor-stator* de type *Mondomix* en faisant varier la vitesse de rotation, les débits et la pression et en utilisant des solutions newtoniennes à partir de sirop de glucose à plusieurs concentrations. Après leur démarche d'identification de nombres adimensionnels, ils ont simplifié leur modèle obtenu en négligeant l'effet des débits et de la pression et ont gardé seulement trois nombres adimensionnels. Ces nombres étaient liés à la vitesse de rotation, la viscosité et la tension de surface. Ils ont ensuite obtenu une expression pour la taille des bulles (équation 22). La

figure 53 présente le diamètre de Sauter des bulles en fonction du nombre capillaire. Les chiffres 1-12 correspondent aux différentes conditions d'expérimentation avec des viscosités dans la gamme 0,4 à 1,4 Pa.s (Mary *et al*., 2013).

$$\frac{d_{32}^{(p)}}{D} = 372 \cdot 10^{-6} Ca^{-0.4} \tag{22}$$

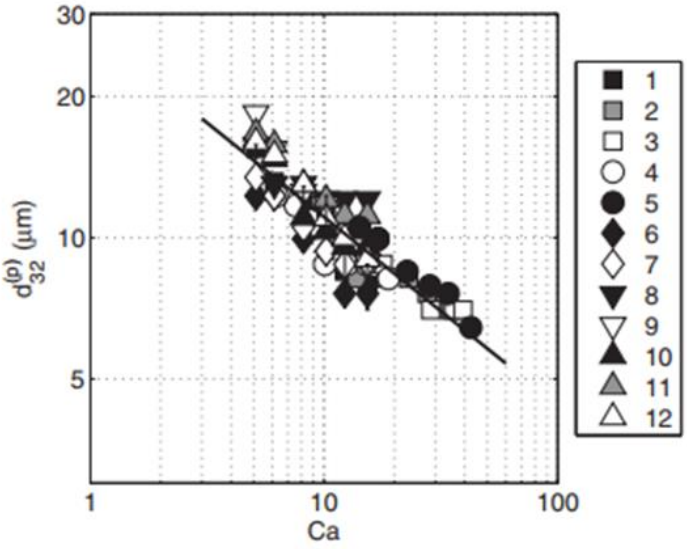


Figure 53. Modélisation de la taille des bulles en fonction du nombre capillaire pour des mousses produites avec le *rotor-stator* (Mary *et al.*, 2013).

Gañán-Calvo et Gordillo (2001) et Gañán-Calvo (2004) ont produit des bulles avec un système microfluidique dans des conditions de forces inertielles non négligeables et de non-confinement. La gamme des débits liquides employés allaient de 24 à 310 µl/s et celles du gaz de 0.2 à 40 µl/s. Les nombres de Reynolds du liquide variaient dans la gamme 40-1000. Comme phase continue les auteurs ont utilisé des solutions eau-éthanol et eau-glycérol à différentes concentrations. Ils ont trouvé une forte corrélation (équation23) entre la taille des bulles et le rapport des débits utilisés (figure 54). Où d_b représente les diamètres des bulles, D le diamètre de l'orifice du dispositif du type *flow focusing*, Q_l le débit volumique du liquide et Q_g le débit volumique du gaz.

$$\frac{d_b}{D} \approx \left(\frac{Q_g}{Q_l}\right)^{0.37 \pm 0.005} \tag{23}$$

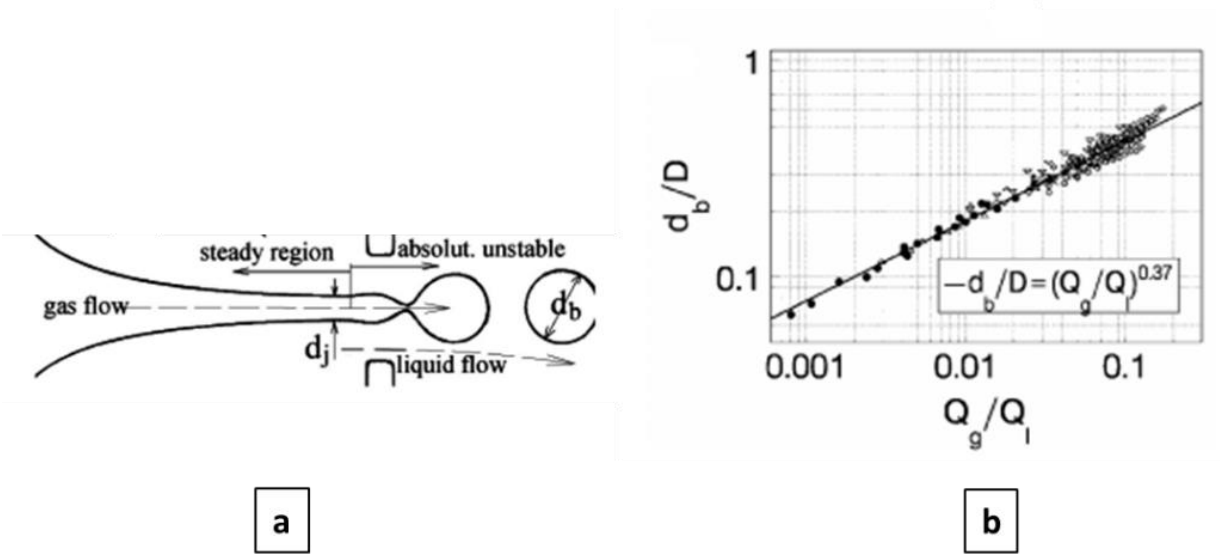


Figure 54. a) Schéma de la formation de bulles par flow-focusing **b)** corrélation expérimentale entre la taille de bulles et le rapport de débits. D = 210 µm étant le diamètre de l'orifice. Tirées de (Gañán-Calvo & Gordillo, 2001).

Gaillard (2016) a utilisé des dispositifs de dimensions légèrement supérieures à 1 mm (figure 55a) et des débits plutôt élevés de l'ordre de 0,1-5 ml/s (6-300 ml/min) pour la production de mousse. Les nombres de Reynolds dans les conditions expérimentales se trouvaient dans la plage de 300 à 3000. En raison des débits élevés et des échelles millimétriques des canaux, cette application était décrite comme appartenant à la millifluidique inertielle. Malgré cela, leurs canaux avaient des tailles suffisamment petites pour pouvoir effectuer des comparaisons directes avec les applications microfluidiques. Pour ce dispositif et ces conditions d'opération, les auteurs ont trouvé une corrélation (figure 55b) pour la taille des bulles en fonction du rapport des débits des phases utilisées similaire à celle trouvée par Gañán-Calvo et Gordillo (2001) (équation 24). Où R_b représente les rayons des bulles, l le diamètre de l'orifice du dispositif du type *flow focusing*, Q_l le débit volumique du liquide et Q_g le débit volumique du gaz.

$$\frac{R_B}{l} \approx 1.1 \left(\frac{Q_g}{Q_l}\right)^{0.37} \tag{24}$$

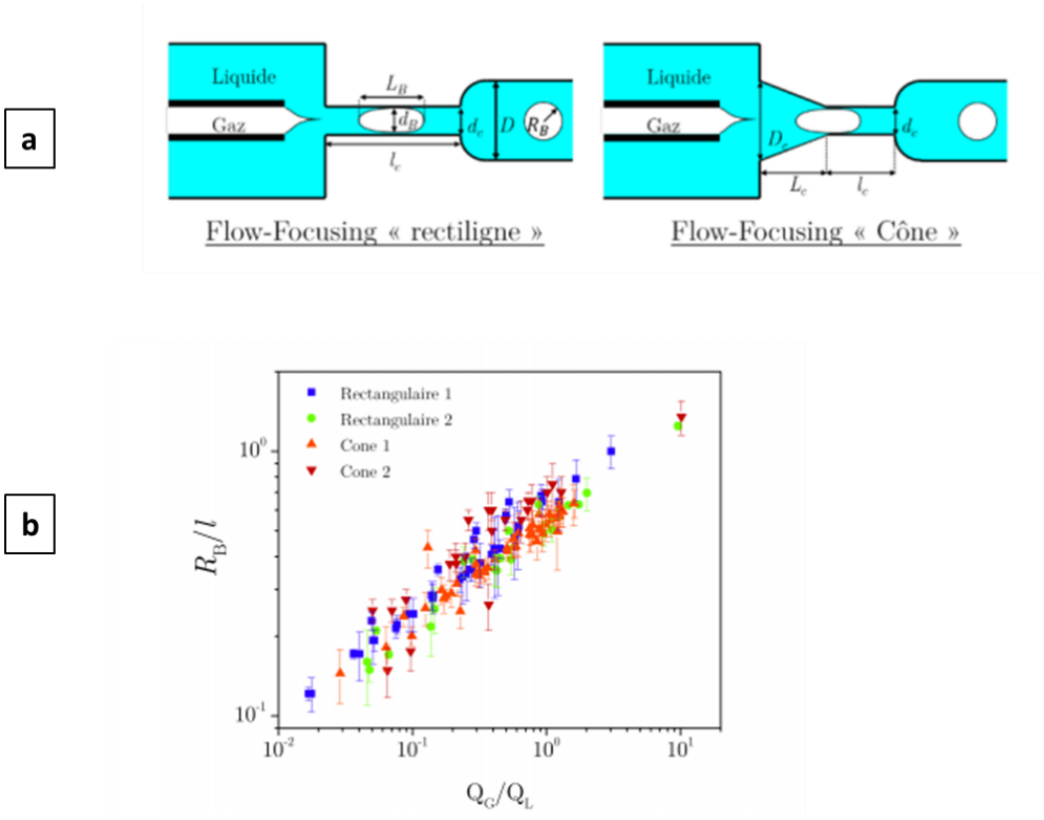


Figure 55. a) dispositifs millifluidiques évalués **b)** courbe maîtresse décrivant la taille de bulles en fonction du rapport des débits de fluides. (Gaillard, 2016).

Bien que la relation 24 décrive correctement la taille des bulles, Gaillard (2016) a signalé qu'un régime inertiel, caractéristique de son étude, conduisait à une polydispersité plus importante pour les tailles des bulles. Cependant, pour les débits les plus faibles utilisés, les trains de bulles formés étaient assez homogènes (figure 56) et les conditions quasi-statiques établies facilitaient la caractérisation des bulles à l'intérieur des dispositifs.

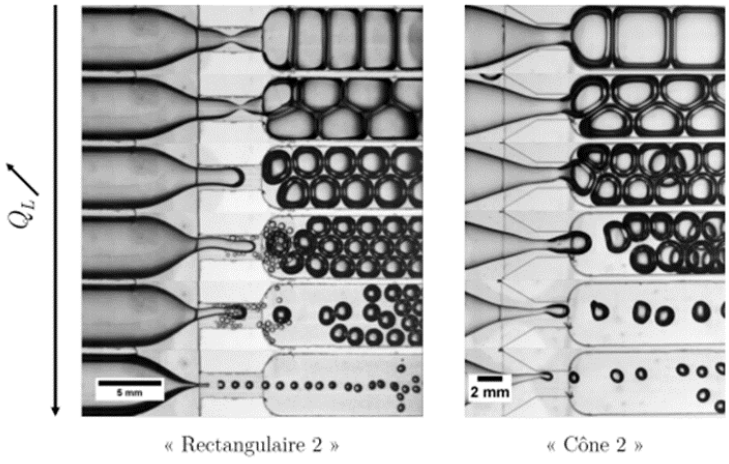


Figure 56. Evolution des bulles avec le débit liquide dans les dispositifs millifluidiques à très faible Reynolds (conditions quasi-statiques). Figures de (Gaillard, 2016).

3 Conclusion

Les mousses sont des systèmes dispersés dont la structure aérée apporte des propriétés fonctionnelles comme l'onctuosité et la légèreté ; qualités très appréciées dans le secteur agroalimentaire. Cette étude bibliographique a montré à quel point la maitrise de la structuration de ces systèmes à travers la formulation mais aussi le procédé est déterminante pour développer de façon systématique ces propriétés fonctionnelles. Du point de vue du procédé, il existe plusieurs méthodes ou technologies permettant de fabriquer une mousse. Récemment, le développement des dispositifs microfluidiques a éveillé l'intérêt scientifique pour les applications de foisonnement et émulsification en raison de la possibilité de contrôler la taille des bulles/gouttes et grâce à un accès visuel aisé aux phénomènes d'écoulement.

Plusieurs études ont été développées ces dernières années pour mieux appréhender les mécanismes de dispersion qui ont lieu à l'intérieur de ces dispositifs lors des opérations de foisonnement/émulsification. Ce corps de travail scientifique en microfluidique a permis principalement de développer des cartes d'écoulement pour plusieurs formulations et conditions ainsi que de proposer des modélisations de la cinétique de formation des bulles/gouttes au sein de ces dispositifs. Cependant, quasiment toutes ces études ont été menées sous des conditions très contrôlées, notamment en utilisant des solutions newtoniennes ainsi que des débits très faibles, de l'ordre de 0 à 1 ml/min. Il existe en conséquence un déficit important de connaissances sur l'utilisation des microcanaux dans des conditions s'approchant de celles constatées dans les applications industrielles, c'est-à-dire la mise en oeuvre de fluides complexes et de forts débits. L'utilisation de ces dispositifs dans de telles conditions mènerait certainement à une meilleure compréhension des phénomènes de déformation et fractionnement des interfaces, et donc à appréhender plus concrètement les performances potentielles de ces dispositifs pour des applications industrielles.

Chapitre 2
Matériels et méthodes

1 Matières premières

L'objectif étant de se rapprocher des applications agroalimentaires, les solutions moussantes modèles utilisées dans cette étude sont élaborées à partir molécules biosourcées notamment d'isolats de protéines sériques et de la gomme xanthane. En complément, afin de mieux mettre en évidence les influences des caractéristiques de ces molécules sur la dispersion du gaz et la typologie d'écoulement, on utilise les caséinates de sodium, ainsi que du glycérol.

1.1 Protéines sériques

Les isolats de protéines sériques (WPI) Protinav 95 (Lactalis, France) avec une teneur en protéines de 95% sont utilisés en tant qu'agent tensioactifs. Leur rôle principal est donc de diminuer la tension interfaciale. Le choix de ces protéines provient du fait qu'elles s'avèrent être des biopolymères intéressants pour cette application, du fait de leurs propriétés fonctionnelles offrant un bon foisonnement et permettant une bonne stabilité des mousses obtenues (Loisel & Lefebvre, 2013).

1.2 Gomme xanthane

La gomme xanthane (XG) est un hydrocolloïde amplement utilisé dans des procédés industriels en tant qu'agent épaississant (García-Ochoa *et al.*, 2000). Elle est utilisée non seulement dans les filières alimentaires, mais aussi dans des domaines très variés comme la cosmétique et pharmaceutique (Brunchi *et al.*, 2016 ; Rosalam & England, 2006). Dans le cas des mousses, le xanthane est capable d'améliorer leur stabilité (Cantat *et al.*, 2013). En augmentant la viscosité de la base liquide, cette substance favorise l'immobilisation des bulles. Dans la présente étude, la gomme xanthane est également utilisée en raison des avantages technologiques qu'elle présente. Finalement, du point de vue de l'application envisagée dans cette étude, leur utilisation est pertinente étant donné que les études menées avec des technologies microfluidiques impliquent dans la plupart des cas des fluides newtoniens (Mansour *et al.*, 2015) présentant une faible viscosité afin de ne pas mettre en jeu des chutes de pression rédhibitoires. La compréhension de la performance de cette technologie avec des fluides non-newtoniens comme la gomme xanthane est encore à un stade exploratoire.

Le xanthane « Keltrol Advanced Performance » de Kelco a été utilisé pour la préparation des solutions modèles à base d'isolats de protéines sériques et xanthane (WPI-XG). Le choix de ce produit a été fait en tenant compte entre autres, une meilleure dispersion en solution ainsi qu'une viscosité plus élevée à des bas taux de cisaillement.

1.3 Caséinates de Sodium

Les caséinates de sodium sont décrits comme étant des molécules permettant une très bonne activité foisonnante (Zayas, 1997). Celles-ci présentent une configuration spatiale différente de la structure globulaire des protéines sériques. Il est donc proposé ici d'étudier l'effet de la protéine. Les caséinates ont en effet des structures ouvertes et n'ont donc pas à se déployer avant leur adsorption sur les interfaces (Zayas, 1997). Les « caséinates de sodium 110 alimentaire » de EPI ingrédients sont utilisées lors de cette étude pour la préparation des solutions à base de caséinates et gomme xanthane.

1.4 Glycerol

Afin d'étudier la typologie de l'écoulement avec un fluide newtonien de viscosité proche de celle des solutions de xanthane lorqu'elles sont soumises aux gradients de vitesse siégeant dans les microcanaux, des solutions de glycérol sont utilisées pour réaliser des tests complémentaires. Les solutions de glycérol ont en effet un caractère newtonien, quelle que soit la concentration en glycérol. Ceci permettrait de mettre en évidence les possibles effets viscoélastiques pendant l'expérimentation des solutions modèles à base de gomme xanthane et protéines sériques WPI-XG. Le glycérol utilisé pour cette étude était du glycérol de la marque Honeywell avec une concentration ≥ 99.0%.

2 Préparation des solutions modèles

La première étape de la préparation des bases liquides foisonnantes consiste à mélanger les poudres de WPI ainsi que de XG. La concentration utilisée de WPI est fixée à 3% (en masse). Cette valeur correspond à une concentration en excès de protéines par rapport à la saturation de l'interface gaz-liquide ; cet excès est justifié en annexe F. Les concentrations en excès sont typiquement utilisées dans les procédés de fabrication des émulsions et mousses à cause de grandes aires interfaciales créées lors de la formation continue de gouttelettes ou des bulles (Salager & Choplin, 2008). En ce qui concerne la gomme xanthane, sa concentration varie dans la gamme 0,2-0,5% (en masse) afin d'ajuster son pouvoir épaississant et donc la viscosité de la base liquide. Aux concentrations utilisées dans cette étude, les solutions ne

présenteraient pas un enchevêtrement des polymères WPI-XG, d'après la carte d'interaction de ces deux molécules en solution proposée par Benichou *et al.* (2007), présentée dans l'étude bibliographique. Les solutions sont par la suite désignées respectivement par WPI3XG02, WPI3XG035, WPI3XG04 et WPI3XG05 selon leur concentration de protéines sériques (3%) et de xanthane (0,2-0,5%).

Pour la préparation de ces solutions, la quantité d'eau nécessaire est d'abord pesée sur une balance RADWAG PS 3500 R2 avec une précision de ± 0.01 g et versée dans un bidon en plastique d'une capacité de 8 litres. Les poudres de WPI et XG sont préalablement mélangées et ensuite ajoutées lentement en pluie pour éviter au maximum l'incorporation d'air, tout en favorisant une dispersion et solubilisation plus rapide. L'addition de poudres se fait sous agitation continue en utilisant un agitateur suspendu (RZR 2020 de Heidolph Instruments) avec une turbine de dispersion idéale pour les larges gammes de viscosité. Lors de l'addition de poudres, la vitesse d'agitation est réglée manuellement dans la plage de 100 à 600 tr/min dans le but d'éviter la formation de grumeaux et de réduire l'incorporation d'air. Après l'addition des poudres, l'agitation se poursuit pendant environ 4 heures à vitesse d'agitation moyenne, autour de 300 tr/min, de façon à dissoudre et solubiliser complètement les produits. Le pH mesuré des solutions est de 6,5. Aucun ajustement du pH n'a été nécessaire car les solutions avaient un pH plutôt neutre et elles ont été utilisées immédiatement après préparation.

Les autres solutions proposées dans cette étude sont préparées de façon similaire. Ces solutions sont respectivement : une solution contenant seulement le xanthane à une concentration de 0,4% (XG04), une solution ayant seulement les protéines sériques à 3% (WPI3), Une solution de glycérol à 50%, une solution contenant des caséinates de sodium à 3% ainsi que la gomme xanthane à 0,4% (CAS3XG04) et finalement une de nos solutions modèles, WPI3XG04 à laquelle 1,2% de chlorure de sodium a été ajouté (WPI3XG04-NaCl).

3 Caractérisation des solutions

3.1 Mesure de la masse volumique

La masse volumique des solutions est mesurée en utilisant le principe d'Archimède. Ce principe dit que le fluide exerce sur tout solide immergé une force verticale ascendante égale au poids de fluide déplacé. Le poids du liquide déplacé $W_{liquide\ deplacé}$ peut être exprimé

avec l'équation 25 où ρ_L correspond à la masse volumique de la solution, V_L au volume de la solution et g à l'accélération de la gravité. Le volume du liquide déplacé étant égal au volume de l'objet immergé, on obtient l'équation 26 où V_{obj} correspond au volume de l'objet. A cet effet un cylindre d'aluminium lisse a été utilisé (figure 57). Les dimensions de cet objet ont été mesurées en utilisant un pied à coulisse à température ambiante. 5 répétitions pour chaque mesure ont été faites afin d'améliorer la précision. Le volume de l'objet est de (136,2 ± 0,2) cm^3. Pour les mesures de m_1 et m_2, un litre et demi de la solution préparée est versée dans un bécher de 2L. La masse du bécher contenant la solution est pesée et sa valeur est notée m_1. Sans enlever le bécher de la balance, le cylindre qui est suspendu est entièrement immergé dans la solution tout en évitant de toucher les parois et le fond du bécher (figure 57). La nouvelle mesure de la masse du bécher est notée m_2. La différence m_2-m_1 multipliée par la gravité est égale au poids du liquide déplacé, $W_{\text{liquide deplacé}}$, et en réorganisant on obtient l'équation 27. La masse volumique des solutions est calculée avec une précision de ± 4 $kg.m^{-3}$.

$$W_{liquide\ deplacé} = \rho_L V_L g \tag{25}$$

$$W_{liquide\ deplacé} = \rho_L V_{obj} g \tag{26}$$

$$\rho_L = \frac{m_2 - m_1}{V_{obj}} \tag{27}$$

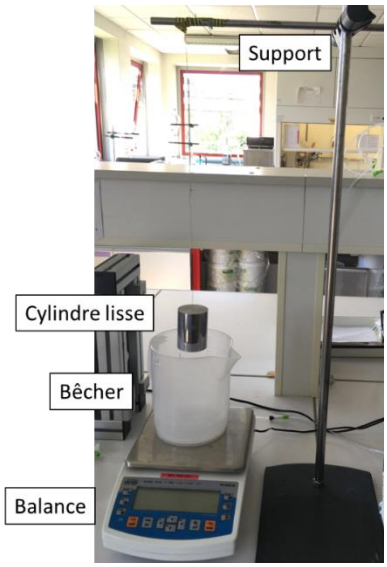


Figure 57. Dispositif pour la mesure de la masse volumique des solutions par le principe d'Archimède.

3.2 Tension de surface

La tension de surface liquide/gaz est un paramètre central dans l'étude des écoulements à l'intérieur des canaux submillimétriques. Elle permet aux bulles/goutes de maintenir leur forme face aux forces de déformation visqueuses et inertielles. Dans le cas des applications microfluidiques, il est courant d'utiliser la tension de surface à l'équilibre (Anna 2016). La détermination de la tension de surface des solutions s'appuie dans cette étude sur un tensiomètre à lame Krüss™ K12 en suivant la méthode de Wilhelmy (figure 58) dans laquelle une plaque fine de platine placée verticalement est mouillée par la solution puis remontée (Butt *et al.*, 2003). La tension de surface (σ) se calcule avec l'équation 28 où L correspond à la longueur de la plaque mouillée $et\ \theta$ à l'angle de contact qui est nul dans le cas d'un mouillage parfait. Le tableau 2 présente les propriétés physiques des différentes solutions utilisées dans notre étude.

$$\sigma = \frac{F}{L \cdot \cos\theta} \tag{28}$$

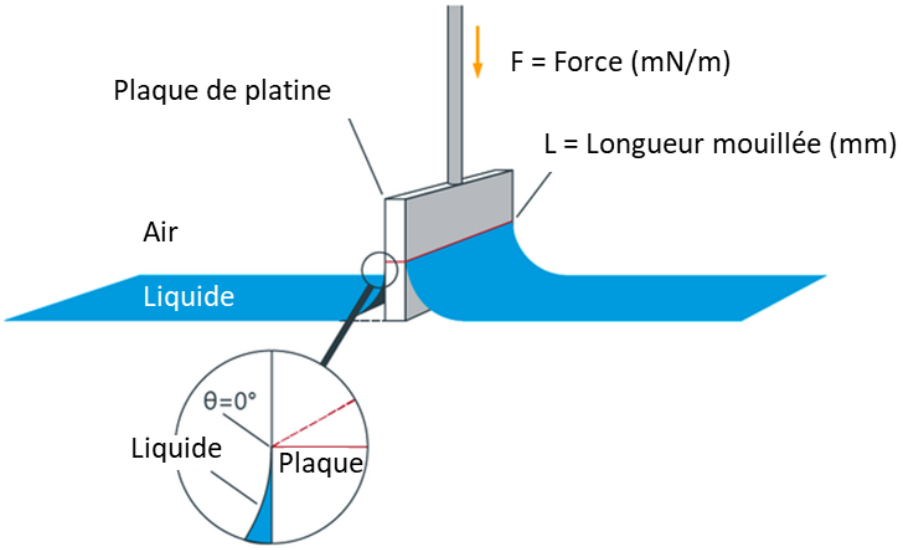


Figure 58. Schéma de la méthode à plaque Wilhelmy. Modifié de ("Wilhelmy plate method," 2019).

Tableau 2 Propriétés physiques des solutions à 20°C.

Solution -	σ $mN.m^{-1}$	ρ $Kg.m^{-3}$
WPI3XG02	43	1010
WPI3XG035	45	984
WPI3XG04	46	972
WPI3XG05	46	962
XG04	72	1003
WPI3XG04+NaCl	46	979
CAS3XG04	41	968
WPI3	40	1006
Glycérol 60%	67	1153
Glycérol 50%	68	1123
Glycérol 40%	69	1101
Eau	72	1000

3.3 Rhéologie des solutions

Les solutions à base de gomme xanthane sont des fluides non-newtoniens qui présentent un caractère fortement rhéofluidifiant déjà mentionné. Le choix de travailler avec des solutions de xanthane résulte du fait que sa viscosité diminue à haut taux de cisaillement, ce qui facilite son transport tout en contribuant à la stabilité au repos du produit final. Pour les déterminations rhéologiques, un rhéomètre rotationnel à contrainte imposée AR1000 (TA Instruments) est employé en utilisant une géométrie cône-plan lisse. Dans les cas des solutions à base de xanthane, on utilise une géométrie cône-plan 40 mm/4° tandis que dans le cas des solutions newtoniennes la géométrie est de 60mm/2°.

3.3.1 Détermination du domaine linéaire viscoélastique

La détermination du domaine linéaire viscoélastique (LVD) est effectuée en faisant un balayage en contrainte entre 0,01 et 40 Pa à 1Hz et à 20ºC. La réalisation de ce test permet de déterminer un pourcentage de déformation approprié dans la zone LVD à renseigner dans les tests de détermination des modules mécaniques pour les fluides viscoélastiques tels que les solutions à base de gomme xanthane. La figure 59 présente un exemple de cette détermination pour le cas de la solution WPI3XG04. Une déformation de 2% a été retenue.

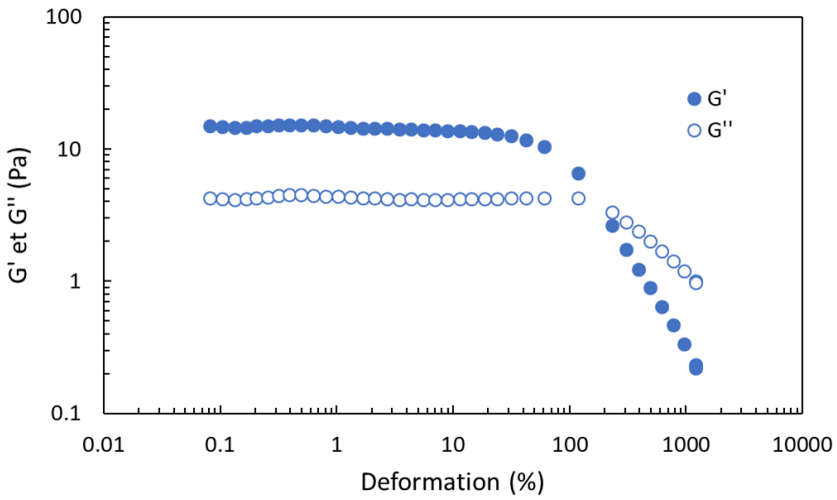


Figure 59. Détermination du domaine linéaire viscoélastique pour la solution WPI3XG04.

3.3.2 Détermination des modules mécaniques

La détermination s'effectue en mode oscillatoire (Figure 60) à des fréquences comprises entre 0,5-5 Hz à une température de 20 ºC et 2% de déformation. Ce balayage en fréquence permet la détermination des modules mécaniques *G'* et *G''*. *G'* correspond à la composante élastique tandis que *G''* représente la composante visqueuse de la solution. La détermination de ces modules renseigne sur la structure de la matrice du système évalué et tout particulièrement sur son caractère viscoélastique. La figure 61 montre l'évolution de ces deux modules pour la solution WPI3XG04. On note une faible influence de la fréquence sur l'évolution de *G'* et *G''* et donc un réseau très résistant pour cette solution

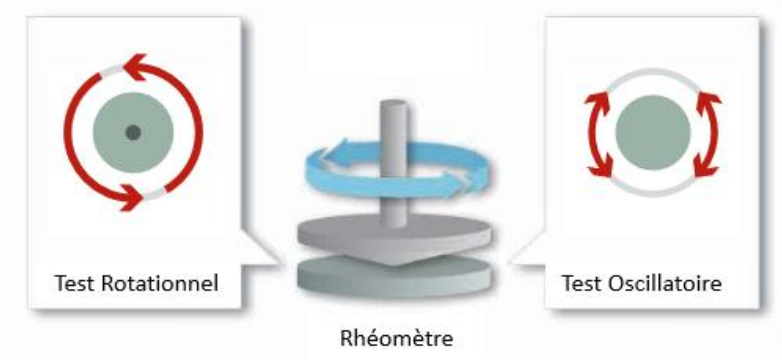


Figure 60. Modes de fonctionnement du rhéomètre. Schéma modifié de ("Modular Compact Rheometers," 2018).

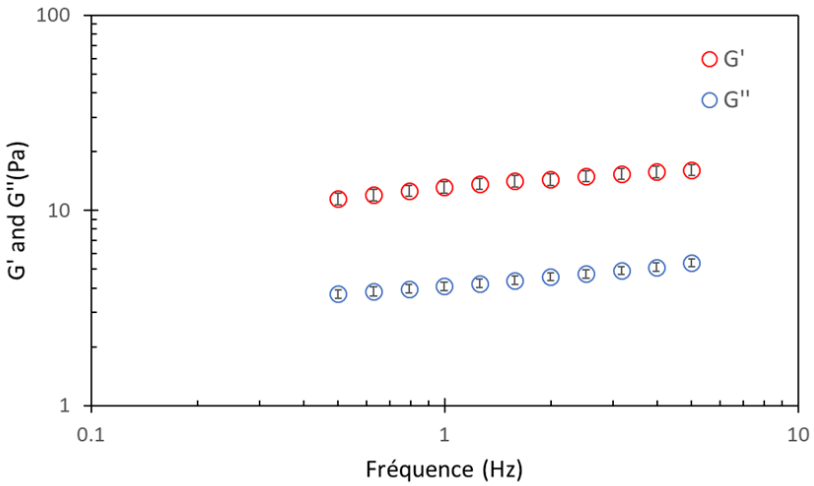


Figure 61. Détermination des modules mécaniques pour la solution WPI3XG04.

3.3.3 Mesures en écoulement

L'étude de la viscosité des solutions en fonction du taux de cisaillement est possible grâce à un test d'écoulement en rhéomètre rotatif. Les mesures sont effectuées en contrainte imposée dans la région 6×10^{-3} à 40 Pa à 20 ºC pendant une durée de 5 min pour les solutions à base de gomme xanthane. La figure 62 présente une courbe de viscosité typique obtenue avec un test d'écoulement pour le cas de la solution WPI3XG04 (avec trois répétitions). La courbe caractéristique pour la viscosité des solutions à base de xanthane comporte trois parties : d'abord, un premier plateau newtonien à très bas taux de cisaillement (au repos). Ensuite, une région rhéofluidifiante où la viscosité diminue très rapidement. Finalement, un deuxième plateau newtonien est atteint à des hauts taux de cisaillement. Dans le cas de la solution WPI3XG04 présentée dans la figure 62, les forces centrifuges lors des mesures étaient si importantes que l'échantillon était expulsé. En conséquence, le deuxième plateau n'a pas pu être identifié en utilisant le rhéomètre AR1000. Les conditions d'évaluation de la viscosité pour les solutions de glycérol et celles contenant des protéines sériques sans xanthane (WPI3) ont impliqué de légères variations du protocole en raison de de la nature newtonienne de ces solutions. Pour ces cas, la viscosité est évaluée dans la plage 0,1 à 11 Pa à 20 ºC pendant une durée de 5 min.

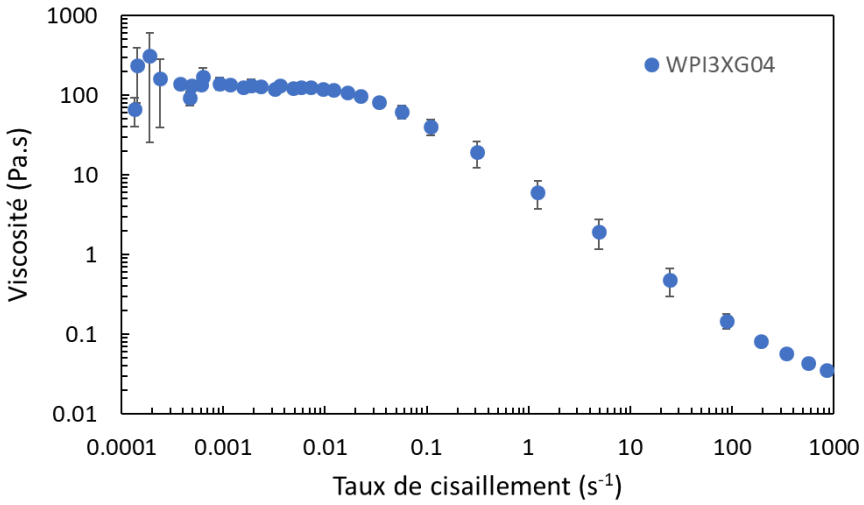


Figure 62. Test d'écoulement pour la solution WPI3XG04.

Les rhéomètres rotationnels sont capables de réaliser des mesures à peu près fiables que jusqu'à des taux de cisaillements environ de l'ordre de 10^3 s^{-1} (AZO Materials 2016 ; TA Instruments n.d.). Or, à ces valeurs, le deuxième plateau des solutions à base de xanthane n'a pas été encore atteint (Phillips & Williams, 2009). Sachant, que les gradients de vitesse peuvent atteindre 10^5 s^{-1} au sein des microcanaux au cours de cette étude (Laporte, 2014), il a été nécessaire pour caractériser nos solutions à base de xanthane d'effectuer des mesures complémentaires avec une technologie alternative permettant de mesurer la viscosité à des taux de cisaillement très élevés.

Cette technologie, été mise au point par la société *Formulaction* (Toulouse, France). Elle s'appuie sur l'utilisation des microcanaux et permet d'atteindre de très hautes valeurs du taux de cisaillement (jusqu'à environ 10^5 s^{-1}). Le principe de la mesure consiste en l'utilisation d'un co-écoulement laminaire à travers d'un microsystème en Y (figure 63). Un fluide de référence et l'échantillon sont injectés simultanément et de façon contrôlée grâce à l'utilisation de pousse-seringues. Une solution de polyéthylène glycol (PEG) ayant une viscosité de 6,87 mPa.s à 20 °C est utilisée comme fluide de référence. L'interface créée entre les deux fluides est analysée à l'aide d'une caméra. Sous les conditions d'écoulement laminaire, la relation 29 (Nghe *et al.*, 2011 ; "Microfluidics by optical imaging to measure shear viscosity with high precision", n.d.) permet de calculer la valeur de la viscosité μ à partir des valeurs des largeurs W occupées par chaque fluide dans le canal et des débits Q utilisés où l'indice R représente le fluide de référence. Les largeurs sont mesurées automatiquement à l'aide d'une caméra. Deux dispositifs microfluidiques ayant la même

largeur du canal (2,2 mm) mais des profondeurs différentes (50 et 150 µm) sont employés pour mesurer la viscosité dans la gamme de 100 à 2×10^5 s^{-1}.

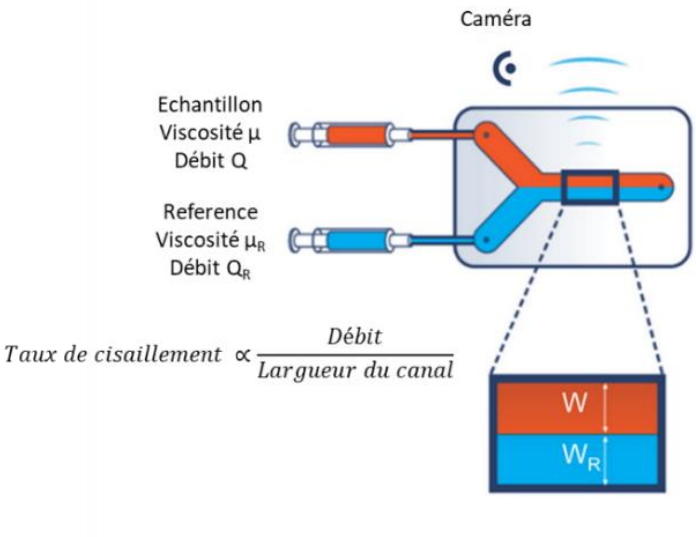


Figure 63. Schéma du dispositif microfluidique de mesure de la viscosité à taux de cisaillements élevés. Modifié de ("Microfluidics by optical imaging to measure shear viscosity with high precision," n.d.).

$$\frac{W}{W_R} = \frac{\mu}{\mu_R}\frac{Q}{Q_R} \tag{29}$$

Les résultats fournis par le rhéomètre rotationnel AR1000 et ceux du rhéomètre de type microfluidique, Fluidicalm^{Rhéo}® de la société *Formulaction* ont été associés dans la figure 64 pour la solution WPI3XG04. Les courbes pour les autres solutions modèles peuvent être retrouvées dans l'annexe H. Une courbe d'ajustement est tracée en utilisant le modèle de Carreau-Yasuda (équation 30) où μ_1 représente la viscosité du premier plateau, μ_2 la viscosité du deuxième plateau, λ le temps de relaxation, $\dot{\gamma}$ le taux de cisaillement, a le paramètre définissant la transition entre le premier plateau et la région rhéofluidifiante et x un paramètre lié à la pente de la région rhéofluidifiante.

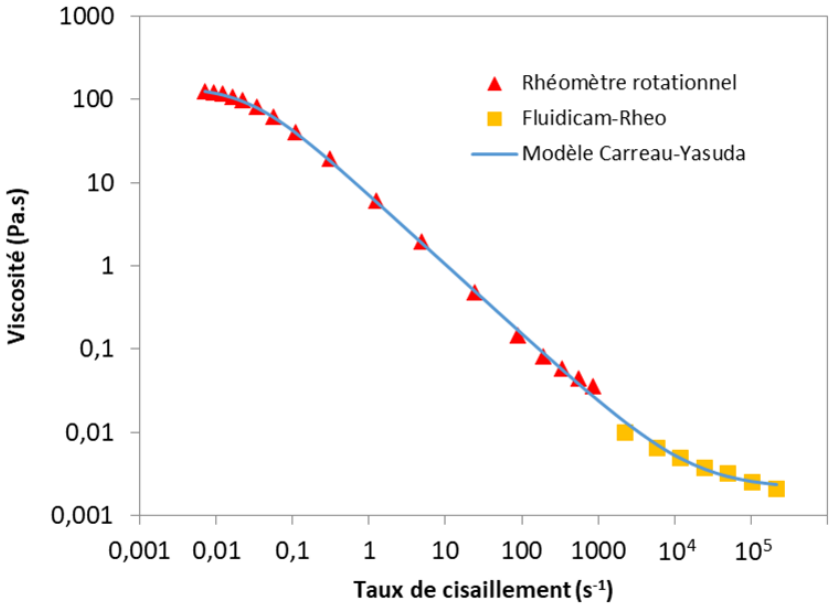


Figure 64. Exemple de courbe d'écoulement réunissant les données du rhéomètre AR1000 et les mesures à haut taux de cisaillement effectués par la société formulation. Un ajustement par le modèle de Carreau-Yasuda relie l'ensemble des points. Solution utilisée : WPI3XG04. Mesures effectuées à 20 °C.

$$\frac{\mu - \mu_1}{\mu_1 - \mu_2} = \frac{1}{(1 + (\lambda\dot{\gamma})^a)^{\frac{x}{a}}} \tag{30}$$

Le tableau 3 présente les paramètres du modèle Carreau-Yasuda pour toutes les solutions non-newtoniennes à base de gomme xanthane. N'ayant pas pu être caractérisées à taux de cisaillement élevés avec l'appareil Fluidicam^{RHEO}, les solutions à base de gomme xanthane contenant des caséinates de sodium (CAS3XG04) et celle contenant des protéines sériques et NaCl (WPI3XG04-NaCl) ont été modélisées en utilisant la viscosité du deuxième plateau (μ_2) de la solution WPI3XG04. Le tableau 4 affiche les résultats de la viscosité pour les solutions newtoniennes.

Tableau 3. Paramètres du modèle Carreau-Yasuda pour les solutions à caractère rhéofluidifiant à 20 °C.

Solution	μ_1	μ_2	a	λ	x
-	*Pa.s*	*mPa.s*	-	*s*	-
WPI3XG02	22	1,26	1,40	21,32	0,78
WPI3XG035	103	1,76	1,62	38,37	0,82
WPI3XG04	146	2,08	1,12	34,00	0,85
WPI3XG05	222	2,16	1,48	42,99	0,86
XG04	42	1,82	2,02	30,28	0,79
WPI3XG04+NaCl	124	2,08	1,50	43,88	0,82
CAS3XG04	182	2,08	1,50	55,92	0,83

Tableau 4. Viscosité des solutions newtoniennes à 20°C.

Solution	Viscosité
-	*mPa·s*
WPI3	1,4
Glycérol 60%	10,8
Glycérol 50%	6,0
Glycérol 40%	3,7
Eau	1,0

3.3.4 Taux de cisaillement apparent et viscosité apparente de la solution dans le procédé

Des taux de cisaillement très élevés peuvent être mis en jeu à l'intérieur de dispositifs microfluidiques, atteignant 10^4 - 10^6 s^{-1} (Kang *et al.*, 2005 ; Pan, 2013 ; Sharp *et al.*, 2006), ce qui est comparable aux gradients de vitesse engendrés dans un système de type rotor-stator, soit 10^5 s^{-1} (Paul *et al.*, 2004). Le taux de cisaillement apparent dans le procédé est donné par la relation 31. k_s étant une constante qui dépend de la géométrie. Pour le cas des écoulements à travers des canaux de section carrée la constante de cisaillement Ks est 7,11 (annexe G) tandis qu'elle a une valeur égale à 8 pour les écoulements en conduit circulaire (Schramm, 2006).

$$\dot{\gamma}_{app} = k_S \frac{U_L}{D_h} \tag{31}$$

La viscosité de la solution, quant à elle, peut être également évaluée dans différentes parties du procédé. Elle est calculée grâce à l'utilisation du modèle de Carreau-Yasuda au taux de cisaillement du procédé (équation 30).

4 Description du banc expérimental

4.1 Installation

La figure 65 présente une description de l'installation dédiée à l'élaboration de mousses avec les dispositifs microfluidiques. La base liquide (1) est pompée grâce à l'utilisation d'une pompe à trois pistons AP-TRIX d'Armen Instruments (2) jusqu'au dispositif microfluidique (3). Parallèlement, une bouteille de gaz comprimé (4) fournit de l'azote (N_2) gazeux dont le débit est contrôlé à l'aide d'un débitmètre massique EL-FLOW Prestige Bronkhorst (5).

Deux capteurs de pression Gems 3100 (6) avec une gamme de fonctionnement 0 - 10 bars (relative) permettent de relever les valeurs de la pression d'injection du gaz et la pression en sortie du microsystème. Un troisième capteur (7) ayant une plage de fonctionnement de 0 à 25 bars (relative) est placé dans la ligne d'alimentation de la solution en amont du microsystème afin de vérifier les valeurs de pression fournies par la pompe à trois pistons. Une première visualisation de l'écoulement diphasique gaz-liquide formé a lieu directement dans les microcanaux en utilisant une caméra rapide HighSpeedStar6 La Vision (8) avec une lampe Halogène OSRAM de 12 V 50W en rétroéclairage (9). L'écoulement gaz-liquide se poursuit en sortie du dispositif à travers un premier tuyau de 0,16 cm de diamètre interne et d'1 m de longueur (10). A ce niveau, une cellule de visualisation en ligne est positionnée dans le but de visualiser l'état de l'écoulement et des trains de bulles (11). La caméra rapide (8) et l'éclairage halogène (9) sont également utilisés pour les visualisations dans cette cellule. Ensuite, un diffuseur graduel assure le passage du fluide vers un tuyau flexible en polytétrafluoroéthylène (PTFE) ayant un diamètre interne de 1 cm et une longueur d'environ 5 m (12) ; ce qui permet une détente progressive et une diminution de l'effet des pulsations éventuelles de la pompe. Une cellule de visualisation est également placée en sortie (13) afin de piéger la mousse en sortie de la ligne de production et d'évaluer les propriétés structurales du produit final, notamment la taille des bulles. Une caméra CCD Sony XCL-5005 de 5 M pixels de résolution (14) permet la prise des images de la mousse en sortie. L'éclairage de ces photos est contrôlé grâce à l'utilisation d'une source annulaire de lumière Schott KL 1500LCD utilisée en rétroéclairage (15).

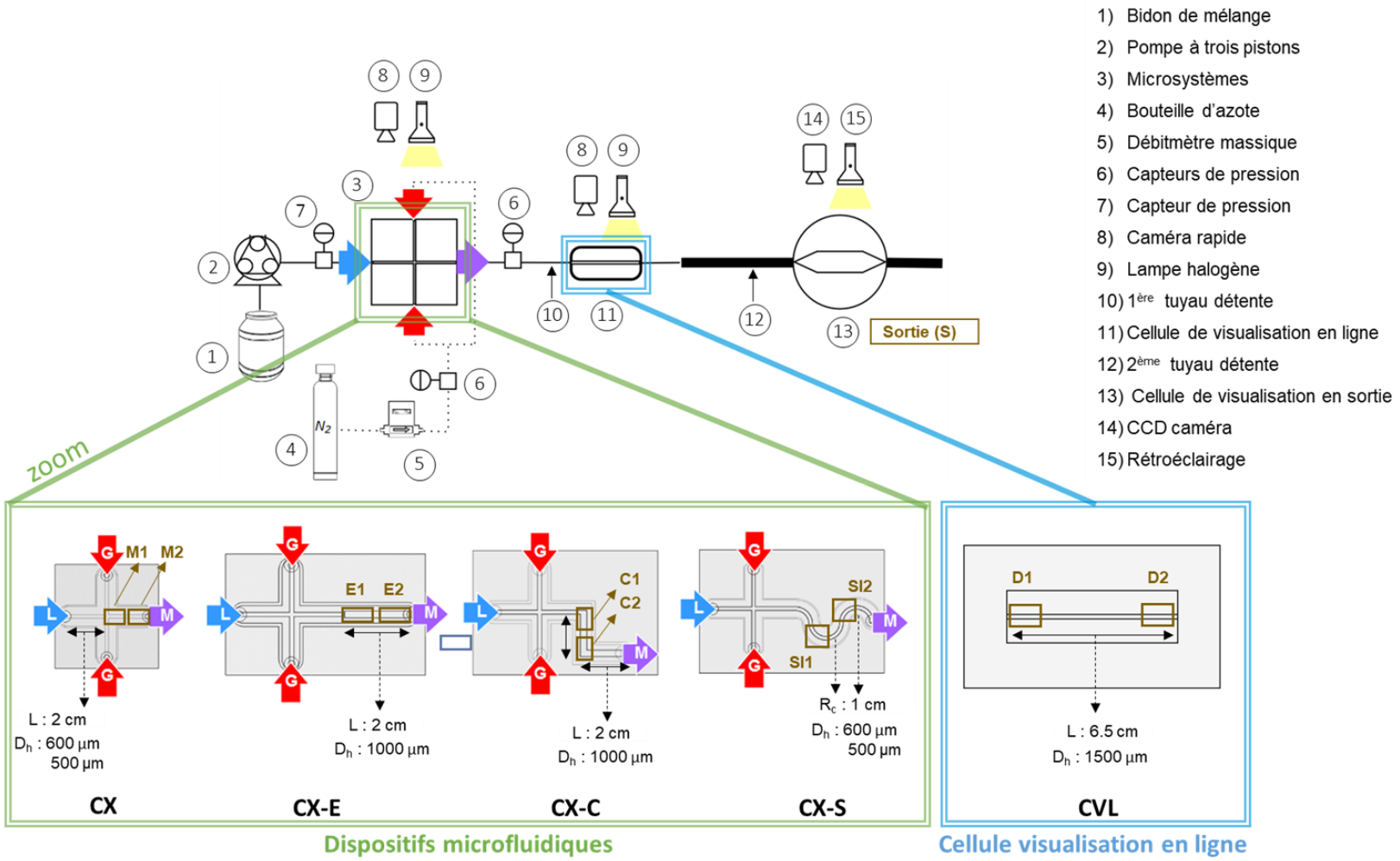


Figure 65. Schéma du banc expérimental et des dispositifs microfluidiques employés. Les cadres noirs portés sur les schémas des dispositifs microfluidiques et la cellule de visualisation indiquent les zones faisant l'objet d'une étude par visualisation de l'écoulement.

4.2 Dispositifs microfluidiques et cellule de visualisation en ligne

Différentes géométries de microcanaux sont proposées pour la présente étude dans le but d'évaluer les effets que les singularités géométriques peuvent avoir sur l'évolution des bulles (équilibre coalescence-fractionnement). La figure 66 présente les microsystèmes utilisés. Ces dispositifs ont été fabriqués par Jean-Luc HAUSER (GEPEA) à l'IUT Saint-Nazaire à partir de deux plaques en PMMA®. Les canaux sont ainsi gravés sur la plaque supérieure et une gorge les entourant permet l'insertion d'un joint assurant l'étanchéité. Les deux plaques sont ensuite fixées à l'aide de vis (type M10) permettant ainsi aux dispositifs de supporter des pressions élevées.

Les microsystèmes présentés dans la figure 66 comportent tous une partie en croix formée de 4 canaux de section carrée et de longueur, L, valant 2 cm qui se croisent avec des angles de 90°. Chaque dispositif est décliné en deux versions ; l'une comporte des canaux ayant un diamètre hydraulique (D_h) égal à 600 µm et l'autre des canaux de 500 µm afin de pouvoir étudier le cas échéant des plages de nombres de Reynolds plus étendues. Au sein de la croix de chaque dispositif, l'un des 4 canaux est alimenté avec la solution moussante (L), les deux canaux qui lui sont perpendiculaires admettent le gaz (G) et le dernier canal reçoit et véhicule le mélange gaz/liquide (M) ; ce dernier est dénommé 'canal de mélange'.

Chaque dispositif est désigné par une référence qui commence par les lettres CX, abréviation du mot croix. Trois des dispositifs, CX-E, CX-C et CX-S, incorporent également la présence d'une singularité géométrique qui fait suite au canal de mélange. Dans l'un des dispositifs, CX-E, il s'agit d'un élargissement (E) abrupt, décentré du canal de mélange (alignement des côtés supérieurs de deux canaux), ayant une longueur de canal de 2 cm et un diamètre hydraulique de 1000 µm. Dans le dispositif désigné par CX-C, deux sections de canaux de 1000 µm de côté sont introduites à la suite du canal de mélange avec un angle de 90° formant ainsi deux coudes (C). Le passage du canal de mélange au premier coude est donc couplé avec un élargissement. Enfin, le dernier dispositif présente une singularité en forme de sinusoïde (S). Cette sinusoïde est formée par un canal de section carrée ayant un diamètre hydraulique de 600 µm ou 500 µm et un rayon de courbature (R_c) de 1 cm. Au total, 8 dispositifs sont donc mis à la disposition de cette étude, comprenant, comme indiqué, une série de 4 dispositifs avec une base en croix formée de canaux de diamètre hydraulique égal à

600 µm et une deuxième série où les canaux de la croix ont un diamètre hydraulique de 500 µm.

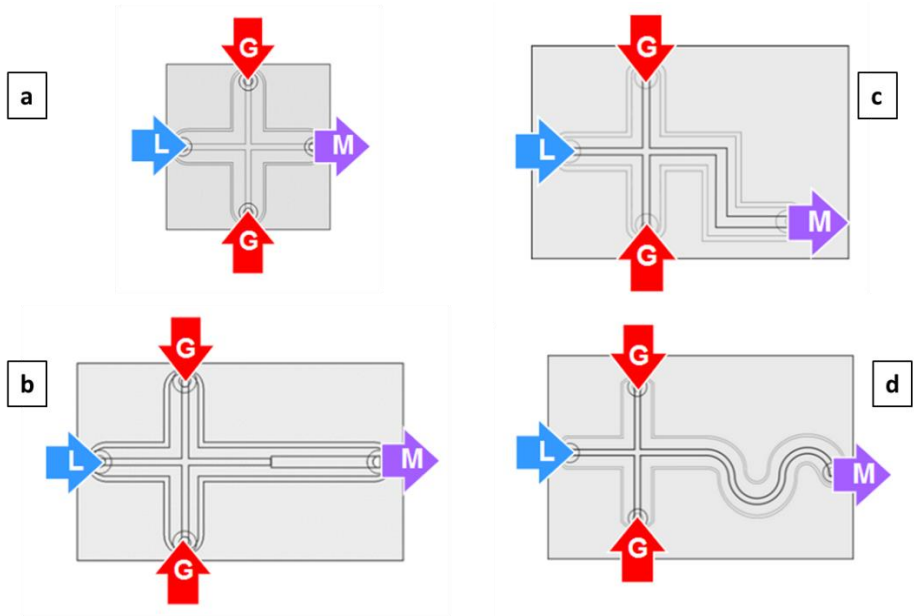


Figure 66. Géométries pour les dispositifs utilisés. **a)** Géométrie de base comportant un arrangement des canaux en croix **b)** dispositif CX-E avec un élargissement incorporé dans le microcanal de sortie de la mousse (ou canal de mélange) **c)** dispositif CX-C ayant des coudes dans le canal de sortie de la mousse **d)** dispositif CX-S incluant un canal sinusoïdal dans le microcanal de sortie de la mousse. Liquide (L), Gaz (G) et mousse (M).

Quant à la cellule de visualisation en ligne (figure 67), elle a également été fabriquée en PMMA®. Elle comprend un canal usiné dans une plaque de PMMA. Le canal a une section carrée avec un diamètre hydraulique de ≈1600 µm et une longueur de 6,5 cm. Une deuxième plaque est collée sur la première et ces deux plaques sont fixées à l'aide des vis pour renforcer la solidité de l'ensemble. L'arrivée du tuyau d'amenée du mélange gaz liquide se fait à un angle 0º, c'est-à-dire en continuité avec l'axe du canal de visualisation. L'entrée et la sortie du fluide par piquage, c'est-à-dire perpendiculairement au canal et formant un coude avec celui-ci, auraient facilité la conception et la réalisation de cette cellule. Cependant, cela aurait constitué une singularité perturbant l'écoulement et empêchant ainsi de s'approcher des conditions d'écoulement habituelles dans le premier tuyau de sortie.

Techniquement, le passage direct d'une section circulaire (tube de sortie) à une section carrée (CVL) a rendu complexe la conception de ce dispositif. La surface de la section du tuyau a été conservée dans la section carrée de manière à perturber le moins possible l'écoulement. Afin d'assurer une totale étanchéité au système, il a été nécessaire d'ajouter de la paraffine sur le plan situé autour du canal de section carrée.

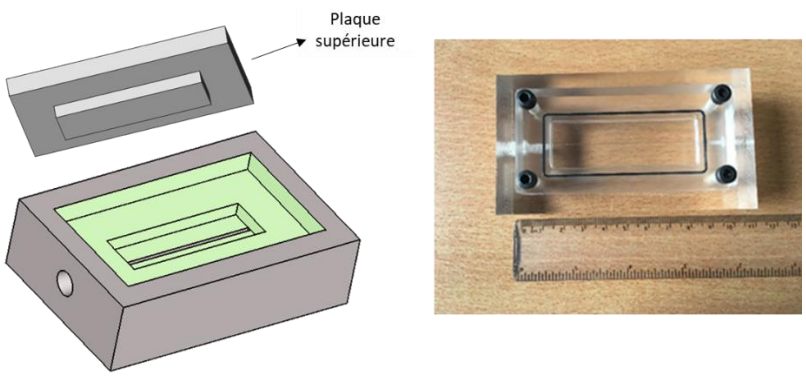


Figure 67. Représentation schématique et photo de la cellule de visualisation en ligne (CVL).

5 Élaboration de mousses (foisonnement)

5.1 Conditions opératoires

La mousse est élaborée dans les microcanaux grâce à l'injection d'un gaz au sein d'une matrice liquide. Le mélange de ces deux fluides est initié par la formation de bulles au centre de la croix présente à l'intérieur des microsystèmes. En présence de conditions appropriées, le train de bulles formé continue d'évoluer au sein du microsystème et dans l'ensemble de l'installation (équilibre coalescence-fractionnement) conduisant à une opération de foisonnement permettant de récupérer des mousses en sortie du procédé. Le gaz utilisé pour cette étude est de l'azote gazeux N_2, choisi en raison de sa faible solubilité dans l'eau (Weaire & Hutzler, 2001). Cette faible solubilité contribue légèrement à la stabilisation des mousses en diminuant la diffusion du gaz et donc l'érosion des petites bulles par mûrissement d'Ostwald.

L'arrivée du gaz (G) s'effectue par deux canaux se faisant face et formant un angle de 90° par rapport au canal d'entrée de la solution (L) (figure 66). Il convient de noter que pour des raisons de fabrication des dispositifs, tous les fluides sont admis et sortent avec un angle de 90° par rapport au plan des canaux gravés. La configuration choisie pour l'injection des fluides a été décrite dans une étude antérieure menée sur des dispositifs en croix comme étant la plus efficace pour la production de mousses dans ce type de dispositifs (Laporte, 2014). Les débits utilisés pour l'injection de la phase continue (la base liquide) se trouvent généralement dans la plage de 10-20 $L.h^{-1}$ (200-350 $mL{\cdot}min^{-1}$). Ces débits sont beaucoup plus importants que ceux généralement mis en œuvre dans la microfluidique classique, débits qui dépassent rarement ~1 $mL.min^{-1}$ (Cubaud & Ho 2004 ; Fu & Ma 2015 ; Haase, 2016). Le débit du gaz est réglé en fonction de la fraction de vide souhaitée dans le produit final. En

présence d'élargissement du canal observé (CX-E et CX-C), il a été nécessaire d'effectuer quelques visualisations à des débits liquides plus faibles, c'est-à-dire des débits de l'ordre de 3 $L.h^{-1}$ (50 $ml \cdot min^{-1}$). En effet, l'observation n'était pas concluante à débit plus élevé en raison de la superposition d'un trop grand nombre de bulles.

5.2 Étude hydrodynamique

Parallèlement aux visualisations et à la caractérisation granulométrique des bulles et des mousses, une étude de l'hydrodynamique des écoulements est menée de manière systématique. Ceci permet l'identification des plusieurs paramètres d'importance pour la compréhension des phénomènes physiques tels que les vitesses superficielles des fluides, la chute de pression dans le microsystème et la fraction de vide. D'autre part, la viscosité apparente de la solution dans le procédé et la masse volumique du gaz à la pression d'injection sont des paramètres physicochimiques qui sont tributaires des paramètres de procédé fixés.

Les chutes de pressions et les pressions en tête dans l'installation sont présentées dans la figure 68. Au niveau du dispositif ou zone 1, les capteurs intégrés permettent de calculer la chute de pression ΔP_1 comme P_{inj} - P_2. Dans la zone 2 et zone 3 les chutes de pression sont estimées en utilisant la loi de Hagen-Poiseuille (équation 32) où L est la longueur du tuyau, U_L la vitesse superficielle du liquide, μ_L la viscosité de la solution calculée au taux de cisaillement apparent et D le diametre du tuyau. Dans les zones 2 et 3, les nombres de Reynolds sont généralement inférieurs à 1000, ce qui justifie l'utilisation de la loi de Hagen-Poiseuille, valide pour des régimes laminaires. La pression en tête P_3 peut à présent être estimée avec l'équation 33. De façon similaire P_4 peut être estimé comme P_3 - ΔP_3.

$$\Delta P = \frac{32 \mu_L U_L L}{D^2} \tag{32}$$

$$P3 = P2 - \Delta P2 \tag{33}$$

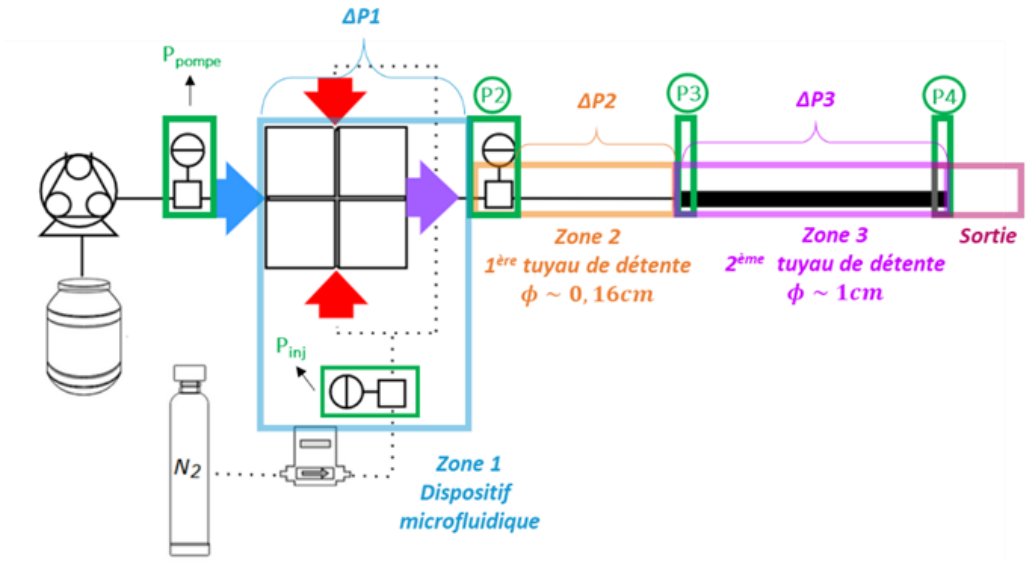


Figure 68. Schéma de l'installation décrivant les différentes parties où les pressions et chutes de pressions sont mesurées.

Connaissant les différents paramètres du procédé et les propriétés physiques des fluides utilisés, il est envisagé dans ce travail d'analyser et de déterminer les rapports des forces impliquées dans le fractionnement des bulles et donc impactant la genèse des mousses. L'interaction de ces forces peut être représentée grâce à des équations mettant en jeu des nombres adimensionnels tels que les nombres de Reynolds, *Re* (équation 34), le nombre capillaire, *Ca* (équation 35), et le nombre de Weber, *We* (équation 36). Dans ces équations, U_L correspond à la vitesse superficielle du liquide, ρ_L est la masse volumique de la solution, μ_L la viscosité de la solution, σ la tension interfaciale et D_h le diamètre hydraulique. Ces nombres sont souvent utilisés pour décrire les phénomènes observés aux échelles micrométriques (Mohammadi & Sharp, 2013). Ces nombres sont exprimés par rapport au fluide qui contribue le plus aux caractéristiques de l'écoulement (Anna, 2016 ; Christopher & Anna, 2007), lequel dans le cas des mousses correspond à la phase liquide, d'où l'indice *L* dans ces équations.

$$Re_L = \frac{forces\ inertielles}{Forces\ visqueuses} = \frac{U_L \rho_L D_h}{\mu_L} \quad (34)$$

$$Ca_L = \frac{forces\ visqueuses}{forces\ interfaciales} = \frac{\mu_L U_L}{\sigma} \quad (35)$$

$$We_L = \frac{forces\ inertielles}{forces\ interfaciales} = \frac{\rho_L U_L^2 D_h}{\sigma} \quad (36)$$

5.3 Viscosité de la mousse dans le procédé

La viscosité de la mousse dans le procédé est modélisée en utilisant l'équation de Krieger-Dougherty (équation 37). Cette relation est souvent employée pour estimer la viscosité de systèmes dispersés (Coussot & Guyon, 2014 ; Rao, 2007 ; Rust & Manga, 2002).

$$\mu_M = \mu_L \left(1 - \frac{\alpha_{exp}}{\emptyset_{max}}\right)^{-B\emptyset_{max}} \quad (37)$$

$Ø_{max}$ représente le compactage maximal compris entre 0,62 pour des sphères monodisperses (Barnes, 1999) et des valeurs > 0,62 pour des systèmes polydisperses (Farr & Groot, 2009). $Ø_{max}$ est également réputé dépendre de la contrainte de cisaillement appliquée. En effet, à de hautes contraintes, l'écoulement peut réorganiser les particules en couches ce qui se traduit par des valeurs plus élevées de $Ø_{max}$, autour de 0,7 (Barnes, 1999) et donc des valeurs plus faibles de viscosité. Une valeur moyenne de 0,65 a été choisie pour les estimations à mener dans cette étude. Quant à *B*, il a normalement une valeur de 2,5 pour le cas de sphères non-déformables (Rao, 2007). Cependant, il peut aussi être considéré comme un paramètre d'ajustement (Mueller *et al.*, 2010). Une valeur de 1 pour le paramètre *B* a bien ajusté le modèle aux données obtenues avec le rhéomètre AR1000 pour une mousse ayant une fraction de vide 0,57 fabriquée à partir la solution WPI3XG04 avec un des microsystèmes (figure 69).

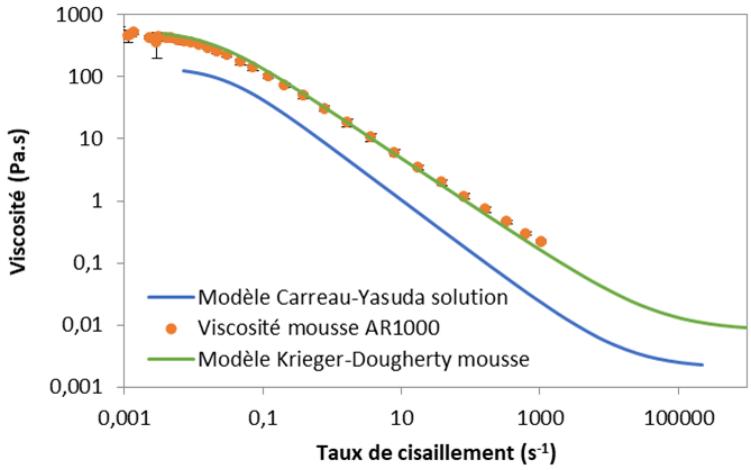


Figure 69. Exemple de modélisation menée avec le modèle de Krieger-Dougherty (ligne solide verte) de la viscosité d'une mousse produite dans cette étude. La ligne solide bleue correspond au modèle Carreau-Yasuda de la solution WPI3XG04 employée pour la production de la mousse ici évaluée.

6 Caractérisation des bulles dans les microcanaux

6.1 Mise en œuvre des visualisations

Les dispositifs microfluidiques étant des systèmes de géométrie relativement simple, il est possible de réaliser des prototypes transparents afin d'accéder à une visualisation directe de l'écoulement. Ceci peut se révéler fondamental pour la compréhension physique des écoulements multiphasiques. En effet, la plupart des techniques expérimentales utilisées pour la caractérisation des écoulements dans les microcanaux impliquent une observation directe de l'écoulement en utilisant l'imagerie à haute vitesse (Mohammadi & Sharp, 2013).

Dans la présente étude, une caméra rapide HighSpeedStar 6 (La Vision) est employée pour observer la typologie de l'écoulement et pour avoir accès aux tailles et distribution de taille, formes et éventuellement à la fréquence de production des bulles (figure 70a). Une lampe halogène OSRAM 12V 50W 24° 870lm 3000K est utilisée en rétroéclairage. La sélection du système d'éclairage a été réalisée en considérant les besoins d'éclairage pour des temps d'exposition très courts nécessaires pour capturer les bulles qui se déplacent à des vitesses autour de 20 m/s. Des composants optiques Navitar ont été également montés sur la caméra pour améliorer les visualisations, notamment un objectif Precise Eye X0,5, un adaptateur 0,67 et un jeu de bagues allonges de 40, 20 et 10 mm (figure 70a). La distance optimale de travail est d'approximativement 10 cm. Les images obtenues avec ces réglages ont une résolution de 1024 x 1024 pixels (figure 70b) pour une surface d'observation d'approximativement 1,13 x 1,13 cm^2.

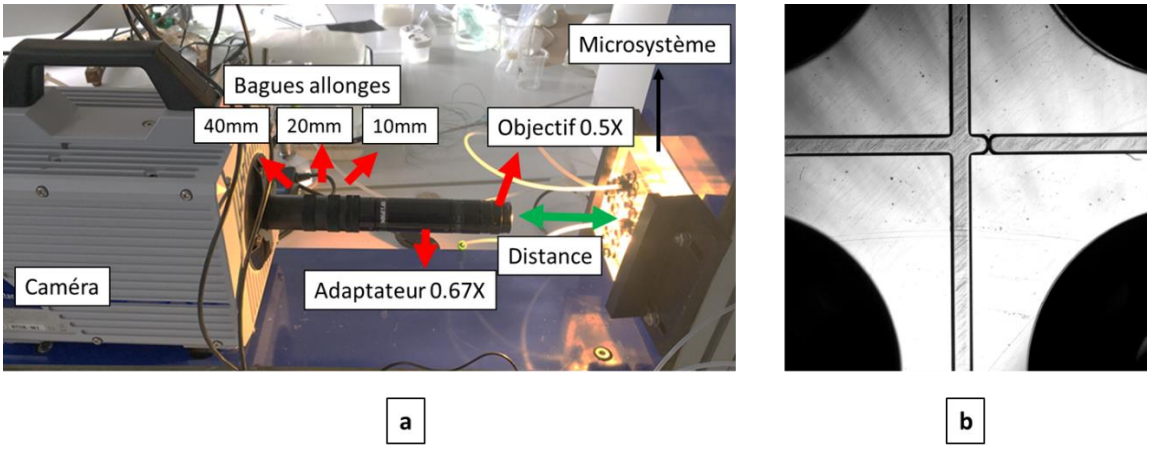


Figure 70. Banc de visualisation des bulles à l'intérieur des microsystèmes.

6.2 Conditions d'acquisition à haute vitesse

Le banc de visualisation décrit précédemment est piloté par le logiciel Photrom FASTCAM Viewer qui permet de déclencher la prise d'images ainsi que le réglage de plusieurs paramètres tels que le temps d'exposition, la fréquence d'acquisition et la résolution. Afin de "geler" le mouvement d'une bulle, allant à des vitesses autour de 20 $m.s^{-1}$, un temps d'exposition (*shutter speed*) très court, 1µs, doit être employé. À ce temps d'exposition très court, il faut utiliser une source de lumière assez puissante pour éclairer suffisamment la capture du mouvement. Une fréquence de 5000 images par seconde est utilisée. Le temps entre deux images successives (*interframe time*) est donc d'environ 0,2 ms. Le champ d'observation peut être réduit avec le logiciel pour visualiser seulement la zone d'intérêt et ne pas alourdir la taille des images. Les images ainsi obtenues ont des résolutions qui sont typiquement de l'ordre 1000 x 100 pixels ce qui correspond à un champ d'observation d'environ 10 mm x 1 mm. La figure 71 illustre le mouvement figé de bulles traversant la zone M1 aux conditions de réglage décrites.

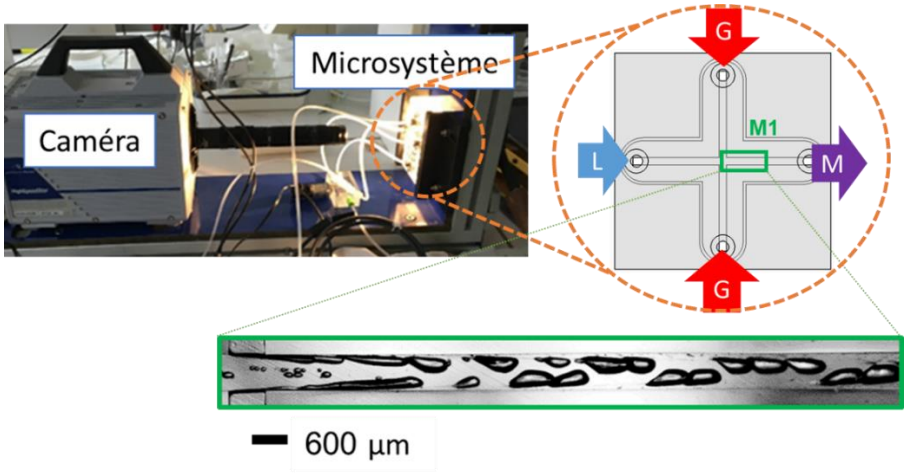


Figure 71. Illustration de la capture du mouvement des bulles dans la zone d'intérêt M1 du microsystème CX600.

Le choix d'une prise d'images à une fréquence de 5000 images par seconde résulte d'un compromis entre la résolution des images capturées et la nécessité de visualiser l'ensemble du train de bulles au cours de sa traversée du champ d'observation. La fréquence de capture choisie permet ainsi de suivre les bulles sur quelques images successives tout en permettant une résolution axiale suffisante pour visualiser le train de bulles. La figure 72 présente une série de 4 images successives qui permet d'observer le train des bulles à des intervalles de 0,2 ms (*interframe time*). Il est aussi possible de suivre le mouvement de certaines bulles grâce à la présence d'artefacts (flèche jaune) ; ces artefacts correspondent

souvent à des bulles minuscules incorporées dans la solution au moment de sa préparation lors de l'addition des poudres à l'eau. Il est important de préciser que la quantité d'images capturées est limitée non seulement par la fréquence d'acquisition réglée, mais aussi par la mémoire interne de la caméra. Il n'est pas possible de stocker directement dans un ordinateur les images simultanément à la capture des images. La caméra a une capacité maximale de stockage interne de 8GB, ce qui permet aux conditions de réglages définies d'obtenir des films d'une durée de 1,0914 s et de récupérer un total de 5456 images.

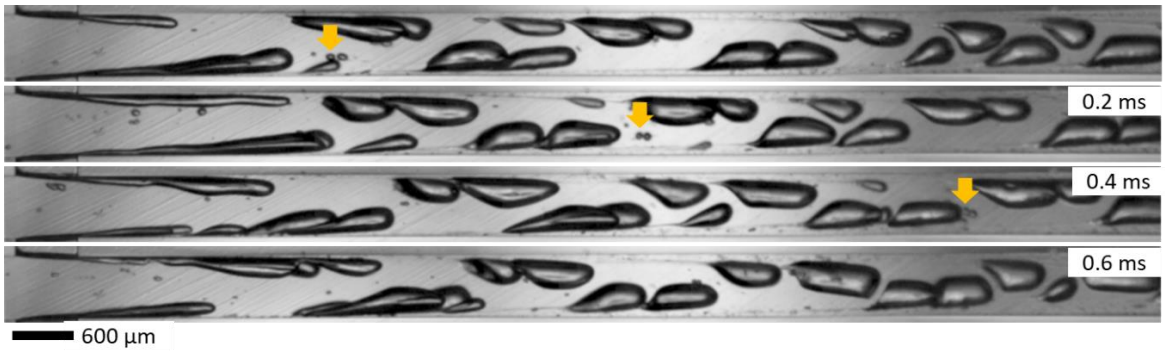


Figure 72. Série de 4 images prises à une fréquence d'acquisition de 5000 images par seconde.

6.3 Validation des dimensions mesurées des bulles capturées à haute vitesse d'écoulement

Il est nécessaire de valider les formes des bulles et la mesure de leurs dimensions. En effet, ces mesures pourraient être faussées si la durée d'exposition n'est pas correctement choisie au regard des vitesses élevées de circulation des bulles. En effet, si la durée d'exposition est trop longue, l'objet observé est flou et déformé. La mesure de l'incertitude dans la détermination des dimensions des bulles est effectuée en suivant l'équation 38 :

$$\%\ incertitude = \frac{distance\ parcourue\ par\ une\ bulle\ pendant\ la\ capture\ (\mu m)}{diametre\ d'une\ bulle} * 100 \qquad 38)$$

L'incertitude a été évaluée dans les conditions suivantes : une bulle traverse le canal de 600 µm de côté du dispositif CX600 à des débits parmi les forts étudiés (Q_L = 16,4 $L.h^{-1}$ et Q_G = 31 $g.h^{-1}$). La figure 73 montre deux images successives dans ces conditions. Des artefacts (flèche jaune) permettent l'identification et le suivi d'une bulle (cercle vert). La mesure de la distance parcourue par cette bulle (3950 µm) entre deux images (0,2 ms) permet

le calcul de sa vitesse de déplacement, soit 19,8 $m.s^{-1}$. Avec cette vitesse et connaissant le temps d'exposition pendant la prise d'une photo (1 µs), il est possible de déterminer que la bulle s'est déplacée de 19,8 µm pendant le temps d'exposition. Pour calculer l'incertitude, la moyenne des diamètres équivalents pour cette condition d'écoulement (≈ 325 µm) a été utilisée (voir sous-section 6.5 pour calcul des diamètres des bulles). L'incertitude est donc de [100*(19,75/325)] = 6,07 %, ce qui est une valeur acceptable, rappelant qu'il s'agit d'une valeur haute puisque que des conditions extrêmes d'écoulement ont été utilisées pour cette détermination.

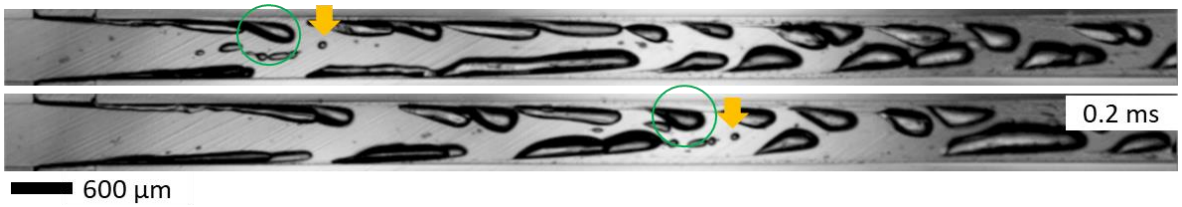


Figure 73. Illustration sur la détermination de la vitesse d'une bulle (cercle vert) à partir de visualisation de deux images successives (images d'un train de bulles lors du foisonnement de la solutionWPI3XG04 dans le dispositif CX600 à et débits Q_{vL} = 16,4 $L.h^{-1}$-Q_{mG} = 31 $g.h^{-1}$.

6.4 Traitement d'images

Le traitement et l'analyse des images récupérées par la caméra rapide s'effectue sur le logiciel libre ImageJ. Le protocole suivant, illustré dans la figure 74, a été adopté pour le traitement des bulles dans les microcanaux. D'abord, le fond de l'image original (a) est lissé en utilisant la fonction *substract background* (b). Ensuite, le contraste des microstructures et le fond de l'image sont améliorés en utilisant la fonction *enhance contrast* (c). Puis l'image est seuillée pour séparer le fond et premier plan avec la fonction de seuillage *threshold (d)* ; le seuillage est toutefois réalisé manuellement en choisissant le niveau de gris seuil de telle sorte que les bulles soient bien définies. Après binarisation, les bulles présentant des « trous » sont remplies en utilisant la commande *fill holes* (e). Les quelques bulles qui ne sont pas remplies automatiquement par la fonction *fill holes* peuvent être fermées manuellement et remplies en utilisant à nouveau *fill holes* (f). Ensuite, une fonction de type ligne de partage, *watershed* (g), est appliquée ; celle-ci permet une segmentation de l'image favorisant la séparation de bulles collées. Trois applications de la commande *open* (h) sont réalisées par la suite. La commande *open* est caractérisée par une érosion suivie d'une dilatation qui permet d'éliminer les petits pixels noirs qui ne correspondent pas aux bulles et qui pourraient se retrouver dans l'analyse de tailles, déformant les résultats. Une sélection de la zone d'évaluation (i) peut être faite afin de sélectionner les bulles qui sont vraiment bien définies pour les utiliser dans

l'étude de la distribution de taille. Après avoir établi la calibration de l'image, la taille des bulles est déterminée et le tableau des données est traité et analysé sur un tableur. Avec les éléments utilisés pour l'acquisition des images, la taille minimale des bulles qu'il était possible de caractériser correctement était de l'ordre de 40 à 50 µm (diamètre équivalent estimé).

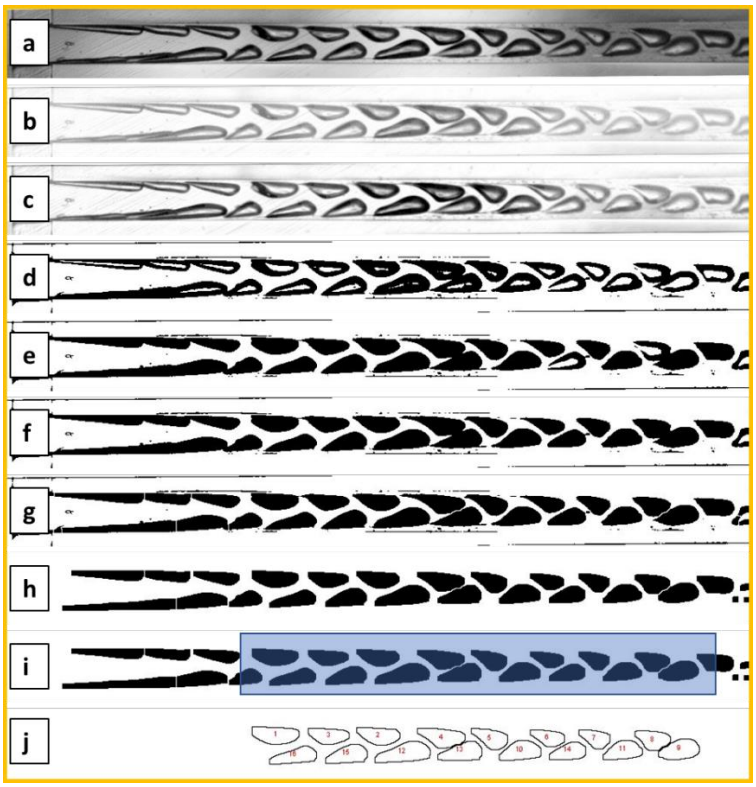


Figure 74. Illustration des différentes étapes du protocole de traitement des images suivi dans le logiciel ImageJ. Exemple de train de bulles capturé dans le dispositif CX600 en utilisant la solution WPI3XG04 avec un débit liquide Q_L = 11 L·h^{-1} et un débit massique de gaz de Q_G = 21,6 g·h^{-1}.

6.5 Granulométrie

Un nombre suffisant d'images entre 50 – 100 permet d'obtenir un nombre significatif et suffisant de bulles (> 500) en vue de l'analyse de la distribution de taille des bulles traversant la région M1 du canal de mélange. Puisque, dans la plage des débits utilisés, une même bulle peut apparaitre dans trois images successives, il est nécessaire de trier les photos en exploitant une photo toutes les quatre photos. De cette manière on évite une double estimation des mêmes bulles. L'analyse effectuée par ImageJ fournit la dimension axiale maximale (L) (*maximum caliper diameter*) qui correspond à la dimension la plus grande de la bulle comme si elle était mesurée à l'aide d'un pied à coulisse (figure 75a). De même, la dimension radiale maximale (B) (*minimum caliper diameter*) est mesurée. Pour le cas des

bulles visualisées dans les microcanaux, la figure 75b présente un exemple des dimensions L et B mesurées par ImageJ.

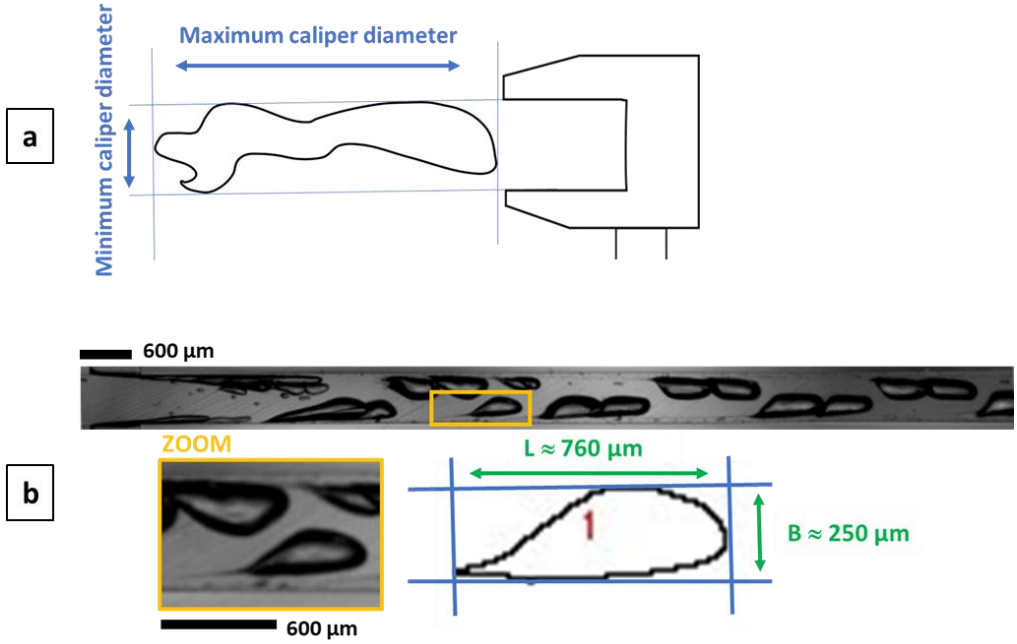


Figure 75. a) principe de mesure de dimensions d'ImageJ. **b)** illustration de la mesure de dimensions pour le cas d'une bulle traversant les microcanaux.

Ces informations sont ensuite utilisées pour calculer le volume (équation 39) de la bulle dont la forme est assimilée à un cylindre avec L la longueur et B le diamètre. Ensuite, un diamètre sphérique équivalent (équation 40) est calculé à partir du volume calculé. Ces diamètres équivalents sont par la suite corrigés pour obtenir des diamètres correspondant à la pression atmosphérique P_{atm} en utilisant la loi de Boyle (équation 41). P dans l'équation 41 correspond à la pression à l'entrée du dispositif microfluidique. Ces pressions étaient assez fiables malgré de légères variations observées (annexe J point a). Cette normalisation des diamètres des bulles permettra ultérieurement de réaliser des comparaisons avec les tailles des bulles calculées en sortie du procédé. Finalement, les diamètres calculés à pression atmosphérique sont utilisés pour les calculs des distributions de taille en nombre et en volume ainsi que d'autres paramètres pertinents dans l'étude de la granulométrie de systèmes dispersés tel que le diamètre de Sauter, d32, (Aguilera, 2008 ; Kowalczuk & Drzymala, 2016). En effet, les bulles présentant des phénomènes de surface qui impactent leur comportement et leur évolution (Cohen-Addad *et al.*, 2013 ; Foegeding *et al.*, 2006) sont souvent modélisées en choisissant, logiquement, le diamètre de Sauter comme paramètre cible lors des analyses dimensionnelles (Barik & Roy, 2009 ; Mary *et al.*, 2013). Une

illustration de la distribution de taille des bulles dans la zone M1 est présentée dans la figure 76.

$$V = \frac{\pi B^2 L}{4} \tag{39}$$

$$V = \frac{\pi d_{eq}^3}{6} \tag{40}$$

$$\frac{d}{d_{atm}} = \left(\frac{P_{atm}}{P}\right)^{1/3} \tag{41}$$

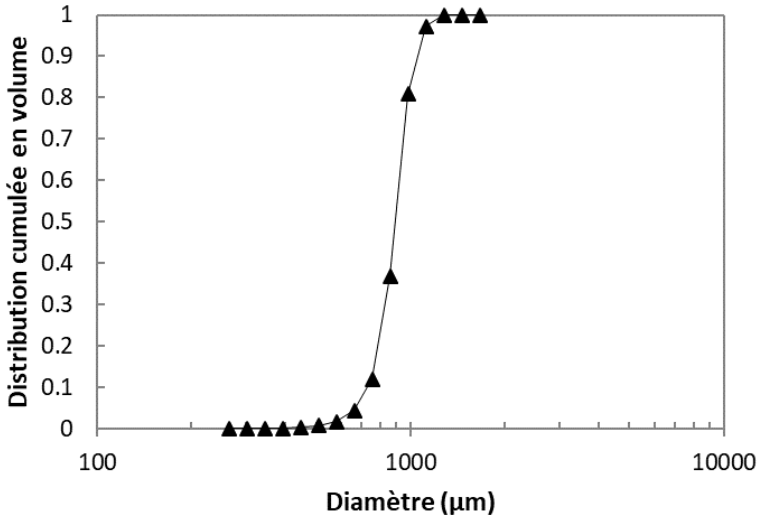


Figure 76. Exemple de distribution de taille de bulles dans la zone M1 du dispositif CX600 en utilisant la solution WPI3XG04 avec un débit liquide Q_{vL} = 11 L.h^{-1} et un débit massique Q_{vG} = 21,6 g.h^{-1}. 240 images ont été traitées pour cet exemple et un total de 820 bulles ont été utilisées pour construire cette distribution.

6.6 Déformation et fractionnement des bulles

La caractérisation de la déformation des milieux dispersés étudiés est envisagée en utilisant des outils assez classiques. La courbe de Grace (Grace, 1982), en particulier, est un outil amplement utilisé à cet égard. Bien que développée à l'origine pour les dispersions liquide-liquide (émulsions), cette méthodologie d'analyse a également été appliquée précédemment au cas des bulles (Müller-Fischer *et al.*, 2008). Le nombre capillaire de bulle (équation 42) a été donc calculé ainsi que le rapport des viscosités (équation 43). Le diamètre dans la relation 42 correspond au diamètre équivalent calculé dans la section 6.5. Dans la relation 43, la viscosité du gaz est celle du diazote à température ambiante (1,75 x 10^{-5} Pa·s à 20°C), et celle du liquide correspond à la viscosité dans le procédé de la solution dans la zone M1, calculé au taux de cisaillement apparent d'après l'équation 30. Dans certaines zones du procédé, notamment dans la zone E2 (figure 65), en raison d'un long étirement observé

typiquement sur une partie de la bulle, une approche basée sur les travaux sur les étirements de filaments (Driessen, 2013 ; Rayleigh, 1878) a été également appliquée. Dans ce but, un rapport d'aspect (équation 44) du filament visualisé (figure 77) et le nombre adimensionnel d'Ohnesorge (équation 45) sont calculés et les résultats sont superposés sur la courbe décrivant les conditions nécessaires pour le fractionnement des filaments présentée dans Driessen (2013).

$$Ca_{bubble} = \frac{\mu_L \, \dot{\gamma} \, d_{eq}}{2 \, \sigma} \tag{42}$$

$$\delta = \frac{\mu_G}{\mu_L} \tag{43}$$

$$\Gamma = \frac{L_f}{B_f} \tag{44}$$

$$Oh = \frac{\mu_L}{\sqrt{\rho_L \, \sigma \, (B_f/2)}} \tag{45}$$

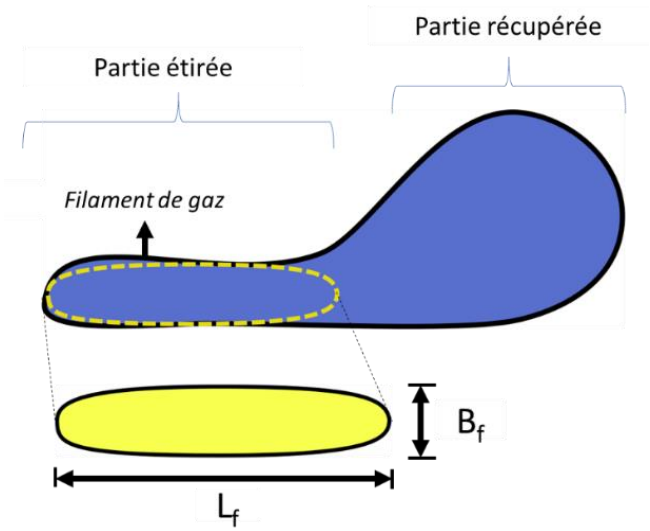


Figure 77. Représentation schématique d'une bulle étirée visualisée dans la zone E2 et les dimensions caractéristiques du filament.

7 Caractérisation des mousses en sortie du procédé

7.1 Masse volumique et fraction de vide

En vue de la mesure de la masse volumique des mousses, des échantillons de mousses produites sont récupérés dans des cristallisoirs de volume (V_c) et masse connus (m_c). Après

remplissage des cristallisoirs, la surface est lissée avec une lame en inox afin d'enlever l'excès de mousse et faire coïncider le volume de l'échantillon avec le volume du cristallisoir. Les cristallisoirs remplis avec l'échantillon sont par la suite pesés (figure 78) et la valeur enregistrée est notée m_{c+e}. Les mesures sont effectuées en triplicat. La masse volumique des mousses peut alors être calculée selon l'équation suivante :

$$\rho_M = \frac{m_{c+e} - m_c}{V_c} \tag{46}$$



Figure 78. Mesure de la masse volumique des mousses par pesée de cristallisoirs de volume connu contenant des échantillons de la mousse.

La fraction de vide représente la quantité de gaz dans les matrices aérées. C'est un paramètre qui impacte fortement la structure et les propriétés rhéologiques des mousses (Coussot & Guyon, 2014 ; Drenckhan & Saint-Jalmes, 2015). En effet, plus le contenu de gaz est important, plus les bulles sont polyédriques ce qui a un impact sur les propriétés élastiques de la mousse. La fraction de vide peut se calculer de façon théorique avec l'équation 47 (d'après les débits imposés en supposant l'incorporation du gaz totale) et expérimentale (à partir des échantillons de mousse recueillis en sortie du procédé).

$$\alpha_{théo} = \frac{Q_G}{Q_G + Q_L} \tag{47}$$

Cette relation est donc valide uniquement dans le régime d'écoulement dispersé, pour lequel le gaz s'incorpore complètement car il n'existe pas de pertes par formation de poches de gaz. Quant à la fraction de vide expérimentale de la mousse, il faut d'abord calculer le taux de foisonnement comme suit :

$$TF = \left(\frac{\rho_L}{\rho_M} - 1\right) * 100 \tag{48}$$

Il est alors possible de calculer la fraction de vide expérimentale selon l'équation suivante :

$$\alpha_{exp} = \frac{TF}{TF + 100} \quad (49)$$

7.2 Détermination de la carte d'écoulement

La détermination des cartes d'écoulement est effectuée en traçant la vitesse superficielle du liquide en fonction de la vitesse superficielle du gaz. La démarche expérimentale consiste à fixer d'abord le débit volumique du liquide Q_{vL} et ensuite le débit massique du gaz Q_{mG} est modifié progressivement jusqu'à observation de la présence de poches d'air dans l'écoulement. Cette transition vers un régime à poches permet d'établir la limite entre un régime dispersé et un régime à poches. Afin de vérifier que cette identification visuelle est bonne, un échantillon de mousse fabriquée aux conditions limites est récupéré dans un cristallisoir et sa fraction de vide expérimentale est calculée (équation 49) et comparée avec sa fraction de vide théorique (équation 47). Dans un régime dispersé où l'on incorpore la totalité de gaz injecté de façon contrôlé à la matrice liquide, les deux fractions calculées doivent avoir la même valeur.

Les débits liquide et du gaz identifiés pour cette transition peuvent donc maintenant être convertis en des vitesses superficielles pour la représentation cartographique. La vitesse superficielle du liquide est calculée en divisant le débit volumique liquide par la section du microcanal selon l'équation 50. Concernant la vitesse superficielle du gaz, le débit massique du gaz est au préalable transformé en débit volumique en tenant compte de la masse volumique du gaz, paramètre qui dépend de la pression (équation 51). Apres obtention du débit volumique du gaz, il est possible de calculer la vitesse superficielle du gaz avec l'équation 52.

$$U_L = \frac{Q_{vL}}{A} \quad (50)$$

$$Q_{vG} = \frac{Q_{mG}}{\rho_G} \quad (51)$$

$$U_G = \frac{Q_{vG}}{A} \quad (52)$$

La figure 79 présente un exemple de cartographie délimitant les régimes dispersé et à poches pour une solution à base de protéines sériques à 3% et de gomme xanthane à 0,2%

(WPI3XG02). Les vitesses indiquées sur cette carte ont été calculées juste avant que la mousse sorte complètement du procédé. Ceci implique que les calculs sont faits aux conditions de sortie (d'où l'indice S). En particulier, en sortie du procédé, la section (*A*) utilisée pour les calculs correspond à celle du deuxième tuyau de détente (figure 65) et la pression est celle de l'atmosphère. Dans la présentation des résultats une représentation alternative sera proposée. Elle consiste en une cartographie calculée aux conditions d'écoulement dans les microcanaux, en particulier dans la zone M1 (figure 65). Dans ce cas la section correspondra à celle du microcanal de section carrée et la pression sera assimilée à la pression d'injection (P_{inj}) mesurée par les capteurs de pression.

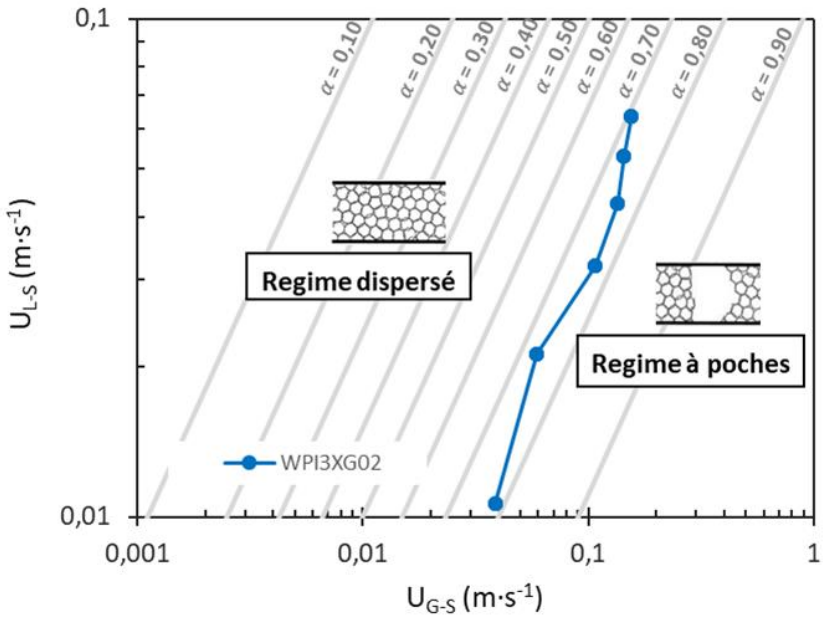


Figure 79. Cartographie de l'écoulement pour une solution à base d'isolats de protéines sériques (WPI) à 3% et de gomme xanthane (XG) à 0,2% (WPI3XG02). Débits liquides (Q_{vL}) utilisés dans la gamme 3 – 16 L.h^{-1}. Les isolignes en gris représentent des fractions de vide théorique.

7.3 Acquisition d'images de la mousse en sortie du procédé

A la sortie du procédé, une caméra Sony CCD XCL-5005 de résolution 5 Mpixels permet l'acquisition des images des bulles dans la mousse finale. Le même système optique périphérique utilisé pour les visualisations à l'intérieur des microcanaux est monté sur la caméra, à savoir un objectif 0,5X, un adaptateur 0,67 et un jeu des bagues allonges. Un éclairage annulaire Schott KL 1500LCD est utilisé sous la cellule de visualisation. Afin d'obtenir une résolution convenable des bulles, celles-ci sont ralenties par passage dans une cellule de visualisation spécialement conçue pour cet usage. La figure 80a présente

l'installation dédiée à l'observation des bulles en sortie avec les éléments qui viennent d'être décrits.

La caméra est liée à un ordinateur et un logiciel développé sous LabVIEW (National instruments) contrôle la prise d'images. Les images obtenues ont des résolutions de 2448 x 2050 pixels pour un champ d'observation de 4,8 x 3,6 mm^2. La figure 80b présente une vue agrandie de la cellule d'observation ainsi qu'une photo typique récupérée de la mousse en sortie. Normalement une dizaine de photos est suffisante pour assurer un nombre minimal de 500 bulles analysées par échantillon. La quantité exacte des images nécessaire pour une analyse significative des bulles dépend de la taille des bulles ainsi que de leur polydispersité. Avec les éléments utilisés pour l'acquisition des images, la taille minimale des bulles qu'il était possible de caractériser convenablement était de l'ordre de 30 à 40 µm.

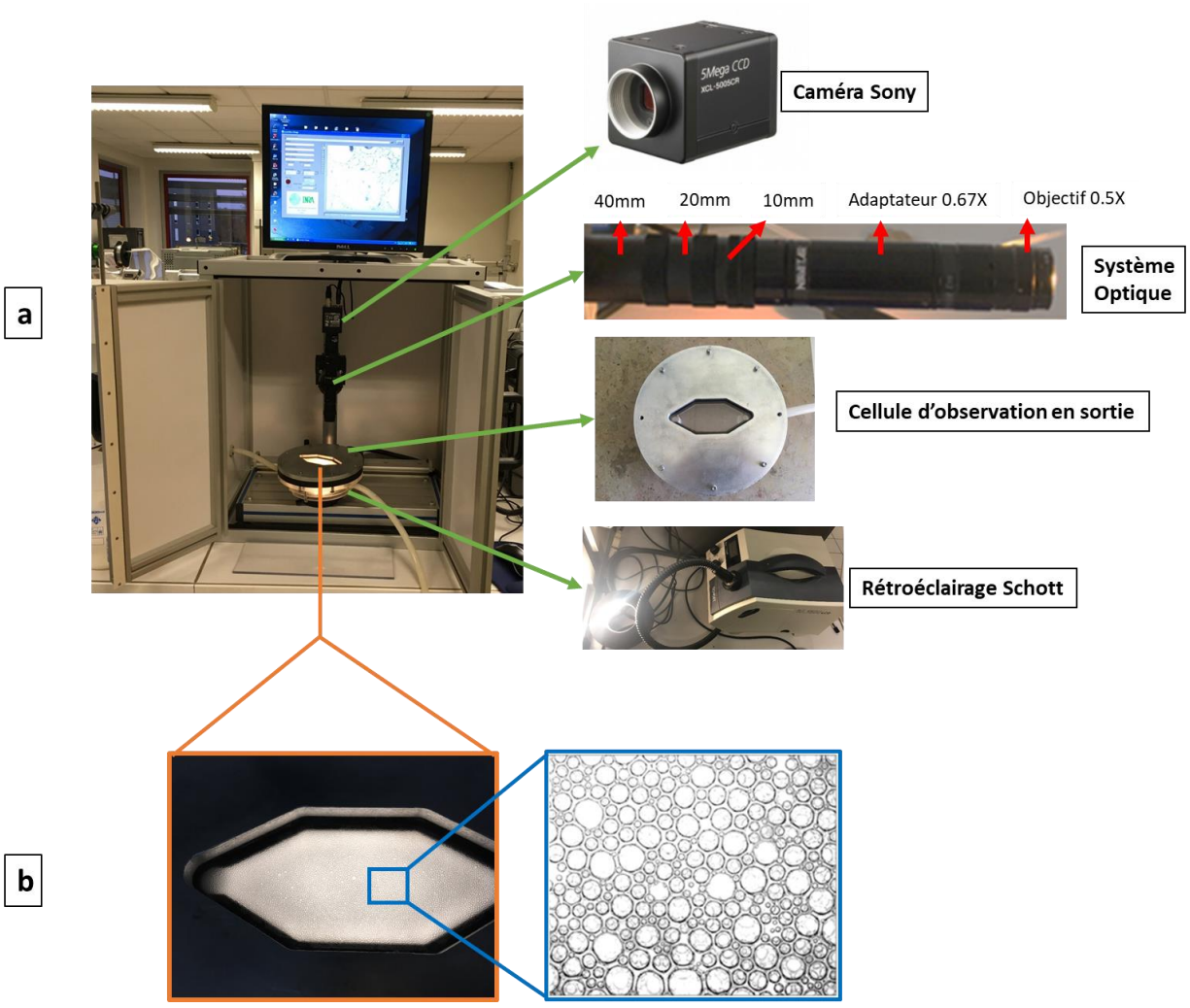


Figure 80. a) installation de visualisation de la mousse en sortie de procédé **b)** vue de la fenêtre de visualisation de la cellule et photo typique obtenue.

7.4 Traitement des images

Les images récupérées sont ensuite analysées en utilisant le logiciel ImageJ. D'abord, les images d'un même échantillon sont empilées avec la commande *Stack images*. Ensuite, l'échelle est établie à l'aide d'une croix millimétrique de calibration. Le protocole suivant d'analyse est par la suite appliqué aux images ; il s'agit d'appliquer successivement les différentes fonctions : d'abord, *Substract background* pour soustraire le fond de l'image puis la fonction *Enhance contrast* pour augmenter le contraste. Ensuite, on binarise l'image avec la fonction *threshold* de façon à détacher les bulles du fond de l'image. Il est donc possible maintenant de remplir les bulles avec *Fill holes* pour ensuite séparer les bulles qui se touchent avec la fonction *Watershed*. Finalement, après calibration par la fonction *set scale*, On peut procéder à l'analyse des images avec *Analyze particles* et éventuellement filtrer les résultats d'intérêt avec *Filter results*. Enfin, les résultats donnés par ImageJ concernant les différentes dimensions mesurées des bulles sont récupérés en forme de tableau.

La figure 81 présente un exemple d'une photo obtenue de la mousse en sortie de procédé ainsi que l'image traitée et les allures des bulles analysées par ImageJ. Il est important de préciser qu'à cause de la polydispersité et de la densité des bulles en sortie, le traitement des images est plus complexe qu'au sein des microcanaux. D'autre part, l'éclairage n'est pas parfaitement homogène ce qui ne facilite pas les opérations de seuillage ; il en résulte la non prise en compte d'une partie des bulles lors du traitement d'image.

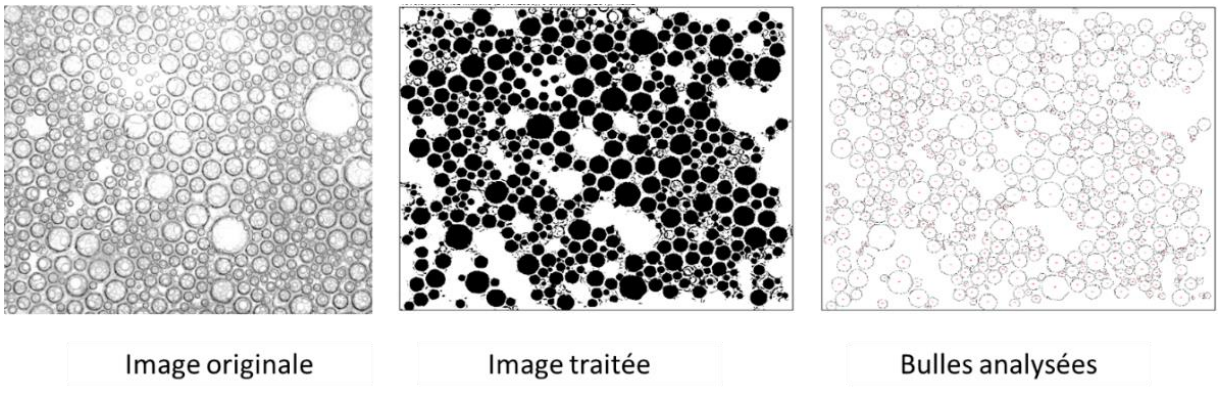


Figure 81. Exemple du résultat du protocole utilisé pour le traitement systématique des images de la mousse en sortie.

7.5 Granulométrie

Comme pour les bulles traversant les microcanaux (cf. section 6.5), l'analyse des images par ImageJ fournit les dimensions maximales axiale (L) et radiale (B). Ces deux valeurs sont généralement différentes malgré le fait que les bulles sont au repos. Le volume de la bulle est donc calculé de façon similaire à ce qui est effectué pour les bulles dans les microcanaux (section 6.5) avec l'équation 39 et ensuite un diamètre sphérique équivalent est calculé avec la relation 40. La différence par rapport à l'analyse des bulles dans les microcanaux est qu'il n'est pas nécessaire de faire ici une correction de la taille avec la pression avec la loi de Boyle car les bulles sont déjà à la pression atmosphérique.

Dans le but de vérifier qu'aucune erreur d'estimation n'a été commise, cette méthode a été comparée à celle proposé par Gaillard (2016) pour l'estimation du diamètre des bulles allongées en 2D :

$$R_B = \left(\frac{3S_B d_B}{4\pi}\right)^{1/3} \tag{53}$$

Cette relation a été déduite en approximant le volume des bulles par $V_B = S_B d_B$ où S_B correspond à la surface de la bulle, dB à la dimension radiale de la bulle obtenue avec ImageJ et R_B au rayon de la bulle. Les diamètres de 490 bulles en sortie pour un échantillon de mousse obtenue avec le dispositif CX600 et la solution WPI3XG04 ont été calculés avec les deux méthodes. L'écart relatif moyen entre les deux mesures est de 4,7%. Cette valeur est plutôt petite et indique que nous devrions parvenir aux mêmes conclusions finales quelle que soit l'approche utilisée pour l'approximation de la taille des bulles. La figure 82 montre un exemple d'une courbe de distribution de taille obtenue pour les bulles en sortie du procédé. La forte polydispersité et la présence de quelques bulles excessivement grandes conduisent à des courbes présentant cette allure pour les distributions en sortie. Malgré cette polydispersité, quelques essais ont permis de déterminer qu'on obtenait une répétabilité acceptable pour la granulométrie des bulles en sortie (annexe J point b)

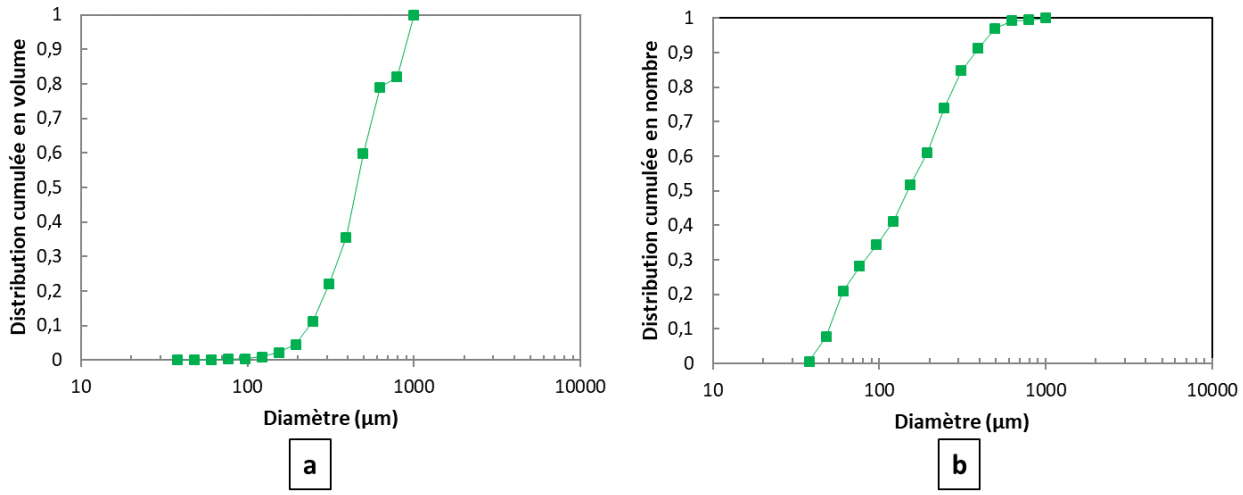


Figure 82. Exemple de granulométrie pour une mousse produite avec le dispositif CX600 avec la solution WPI3XG04 et débits Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. **a)** distribution cumulée en volume **b)** distribution cumulée en nombre.

7.6 Rhéologie des mousses en sortie

Les propriétés rhéologiques des mousses, telles que l'élasticité, la plasticité et la viscosité, jouent un rôle majeur dans la production, le transport et l'application de la mousse (Denkov *et al.*, 2012). La caractérisation rhéologique des mousses est un domaine assez complexe. Les mousses sont en effet des systèmes métastables et il convient de s'assurer que la méthode utilisée ne modifie pas les propriétés des mousses au cours des mesures (Koehler, 2012). D'un autre côté, les mousses sont des systèmes à plusieurs échelles (Denkov *et al.*, 2012 ; Fameau & Salonen, 2014) et donc il faudrait effectuer une description des phénomènes caractéristiques de chacune des échelles pour une meilleure description de propriétés rhéologiques de ces systèmes. La rhéométrie classique reste cependant jusqu'à présent la méthode la plus souvent employée pour l'étude macroscopique des propriétés rhéologiques des mousses (Denkov *et al.*, 2012).

La caractérisation rhéologique des mousses est effectuée avec un rhéomètre rotationnel à contrainte Imposée AR1000 TA Instruments. Une géométrie plan-plan adéquate pour les systèmes dispersés (TA Instruments, 2000) a été utilisée. Afin d'éviter le glissement de la mousse, il est souhaitable d'utiliser des surfaces rainurées. Dans le cas du rhéomètre utilisé au cours de l'étude, la géométrie plane striée était disponible uniquement sur la surface supérieure. C'est une géométrie striée du type *Crosshatched* (figure 83a) qui présente sur sa surface des petites pyramides de 1 mm de profondeur et espacées de 1 mm (Figure 83b).

N'ayant pas une surface similaire pour la surface inférieure (plan Peltier), du papier de verre waterproof ayant des grains de taille 60 µm a été utilisé aussi bien pour la surface inferieure que supérieure. L'utilisation du papier verre est décrite par le fabricant du rhéomètre comme étant une démarche valide (D. Israel. Communication personnelle. Juillet 19 2017).

Cette taille de grain pour le papier abrasif a été choisie pour deux raisons. D'après Denkov *et al.* (2012), si la surface est lisse à l'échelle des bulles, la mousse a tendance à glisser. Or, dans cette étude, les bulles mesurées en sortie peuvent avoir des tailles comprises entre 40 et 2000 µm. Pour les grosses bulles, la géométrie *crosshacthed* conviendrait très bien car la distance entre les petites pyramides est d'un ordre de grandeur équivalent à la taille des plus grosses bulles. En revanche, pour les toutes petites bulles, il pourrait exister encore du glissement. La deuxième raison est de se rapprocher des dimensions de la deuxième géométrie striée proposée par TA instruments (*Sandblasted)*. Cette géométrie présente des grains de nomenclature 180/220 ; ce qui se traduit par des tailles de grains comprises dans la gamme 68-82 µm.

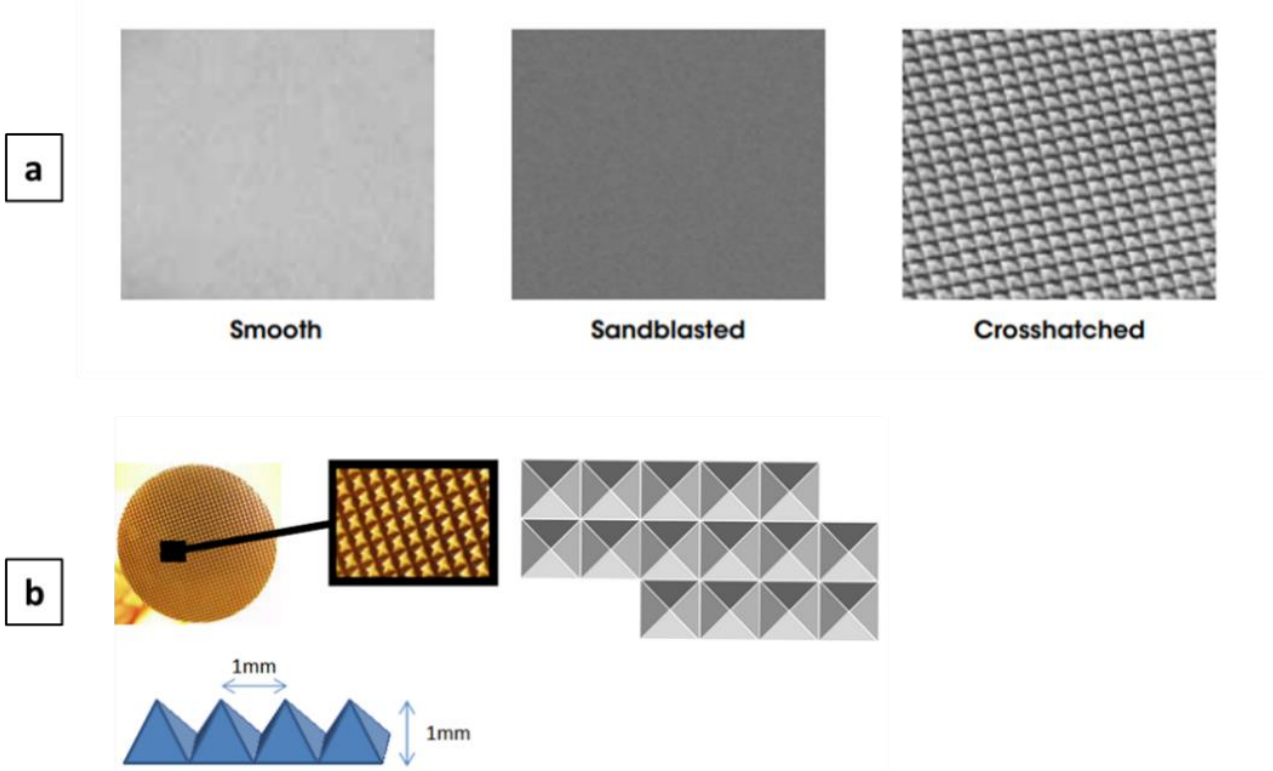


Figure 83. a) types de surfaces utilisés avec les rhéomètres rotationnels. Surface lisse (smooth) et deux types de surface striée, sandblasted et crosshatched (TA Instruments, 2017). **b)** caractéristiques des microstructures présentes sur la surface de la géométrie *crosshatched* (D. Israel. Communication personnelle. Juillet 19 2017).

L'entrefer fixé pour les mesures a été établi à 2000 µm. Idéalement, l'entrefer doit être de l'ordre de 10 fois la taille de la plus grosse particule (TA Instruments, 2000). Ayant des plages très polydisperses pour la mousse en sortie, l'entrefer a été sélectionné par rapport à une taille moyenne des bulles. Le protocole suivi pour la caractérisation rhéologique des mousses comportait la mesure de la viscosité avec un test d'écoulement et la mesure des propriétés viscoélastiques avec un balayage en fréquence. Un test de balayage en contrainte est préalablement effectué afin de déterminer le pourcentage de déformation dans le domaine viscoélastique linéaire (LVD) à renseigner dans le test de balayage en fréquence.

7.6.1 Détermination du domaine linéaire viscoélastique

Ce test renseigne sur la plage de pourcentage de déformation que la matrice du produit peut supporter sans perdre sa structure interne. La caractérisation a été effectuée à une température de 20°C en contrainte imposée. La gamme des contraintes balayée est 8 x 10^{-3} jusqu'à 10 Pa. Un pourcentage de déformation de 1% a été sélectionné pour renseigner la caractérisation des modules mécaniques. La figure 84 présente un exemple d'une courbe « LVD » obtenue avec une mousse produite avec les dispositifs microfluidiques.

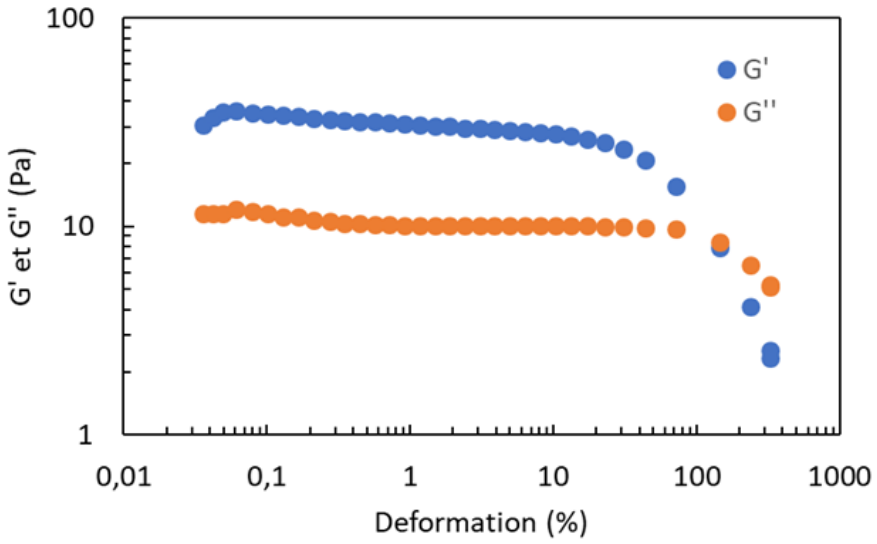


Figure 84. Test pour la détermination du domaine linéaire viscoélastique pour une mousse produite avec le dispositif CX600 avec la solution WPI3XG04 et débits Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}.

7.6.2 Détermination des modules mécaniques

Le test de balayage en fréquence permet la détermination des modules mécaniques et donc la caractérisation du comportement viscoélastique du produit grâce à la définition des modules élastique (*G'*) et visqueux (*G''*). La caractérisation a été effectuée à une température de 20°C dans la plage de fréquences 5 - 0,5 Hz. Le balayage a été réalisé dans le sens décroissant des fréquences car les faibles fréquences impliquent des temps de caractérisation très longs et donc un risque plus élevé de déstructuration de l'échantillon. En conséquence, les faibles fréquences sont balayées en dernier. Une illustration de ce type de caractérisation peut être observée dans la figure 85.

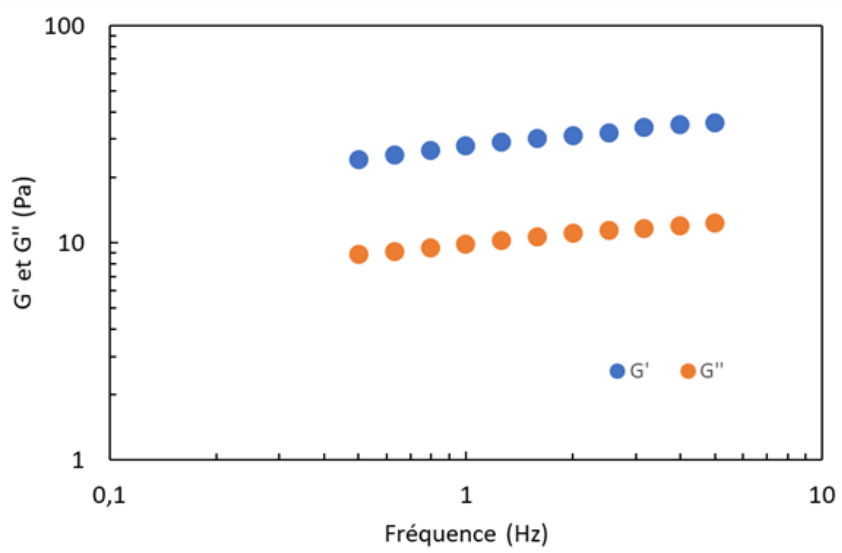


Figure 85. Détermination des modules mécaniques pour une mousse produite avec le dispositif CX600 avec la solution WPI3XG04 et débits Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}.

7.6.3 Détermination de la viscosité

La détermination de la viscosité des mousses est effectuée avec l'application d'un test d'écoulement. La caractérisation s'est effectuée dans la gamme de contraintes 0,01-50 Pa avec une durée de 4 minutes pour le test « aller ». Puisqu'on ne s'intéresse pas dans cette étude à une description de la déstructuration, La partie « retour » du test d'écoulement n'a pas été caractérisée. Un exemple de ce test est présenté sur la figure 86.

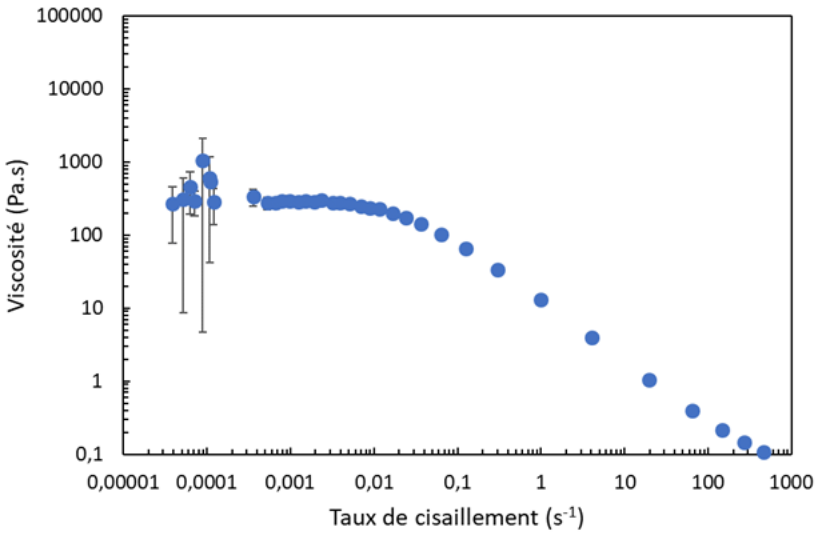


Figure 86. Test d'écoulement pour une mousse produite avec le dispositif CX600 avec la solution WPI3XG04 et débits Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}

7.7 Stabilité des mousses

La stabilité représente un paramètre essentiel pour la caractérisation des mousses car l'apparition des grosses bulles due aux phénomènes de déstabilisation est perçue comme un défaut pour la qualité gustative (Loisel & Lefebvre, 2013). Pour cette évaluation, la mousse est récupérée dans des éprouvettes de 100 ml et la hauteur initiale mesurée. Ensuite l'évolution de la mousse est suivie dans le temps et sa stabilité évaluée en fonction du temps de demi-vie ($t_{1/2}$) qui correspond au moment où la hauteur de la mousse a diminué de la moitié de sa valeur initiale. Le suivi de l'évolution des échantillons est fait avec le logiciel Webcam Surveyor en faisant des prises d'images toutes les 10 minutes. Un exemple de l'évaluation de la stabilité de la mousse est présenté dans la figure 87.

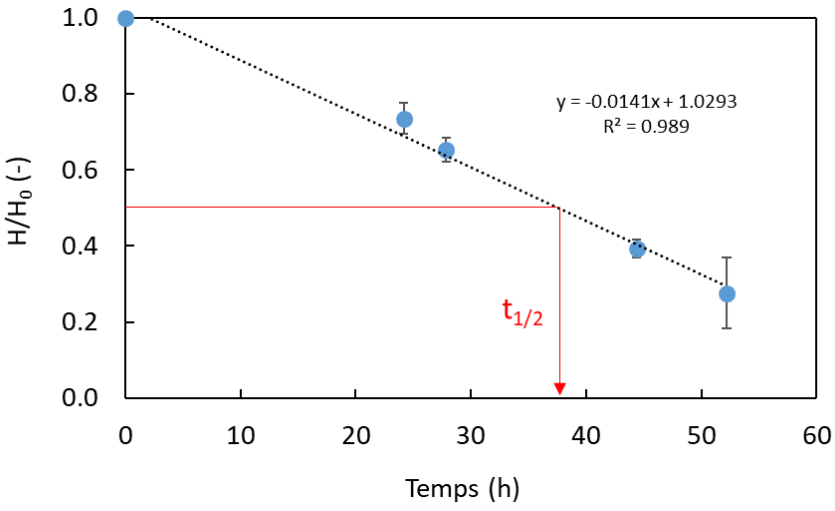


Figure 87. Détermination de temps de demi-vie pour une mousse produite avec le dispositif CX600 avec la solution WPI3XG04 et débits Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}.

Chapitre 3

Résultats

1 Première partie : Étude prospective des microsystèmes vis-à-vis des propriétés de mousses obtenues

1.1 Introduction

Dans cette première partie nous allons présenter une étude préliminaire où l'objectif est de définir avec précision les conditions d'opération qui seront utilisées par la suite pour l'élaboration des mousses avec les systèmes microfluidiques. Trois grands axes peuvent être identifiés dans cette première partie. D'abord, une étude sur l'identification de la limite entre un régime dispersé et un régime à poches pour la production de la mousse ; des cartes d'écoulement sont donc proposées et l'effet de différents paramètres sur ces limites est discuté. Ensuite, une évaluation sera menée sur les propriétés d'usage des mousses produites en régime dispersé avec plusieurs configurations des dispositifs microfluidiques. Cela permettra d'identifier quelles géométries seraient capables de produire des mousses plus fermes et donc plus stables. Enfin, le troisième volet de cette partie s'intéresse à l'optimisation du profil de détente en sortie des microsystèmes.

1.2 Détermination des cartes d'écoulement

Une des premières démarches quand on travaille avec des écoulements multiphasiques consiste à déterminer les régimes diphasiques d'écoulement, autrement dit quelle est la topologie des phases liquide et gazeuse (l'une étant complémentaire de l'autre). Ces régimes sont représentés dans des cartographies en fonction de la vitesse superficielle du liquide (U_L) et de la vitesse superficielle du gaz (U_G) (Cubaud & Ho, 2004 ; Triplett *et al.*, 1999). L'objectif étant de maitriser les propriétés structurales du produit en sortie, on cherche donc à identifier les conditions opératoires nous permettant une production dans le régime dispersé. En effet, c'est dans un régime dispersé de production de mousses que la totalité du gaz utilisé est incorporée et bien dispersée dans une matrice liquide. C'est l'incorporation contrôlée du gaz qui permet de moduler la fraction de vide dans une mousse et donc les propriétés d'usage de celle-ci.

La détermination des limites du régime dispersé est basée expérimentalement sur l'aspect de la mousse obtenue. Pour un débit liquide fixé, on fait varier le débit du gaz jusqu'à ce qu'on observe une production pulsée des mousses comportant des poches d'air. Cette limite, identifiée d'abord de façon visuelle, est ensuite vérifiée en déterminant et en

comparant les fractions de vide expérimentale et théorique dans la mousse, comme expliqué dans la partie « méthodologie ».

Les effets de plusieurs paramètres sur cette limite seront maintenant présentés, notamment l'effet de la concentration de xanthane dans la solution, l'effet d'un changement de la longueur de détente en sortie des microcanaux (et donc du profil de pression en détente), l'effet de la présence d'une singularité géométrique incorporée dans le dispositif de base en croix et finalement, l'effet du diamètre hydraulique du microsystème.

1.2.1 Effet de la concentration de xanthane

Pour cette première évaluation, trois solutions modèles sont proposées. Les solutions ont été élaborées à base d'isolats de protéines sériques (WPI) à concentration fixe de 3% en masse et de la gomme xanthane (XG) à trois concentrations différentes, 0,2, 0,4 et 0,5 % en masse. Elles ont donc respectivement les dénominations WPI3XG02, WPI3XG04 et WPIXG05. Pour ces expériences un premier dispositif comportant des microcanaux en croix (CX600) est évalué ; les canaux ont des diamètres hydrauliques de 600 µm. Deux représentations sont proposées pour la cartographie de l'écoulement : une représentation dans le canal de mélange du dispositif ou zone M1 (figure 88a) ainsi qu'une représentation en sortie du procédé ou zone S (figure 88b). Dans les cartographies proposées, U_L et U_G représentent respectivement les vitesses superficielles de la solution et du gaz et les indices M1 et S font référence à la partie de l'installation où ces vitesses sont calculées. Pour rappel, ces deux zones sont repérables dans la figure 65 (page 92) dans la partie « matériels et méthodes ».

L'emplacement des limites entre les régimes d'écoulement pour les cartographies dans les dispositifs est fortement impacté par les pressions régnant à l'intérieur de ces systèmes. Ces cartographies permettent d'avoir un aperçu sur les fractions de vide à l'intérieur du dispositif et donc sur l'état de la mousse à ce niveau du procédé. Ce sont plutôt les représentations en sortie (à pression atmosphérique) qui renseignent sur la fraction de vide maximale pouvant être atteinte dans la mousse produite en régime dispersé. Par conséquent, les cartographies en sortie sont plus à même de permettre de régler les paramètres du procédé en fonction des caractéristiques souhaitées de la mousse en sortie. De ce fait, les discussions pour les cartographies se centreront sur les représentations en sortie.

Concernant l'effet de la viscosité sur la transition de régimes, on constate sur la figure 88b qu'une augmentation de la viscosité va décaler cette limite vers des fractions de vide plus faibles. En effet, une augmentation de la viscosité se traduit par un réseau plus structuré de la phase liquide au sein duquel le gaz aura plus de difficulté à s'incorporer. Plusieurs auteurs ont déjà signalé l'effet important de la viscosité sur les transitions de régimes pour les écoulements diphasiques aussi bien dans des macroconduits que dans des microcanaux (Furukawa & Fukano, 2001 ; Matsubara & Naito, 2011 ; Sudarja *et al.*, 2018. Cubaud & Ho, (2004). Cependant, la plupart de ces travaux concerne seulement le système diphasique air-eau. Du fait de la pression plus élevée régnant au sein des microsystèmes, la fraction de vide en microcanal, à la limite haute du régime dispersé, est plus basse que celle observée en sortie du procédé.

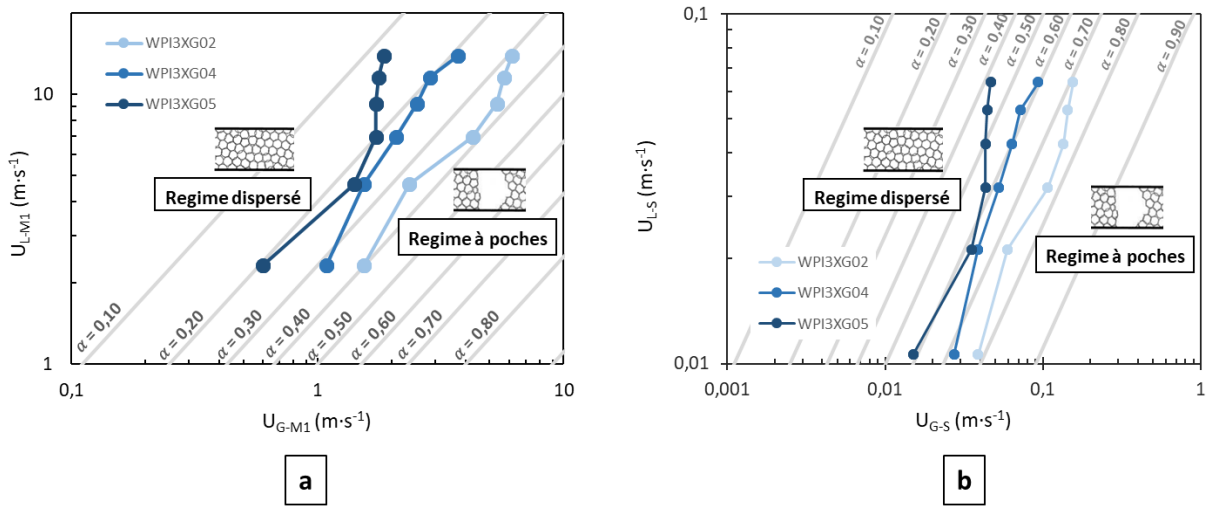


Figure 88. Cartographies d'écoulement diphasique pour l'opération de foisonnement en utilisant le microsystème CX600 et les solutions WPI3XG02, WPI3XG04 et WPI3XG05. **a)** dans le dispositif microfluidique **b)** en sortie. Longueur tuyau de détente en sortie du dispositif fixée à 1 m. Diamètre interne du tuyau 0,16 cm.

1.2.2 Effet de la longueur du tuyau de détente

De manière similaire, l'effet de la longueur d'un premier tuyau de diamètre interne 0,16 cm placé en sortie des dispositifs est évalué. La figure 89 montre la carte d'écoulement dans le dispositif (figure 89a) et également en sortie (figure 89b) en utilisant la solution WPI3XG02 pour deux longueurs, à savoir 1 m (cercles) et 5 m (carrés). En ce qui concerne la représentation en sortie, on n'a pas identifié un effet remarquable de la détente sur le positionnement de la courbe limite. La seule différence identifiée concerne les pressions à l'intérieur du dispositif. Ces pressions étant plus élevées pour la longueur de 5 m, il n'était

pas possible de fonctionner à plus de 7,5 $L.h^{-1}$ d'où l'obtention d'une courbe limite plus courte. Seule la solution WPI3XG02 a été testée en raison des pressions très élevées créées à l'intérieur du dispositif avec la solution plus visqueuse lors de l'utilisation de la longueur 5m. En effet, l'utilisation des solutions plus visqueuses n'aurait pas permis pour cette longueur d'atteindre la gamme des débits élevés qui nous intéressent.

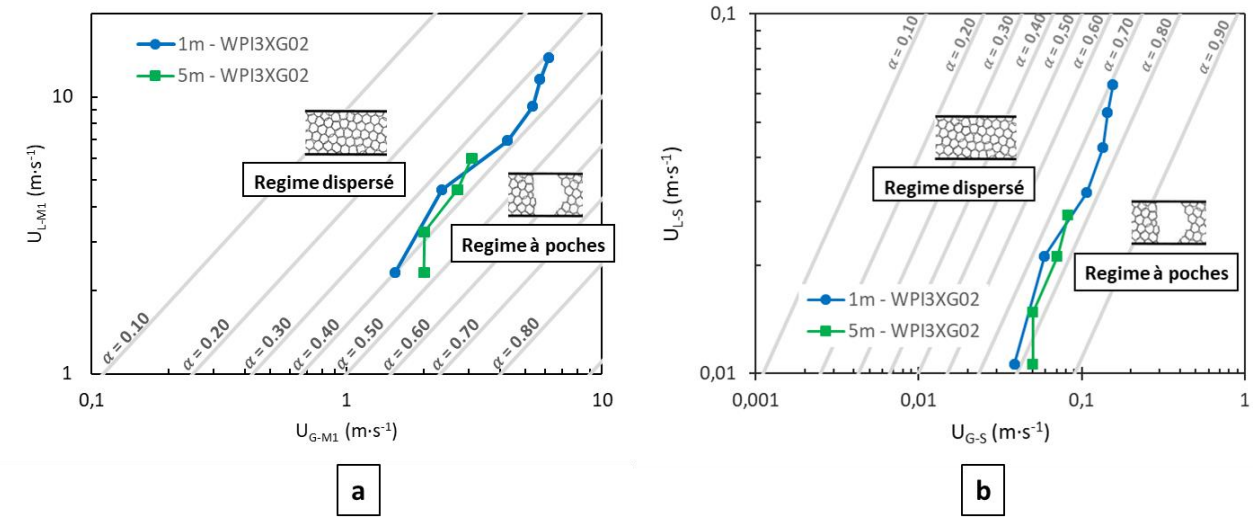


Figure 89. Cartographies d'écoulement diphasique pour l'opération de foisonnement en utilisant le microsystème CX600 et la solution WPI3XG02 pour deux longueurs de tuyau de détente en sortie du dispositif, 1 et 5 m. diamètre interne du tuyau 0,16 cm **a)** dans le dispositif microfluidique **b)** en sortie.

1.2.3 Effet de la présence d'une singularité géométrique

Une cartographie pour deux dispositifs ayant des configurations géométriques différentes est proposée ici. A ce propos, le dispositif de base, le CX600 est comparé avec le dispositif CX-C-600 ayant la même disposition en croix des microcanaux mais comportant aussi la présence de deux coudes. La figure 90 présente la cartographie pour cette comparaison. Aucune différence n'a été identifiable en sortie du procédé, les courbes étant quasiment superposées. En revanche, une différence significative de la forme de la limite haute du régime dispersé est observée au sein du microcanal. Cela montre l'effet d'une chute de pression différente générée au sein du microcanal, ceci en fonction de la présence ou non de coudes supplémentaires au sein du microsystème. La présence de coudes impacte notablement l'hydrodynamique au sein du microsystème. Cette représentation a permis d'avoir un aperçu sur le possible effet d'un changement de géométrie sur la transition de régimes. Cependant, une étude plus approfondie incluant plusieurs dispositifs et plusieurs solutions pourrait enrichir la discussion sur cet effet.

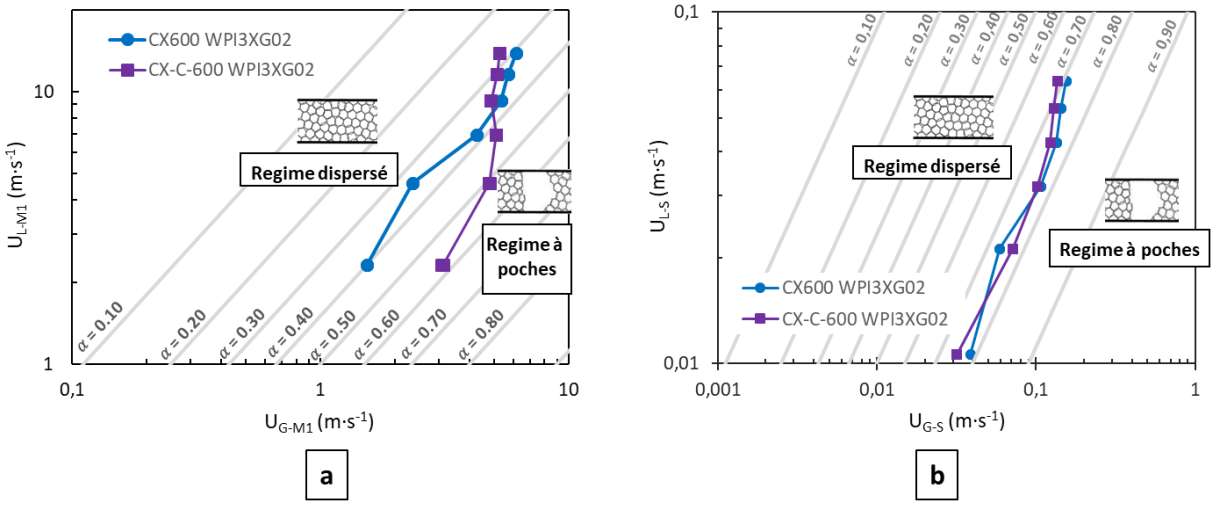


Figure 90. Cartographies d'écoulement diphasique pour l'opération de foisonnement en utilisant la solution WPI3XG02 et une longueur de détente fixée à 1 m pour deux configurations du microsystème, en croix, CX600 et en croix plus la présence de deux coudes, CX-C-600. **a)** dans le dispositif microfluidique **b)** en sortie.

1.2.4 Effet du diamètre hydraulique

Afin d'évaluer un éventuel impact du diamètre hydraulique sur la transition des régimes dispersé-poches, un dispositif avec la même configuration en croix mais avec un diamètre hydraulique plus faible (500 µm) est testé. La figure 91 présente l'effet de ce changement de diamètre hydraulique sur la transition dans le dispositif (figure 91a) et en sortie (figure 91b). Pour la carte de transition en sortie (Figure 90b), l'écart entre les deux courbes pour une même solution se fait plus important lorsque la viscosité est plus élevée. Cependant, la combinaison d'une viscosité plus élevée (solution WPI3XG05) avec un faible diamètre de microcanal (CX500) semble conduire à des instabilités lors de l'injection du gaz d'où l'allure un peu étrange de la courbe concernée. Dans le microcanal, en raison de chutes de pression plus élevées avec le dispositif CX500, les limites ont ainsi présenté des allures complètement différentes pour ces deux dispositifs. La tendance du décalage des courbes avec la viscosité a été néanmoins conservé pour ces deux microsystèmes.

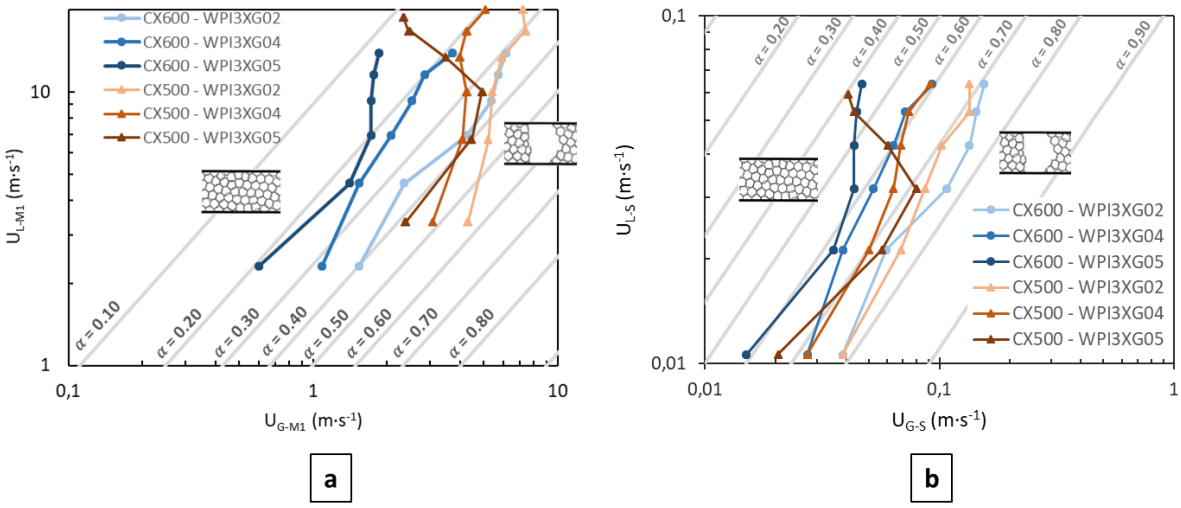


Figure 91. Cartographies d'écoulement diphasique pour l'opération de foisonnement en utilisant les solutions WPI3XG02, WPI3XG04 et WPI3XG05 et une longueur de détente fixée à 1 m pour deux microsystèmes ayant la même configuration en croix, mais des diamètres hydrauliques variés, soit 500 et 600 µm. **a)** dans le dispositif microfluidique **b)** en sortie.

Modélisation de la fraction de vide maximale dans le dispositif et en sortie

Les résultats obtenus avec les dispositifs CX500 et CX600 sont utilisés dans le but de proposer une modélisation de la fraction de vide maximale (limite entre régime dispersé et à poches) en fonction des nombres adimensionnels. La figure 92 présente la modélisation pour la fraction de vide maximale en sortie. Elle semblerait être bien décrite par les nombres capillaire et de Reynolds de la phase continue. En général, il existe une meilleure adéquation du modèle pour le dispositif CX600. Globalement, les points se trouvent presque tous inclus autour d'une même courbe maîtresse pour les deux dispositifs. Ceci n'est qu'une conséquence de fractions de vide maximales similaires en sortie pour ces deux dispositifs (figure 91b). La seule différence significative entre ces deux dispositifs est perceptible avec une solution à viscosité élevée (WPI3XG05). Comme évoqué précédemment, une viscosité élevée combinée à un faible diamètre de microcanal semblent perturber l'incorporation du gaz d'où les mesures moins précises de la limite de régimes. Les points qui s'éloignent plus de la ligne droite (points compris entre les valeurs 0,4 et 0,6 de l'axe des abscisses) de CX500 dans la figure 92 correspondent en effet aux expériences effectuées avec la solution WPI3XG05.

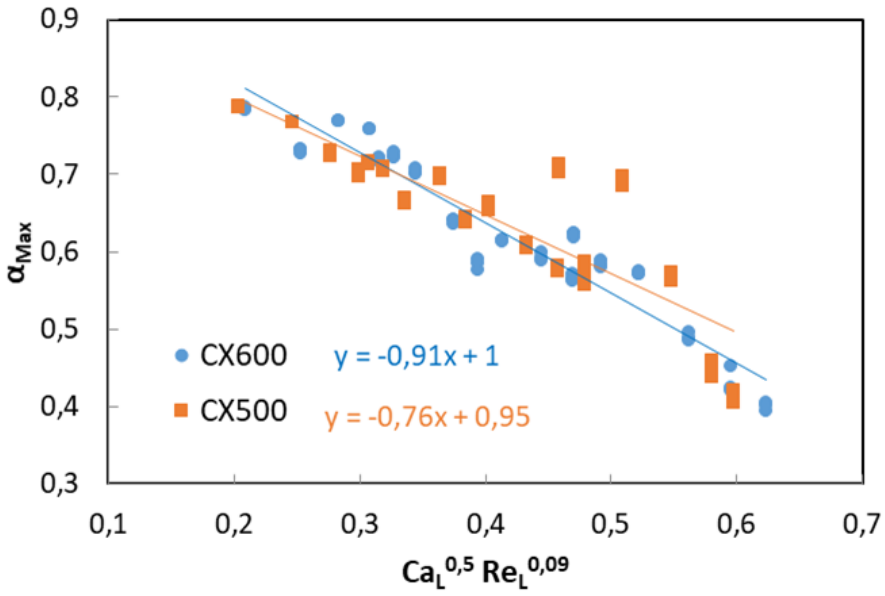


Figure 92. Modélisation de la fraction de vide maximale des mousses obtenues en sortie de l'installation avec les dispositifs CX500 et CX600 et les solutions WPI3XG02, WPI3XG04 et WPI3XG05. L'écart relatif moyen (ERM%) du modèle est de 4,27% pour CX600 et de 5,87% pour CX500. 54 données ont été utilisées pour CX600 et 53 pour CX500.

Les transitions entre les régimes dispersé et à poches à l'intérieur des dispositifs microfluidiques sont représentées sur la figure 93 en utilisant les nombres de Reynolds et d'Ohnesorge ; celles-ci permettent d'obtenir deux courbes maîtresses distinctes pour chaque dispositif. Les droites maîtresses correspondant à chaque diamètre hydraulique étudié sont décalées. Les fractions de vide maximales atteignables sont plus importantes dans cette partie du procédé pour le dispositif CX500 en raison de plus fortes vitesses superficielles atteintes avant l'apparition du régime à poches. Une deuxième constatation à retenir serait le fait qu'au niveau du dispositif ce sont plutôt les données obtenues avec CX600 qui sont plus dispersées et donc moins bien décrites par le modèle. Des études plus approfondies sur cet aspect sont nécessaires pour élucider ces phénomènes et pour écarter la possibilité que ceci soit dû à des imprécisions dans les mesures de pression ou des estimations aux échelles microscopiques. Finalement, dans le microsystème la prise en compte du nombre de Ohnesorge a permis de mieux modéliser la valeur de la fraction de vide maximale en raison de son importance dans l'évaluation des effets visqueux et inertiels décrits par quelques auteurs pour les écoulements dans les microcanaux (Desir *et al.*, 2019 ; Li, 2008 ; Minakov *et al.*, 2019 ; Wu & Sundén, 2019).

Les courbes proposées ici sont intéressantes pour avoir rapidement une idée de l'ordre de grandeur des fractions de vide maximales atteignables dans le canal de mélange M1 avec nos solutions à base de protéines sériques et de gomme xanthane. Également, cette représentation adimensionnelle pourrait permettre de reconstruire rapidement les courbes de transition à partir des propriétés physiques de solutions et de la dimension des microcanaux dans nos conditions expérimentales et donc de faciliter les démarches de scale-up du procédé.

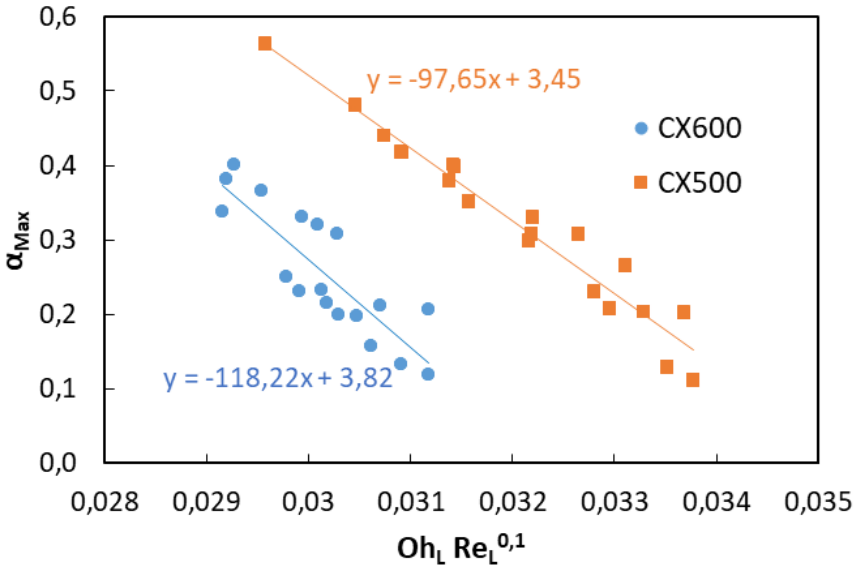


Figure 93. Modélisation de la fraction de vide maximale estimée pour l'écoulement diphasique dans le canal de mélange (M1) aux conditions limites de changement de régime (dispersé-poches) des mousses obtenues en sortie. Dispositifs utilisés CX500 et CX600 et solutions WPI3XG02, WPI3XG04 et WPI3XG05. L'écart relatif moyen (ERM%) du modèle est de 16,8% pour CX600 et de 9,9% pour CX500. 54 données ont été utilisées pour CX600 et 53 pour CX500.

1.3 Validation des mesures

La fiabilité des mesures des limites d'écoulement a été vérifiée en comparant les fractions de vide expérimentales avec les fractions de vide théoriques. Cette comparaison est effectuée avec les valeurs en sortie du procédé où l'on pouvait mesurer expérimentalement la fraction de vide. La figure 94 montre bien que dans le régime dispersé, nous allons pouvoir contrôler la fraction de vide expérimentale en fonction des paramètres de fonctionnement.

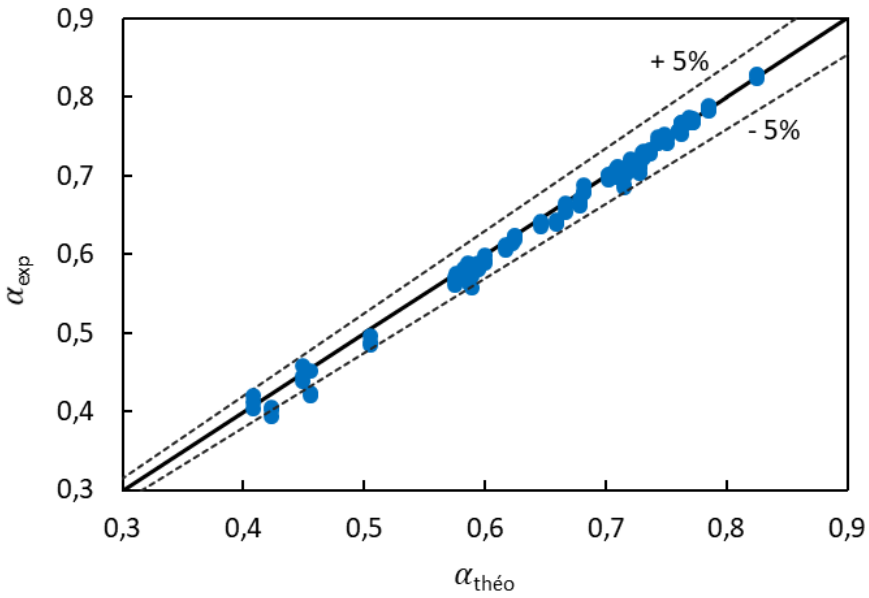


Figure 94. Fraction de vide expérimentale en fonction de la fraction de vide théorique pour les mesures en sortie. Tous résultats confondus.

1.4 Passage en revue des dispositifs microfluidiques

En raison d'un fonctionnement plus stable avec les solutions ayant une viscosité au repos élevée, les dispositifs ayant des diamètres hydrauliques de 600 µm ont été choisis pour l'élaboration des mousses. Cette étude vise à la sélection des géométries des microsystèmes proposés qui pourraient s'avérer intéressantes dans une application de foisonnement vis-à-vis des propriétés des produits. La figure 95a présente les schémas des dispositifs employés pour cette expérience. La figure 95b montre quant à elle la configuration du tube de détente en sortie du dispositif utilisée pour ces expériences, un tuyau flexible en PTFE de diamètre interne de 0,16 cm diamètre avec une longueur de 1 mètre.

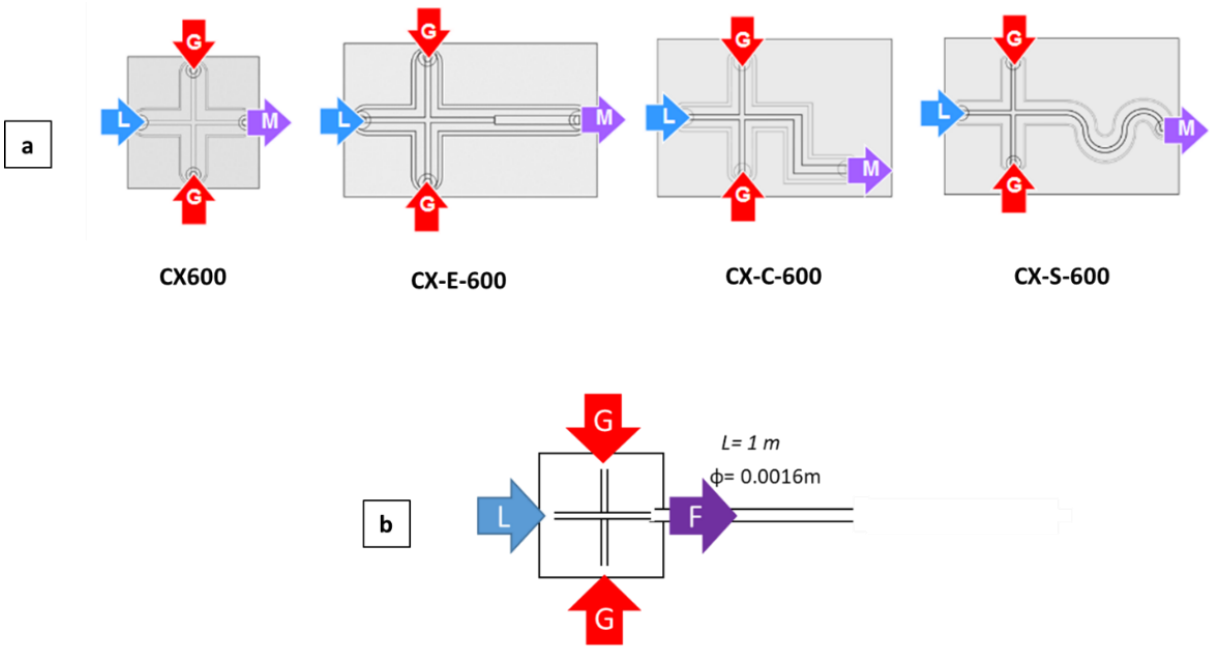


Figure 95. Conditions d'expérimentation pour l'étude préliminaire de sélection des dispositifs vis-à-vis des propriétés d'usage des mousses produites. **a)** dispositifs microfluidiques utilisés. **b)** détente employée en sortie des dispositifs.

1.4.1 Sélection de la base liquide et la fraction de vide pour les mousses élaborées

La solution WPI3XG04 contenant 3% de WPI et 0,4% de XG a été choisie pour ces expériences et en général comme solution modèle pour la plupart des analyses effectuées dans cette thèse. Son choix découle de ce l'on cherche à obtenir des mousses les plus stables possible en augmentant la viscosité de la phase liquide au maximum tout en limitant des instabilités lors de la production telles que des pulsations à cause du pompage des fluides très visqueux.

La limite en sortie des régimes dispersé-à poches pour la solution WPI3XG04 et le dispositif CX600 est reprise dans la figure 96. Afin de nous positionner dans un régime dispersé de production de mousse, les conditions du procédé ont été réglées de manière à produire des mousses ayant des fractions de vide de l'ordre de 0,57. Cette valeur est comprise dans la gamme de fractions de vide caractéristiques d'une mousse alimentaire liquide : 0,5-075. Les deux conditions sélectionnées correspondent à des débits liquides de 3 et 11 $L.h^{-1}$.

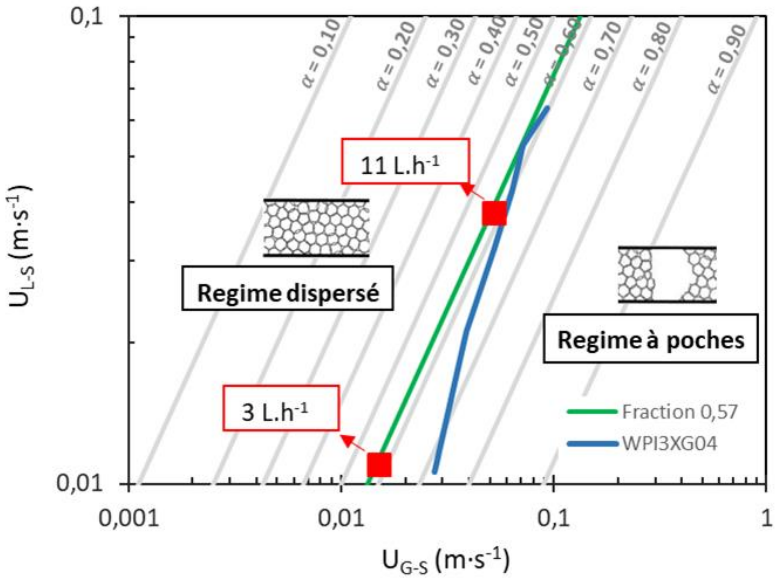


Figure 96. Courbe limite entre le régime dispersé et le régime à poches en sortie lors de la production de mousses avec le dispositif CX600 et la solution WPI3XG04. La fraction de vide 0,57 et les deux conditions sélectionnées du débit liquide sont aussi présentées.

1.4.2 Caractéristiques rhéologiques des mousses en sortie du procédé

La figure 97 présente les résultats des caractérisations rhéologiques effectuées pour les mousses élaborées avec les dispositifs microfluidiques et les couples de débits sélectionnés Q_{vL} = 3 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1} et Q_{vL} = 11 L.h^{-1} Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. La figure 97a présente les symboles et codes de couleur utilisés pour différencier les conditions dispositif-débit. Les tests d'écoulement pour toutes les conditions sont présentés dans la figure 97b. Afin de mieux visualiser les effets sur la viscosité au repos de la mousse, un graphique en encart montre une vue agrandie du premier plateau newtonien. Ce sont les mousses produites avec les dispositifs CX600 et CX-E600 qui présentent les viscosités au repos les plus élevées et permettent donc d'obtenir des mousses qui auraient une stabilité supérieure. De manière similaire, des caractérisations des modules dynamiques sont proposées. Puisque les écarts entre les valeurs de G' et G'' avaient toujours la même valeur ($\tan\delta = G''/G' = 0{,}4$), les discussions sur la fermeté de mousses produites se centreront seulement sur les valeurs du module élastique G' et en particulier, sa valeur à la fréquence de 1 Hz. Les caractérisations de G' pour toutes les conditions sont présentées dans la figure 97c. On peut constater que ce sont les dispositifs CX600 et CX-E-600 qui donnent des mousses ayant une fermeté supérieure.

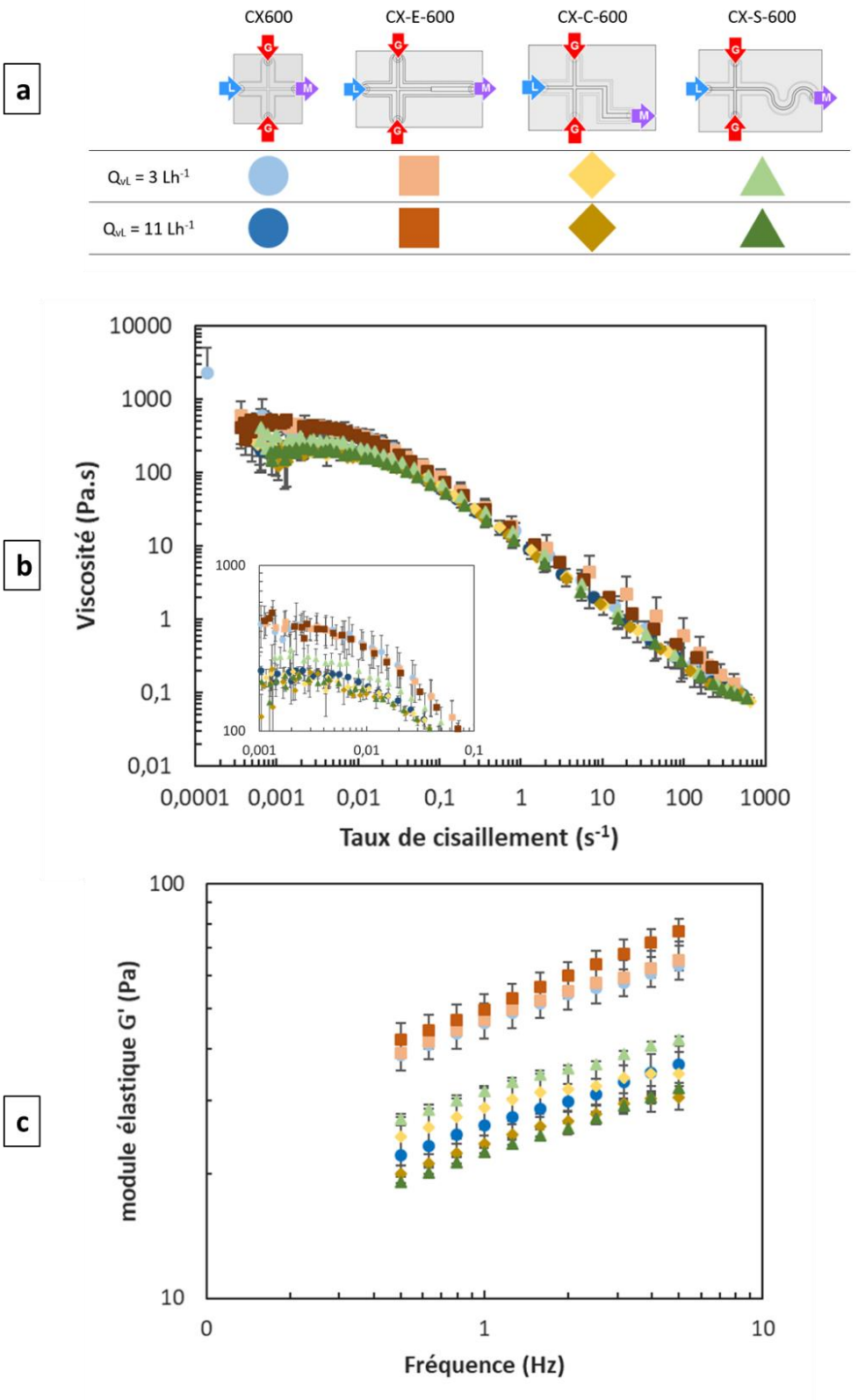


Figure 97. Caractérisations rhéologiques des mousses produites. **a)** Marqueurs et couleurs utilisés pour identifier les conditions débit-dispositif. **b)** Tests d'écoulement effectués dans un rhéomètre à contrainte imposée à 20°C **c)** Détermination des modules élastiques *G'* effectuée dans un rhéomètre à contrainte imposée à 20°C. Solution employée WPI3XG04.

Ces constats qualitatifs sont peu discriminants ; ils vont donc s'appuyer également sur une analyse statistique. Une analyse de variance Anova est menée à cet effet pour déterminer statistiquement les différences entre les dispositifs en termes de propriétés élastiques (*G'*) des mousses produites. Cette analyse accompagnée d'un test postAnova de Tuckey (annexe I) a donné comme résultat principal l'obtention de mousses significativement différentes en termes de fermeté. Ce sont en effet les mousses produites avec CX600 et CX-E-600 qui statistiquement se sont avérées comme les plus fermes. La figure 98 présente les graphiques pour les effets principaux (débit et dispositif) ainsi que pour leur interaction sur le module élastique. Dans la figure 98a, on constate que les moyennes des modules élastiques des dispositifs CX600 et CX-E-600 se trouvent au-dessus de la moyenne calculée. Ceci se traduit par des mousses statistiquement différentes de celles produites avec les autres dispositifs (CX-S-600 et CX-C-600). Une situation particulière est remarquée en analysant la figure 98b. Dans cette figure, le fait d'augmenter le débit serait désavantageuse pour la fermeté des mousses car la moyenne de *G'* calculée pour 11 $L.h^{-1}$ est inférieure à celle à 3 $L.h^{-1}$. Cependant, comme on peut voir sur la figure 98c, que cet effet moyen cache une disparité de comportement entre les dispositifs. Le dispositif CX-E-600 présente lui un effet positif lors d'une augmentation de débit.

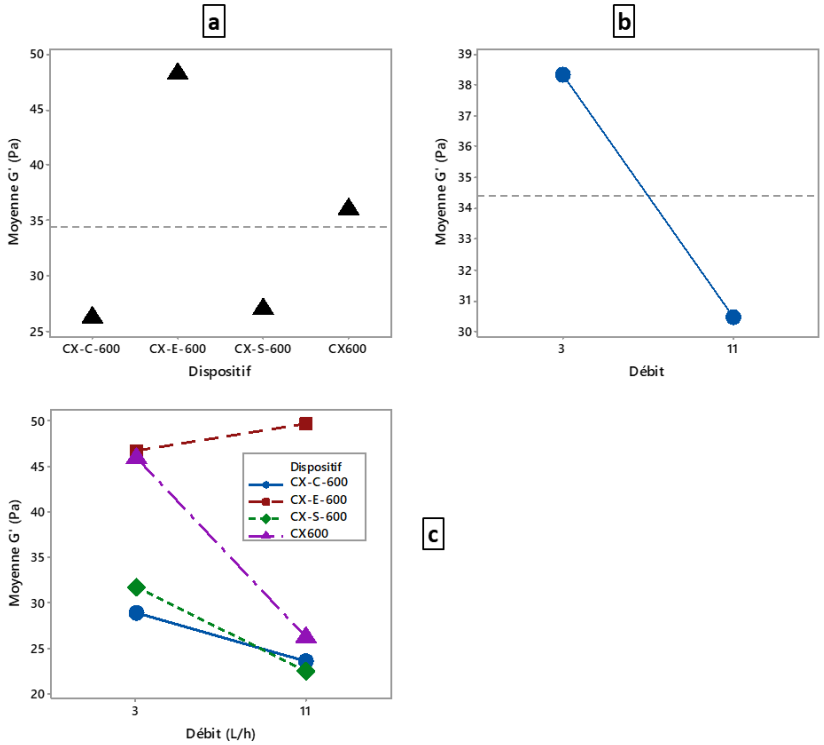


Figure 98. Evaluations statistiques des effets principaux (dispositif microfluidique et débit liquide) et de l'interaction des effets principaux sur la fermeté des mousses **a)** effet principal du dispositif sur le module élastique G' **b)** effet principal du débit sur G' **c)** effet de l'interaction sur G'. Solution employée WPIXG04. Dispositifs microfluidiques utilisés CX600, CX-E-600, CX-C-600 et CX-S-600.

Une analyse statistique complémentaire a été effectuée pour les dispositifs CX600 et CX-E-600 en incorporant l'effet d'un changement de la teneur en xanthane. Deux solutions ont donc été testées pour la production des mousses : WPI3XG04 ayant une concentration en xanthane de 0,4% en masse et WPI3XG02 ayant une concentration en xanthane de 0,2%. Les courbes statistiques pour les effets principaux peuvent être retrouvées dans la figure 99. Dans la figure 99a on constate la performance supérieure d'un dispositif avec un élargissement dans la production de mousses fermes. La figure 99b montre que les propriétés physiques de la phase continue vont jouer aussi un rôle essentiel sur les mousses en sortie. Finalement, dans la figure 99c on remarque que lorsqu'on évalue seulement les dispositifs CX600 et CX-E-600, l'augmentation du débit a un effet plutôt positif sur la fermeté de la mousse. Ceci confirme l'hypothèse posée précédemment sur les faibles valeurs de *G'* pour les dispositifs CX-S-600 et CX-C-600 comme étant les responsables de l'abaissement de la moyenne pour 11 $L.h^{-1}$ dans la figure 98b. Il est donc possible que des phénomènes de coalescence soient favorisés pour les géométries CX-S-600 et CX-C-600 ce qui expliquerait des réseaux moins structurés et donc des *G'* plus faibles. L'effet des interactions pour cette analyse est présenté dans la figure 100. Cette figure montre que les interactions sont aussi significatives (lignes non parallèles) sur les caractéristiques développées dans les mousses en sortie du procédé.

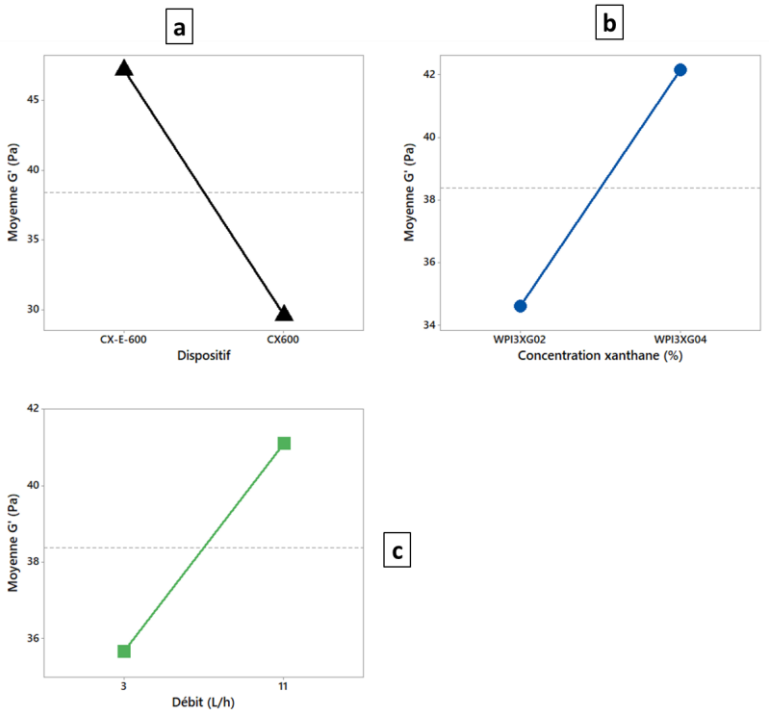


Figure 99. Evaluations statistiques des effets principaux (dispositif microfluidique, débit liquide et concentration de xanthane) sur la fermeté des mousses. **a)** effet dispositif **b)** effet concentration de xanthane **c)** effet débit. Solutions employées WPI3XG04 et WPI3XG02. Dispositifs microfluidiques utilisés CX600 et CX-E-600.

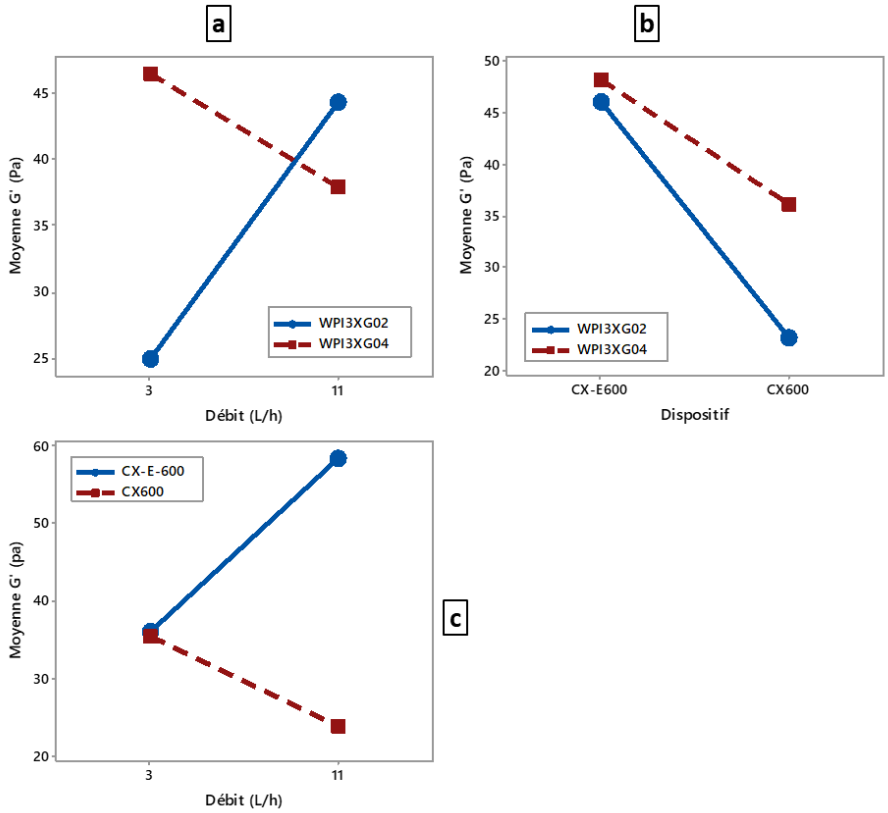


Figure 100. Evaluations statistiques de l'interaction des effets principaux (dispositif microfluidique, débit liquide et concentration de xanthane) sur la fermeté des mousses **a)** interaction débit-concentration XG **b)** interaction dispositif-concentration XG **c)** interaction débit-dispositif. Solutions employées WPI3XG04 et WPI3XG02. Dispositifs microfluidiques utilisés CX600 et CX-E-600.

1.5 Modification de la longueur de détente en sortie du dispositif

Dans la section 1.2 des résultats, il n'a pas été observé de différences significatives de limites entre les régimes pour la mousse en sortie dans le cas de la modification de la longueur du tuyau de détente de diamètre 0,16 cm. Les résultats ont montré que seule la pression d'injection augmentait quand la longueur du tuyau était plus importante. Ceci empêchait d'atteindre des hauts débits pour le cas de la longueur de 5 m en raison principalement des énormes pressions créées à l'intérieur du dispositif.

Des expériences complémentaires ont été menées pour déterminer si la longueur de 1 m ou une longueur intermédiaire entre 1 et 5 m (3,70 m) était plus adéquate en termes d'aspect de mousse en sortie. Également, des essais ont été conduits en rajoutant un deuxième tuyau dans le but de déterminer si un temps de détente plus long permettrait de faciliter la récupération de la mousse en sortie ainsi que d'améliorer son aspect.

La figure 101 présente trois exemples de foisonnement de la solution WPI3XG04 à un débit de 11 Lh^{-1} avec trois configurations de détente en sortie du dispositif. D'abord la figure 101a montre le cas pour une mousse produite avec une détente constituée seulement du tuyau de 0,16 cm de diamètre interne avec une longueur de 1 m. Dans ce cas la récupération de la mousse était difficile en raison de la forte vitesse d'éjection résultant des hautes pressions dans le dispositif. L'augmentation de la longueur de ce tuyau de détente de 1 m à 3,70 m (figure 101b) permettait d'améliorer la récupération de la mousse en sortie en diminuant la vitesse d'éjection. Ceci permettait d'améliorer l'homogénéité du produit en sortie. Cependant, cette configuration ne permettait pas d'augmenter beaucoup les débits liquides en raison des pressions trop élevées pouvant abimer les dispositifs. En conséquence, la longueur de 1 m pour le tuyau de diamètre 0,16 cm a été retenue.

Cette longueur de 1 m donnait des échantillons plutôt hétérogènes comme observé dans la figure 101a et donc nous avons choisi d'ajouter un deuxième tuyau de diamètre 1 cm et longueur de 5 m, facilitant la récupération de la mousse tout en évitant d'augmenter les pressions générées dans le dispositif (figure 101c). Cette configuration s'est avérée appropriée pour obtenir une mousse plus homogène. Elle est donc adoptée ainsi pour les études approfondies décrites dans les parties suivantes de cette thèse et elle correspond à la configuration présentée dans la figure 65 du chapitre « matériels et méthodes ».

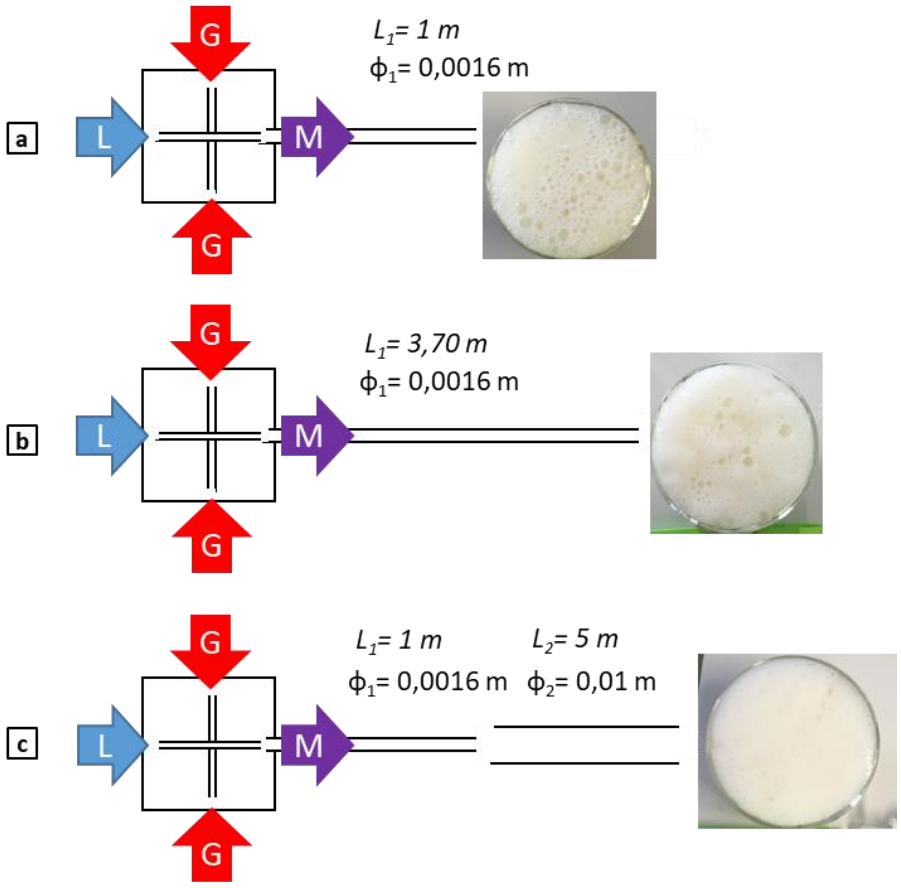


Figure 101. Aspect visuel de la mousse en sortie pour plusieurs configurations de longueur de détente du microsystème **a)** détente composée d'un seul tuyau en sortie du dispositif microfluidique ayant une longueur de 1 m et diamètre interne de 0,16 cm **b)** détente composée d'un seul tuyau en sortie du dispositif microfluidique ayant une longueur de 3,70 m et diamètre interne de 0,16 cm **c)** détente composée de deux tuyaux en sortie du dispositif microfluidique : un premier tuyau ayant une longueur de 1 m et diamètre interne de 0,16 cm et un deuxième tuyau ayant une longueur de 5 m et diamètre interne de 1 cm.

1.6 Conclusion

Cette étude préliminaire a concerné d'abord l'identification de la limite entre le régime dispersé et le régime à poches, pour l'écoulement multiphasique gaz-liquide. Des cartographies ont été proposées dans les conditions d'écoulement en microcanal et également dans les conditions d'écoulement en sortie du procédé. Les représentations en sortie sont intéressantes étant donné qu'elles permettent de choisir les conditions du procédé en fonction de la fraction de vide souhaitée pour le produit final. La viscosité a été remarquée comme étant le paramètre ayant l'effet plus important sur la limite des régimes. Le diamètre hydraulique en général n'a pas modifié les limites en sortie sauf peut-être pour la solution WPI3XG05. Cependant, cette modification est probablement due à des instabilités créées à cause d'un fluide très visqueux traversant un canal de dimensions très petites.

L'identification de ces limites a ensuite conduit à effectuer un choix de solution en fonction de ces premiers résultats mais aussi des caractéristiques souhaitées pour la mousse en sortie, notamment une stabilité supérieure au repos. C'est ainsi que la solution WPI3XG04 a été sélectionnée. Ayant établi les conditions pour l'élaboration des mousses, l'étape suivante consistait à déterminer quelle configuration des dispositifs microfluidiques donnerait des mousses de meilleure qualité, en termes de fermeté. Les dispositifs ayant des diamètres hydrauliques de 600 µm furent privilégiés en raison d'un fonctionnement plus stable avec des fluides visqueux. Parmi ces dispositifs, les dispositifs CX600 et CX-E600 sont ceux qui ont permis d'obtenir les meilleures propriétés caractéristiques des mousses.

Finalement des essais complémentaires ont été menés pour améliorer davantage la qualité de la mousse en sortie. Ces essais consistaient à déterminer la configuration de la détente en sortie qui permettrait de faciliter la récupération de la mousse ainsi que la diminution des possibles pulsations occasionnées par le pompage des fluides très visqueux. La configuration choisie se compose d'un premier tuyau de détente de diamètre interne 0,16 cm et longueur 1 m (petit tuyau) et un deuxième tuyau de 1 cm de diamètre interne et longueur de 5 m (gros tuyau). Ayant défini la solution à foisonner, les caractéristiques de la mousse en sortie, les conditions du procédé à utiliser et les dispositifs les plus intéressants vis-à-vis des propriétés du produit en sortie, il est maintenant possible de mener une étude rigoureuse sur la production de mousses avec des dispositifs microfluidiques à hauts débits.

2 Deuxième partie : Foisonnement dans un dispositif microfluidique en croix

2.1 Introduction

Cette partie va se centrer sur l'étude approfondie du dispositif de base en croix. Le dispositif de référence sélectionné pour cette étude correspond à celui ayant des canaux carrés avec un diamètre hydraulique de 600 µm. Comme établi dans la première partie des résultats, le choix du dispositif en croix avec diamètre hydraulique 600 µm au lieu de 500 µm provient d'un fonctionnement plus stable (moins de pulsations) de ces dispositifs lorsque des solutions très visqueuses, comme celles proposées pour cette étude, sont pompées. La solution contenant 3% d'isolats de protéines sériques (WPI) et 0,4% de gomme xanthane (XG) a été choisie pour ces évaluations. A des fins de comparaison, la fraction de vide du produit final a été fixée à 0,57, valeur qui est dans la région de production de mousses du régime dispersé identifié dans la partie précédente des résultats.

Cette partie consolidera les bases et servira de référence pour les futures comparaisons avec les dispositifs incorporant des singularités géométriques. Dans un premier temps, on s'intéressera à la caractérisation de l'écoulement diphasique gaz-liquide à l'intérieur du canal de mélange. Des analyses de la distribution de la taille des bulles ainsi que des phénomènes de déformation des interfaces à l'intérieur du canal de mélange seront abordées. Cette partie se concentre aussi sur l'étude de la distribution de taille des bulles en sortie. Des comparaisons entre la taille des bulles au moment de leur formation et dans le produit final sont effectuées systématiquement afin de vérifier l'hypothèse de fractionnement des bulles le long de la ligne de production. Les effets sur la taille des bulles de plusieurs paramètres tels que le débit, le diamètre hydraulique et la concentration en gomme xanthane sont aussi étudiés. Enfin, le lecteur pourra retrouver l'intégralité des tableaux présentés ici ainsi que d'autres tableaux complémentaires dans l'annexe A.

2.2 Train des bulles

L'imagerie à haute vitesse est amplement utilisée dans les travaux de recherche relevant de la microfluidique (Garstecki *et al.*, 2005 ; Thoroddsen *et al.*, 2008 ; Versluis 2013). Cependant, la plupart de ces études concerne des visualisations à des faibles débits,

généralement de l'ordre de 1 ml.min^{-1}. Ainsi, ce travail a également représenté un challenge du point de vue de l'optimisation des conditions d'acquisition nous permettant figer les bulles circulant à plusieurs mètres par seconde, tout en pouvant les suivre sur des séquences de plusieurs images.

La figure 102 présente un exemple des visualisations obtenues pour un train de bulles à l'intérieur du dispositif CX600. D'abord, la figure 102a montre une schématisation du dispositif CX600 ainsi que de la zone d'observation. Cette zone correspond à l'intersection des canaux d'entrée des fluides et à la zone d'entrée du microcanal droit où les bulles sont formées (jonction des fluides) ; il s'agit du microcanal qu'elles traversent pour continuer leur chemin vers d'autres parties du procédé.

La figure 102b présente un exemple du train de bulles observé en utilisant la solution WPI3XG04 et les débits Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. La première constatation qui s'impose concerne la forme des bulles. Les bulles présentent une forme de larmes, un phénomène déjà constaté dans le cas des gouttes traversant un fluide viscoélastique (Tsamopoulos 2008). D'autres études utilisant des solutions newtoniennes incluant comme tensioactif du sodium dodecyl sulfate révèlent des formes de bulles plutôt ovales (Cheng & Mewes, 2011 ; Gaillard 2016 ; Kang *et al.*, 2010). Dans notre étude, les bulles se forment alternativement dans chacune des entrées de gaz. Le train de bulles ainsi constitué présente une forme d'épi.

On n'observe pas la moindre turbulence dans l'écoulement diphasique malgré des nombres de Reynolds voisins de 2000, calculés pour les conditions utilisées pour cette visualisation (tableau 5) : les bulles de gaz agissent comme des parois solides vis-à-vis de l'écoulement, ce qui pourrait réduire considérablement le nombre de Reynolds réel caractérisant la dynamique. Mais l'écoulement peut néanmoins être très inertiel tout en étant laminaire.

Un dernier élément concerne l'évolution des bulles le long du microcanal. Les bulles, se formant près de la paroi, migrent petit à petit vers le centre où le cisaillement est plus faible. Au fur et à mesure que les bulles avancent à l'intérieur du canal, leur forme change en une configuration plus hydrodynamique. Cette transformation serait liée aux réarrangements intervenant dans l'interface fluide afin de réduire la résistance à l'écoulement (Anna 2016).

Ces évolutions de morphologie suggèrent en effet que le régime n'est pas encore établi dans la zone observée.

Tableau 5 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans le dispositif microfluidique CX600 pour plusieurs conditions de débit en utilisant la solution WPI3XG04

P_{pompe}	Q_{vL}	U_L	Q_{mG}	p_{inj}	Q_{vG}	U_G	$\alpha\ (p)$	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L	ΔP_1
bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	g.h^{-1}	bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	-	s^{-1}	Pa.s	-	-	-	bar
2,05	3,0	2,17	5,00	1,53	1,70	1,31	0,377	2,57E+04	3,38E-03	0,16	373	60	0,48
3,89	6,9	5,32	13,00	2,70	3,02	2,33	0,305	6,30E+04	2,69E-03	0,31	1153	358	1,00
6,37	11,0	8,46	21,60	3,83	3,85	2,97	0,260	1,00E+05	2,49E-03	0,46	1981	907	1,53
7,78	13,7	10,56	26,50	4,65	4,04	3,12	0,228	1,25E+05	2,42E-03	0,56	2545	1413	1,97
9,22	16,4	12,66	31,00	5,52	4,09	3,16	0,200	1,50E+05	2,37E-03	0,65	3113	2030	2,34
11,81	19,1	14,75	36,40	6,45	4,21	3,25	0,180	1,75E+05	2,34E-03	0,75	3684	2759	2,90

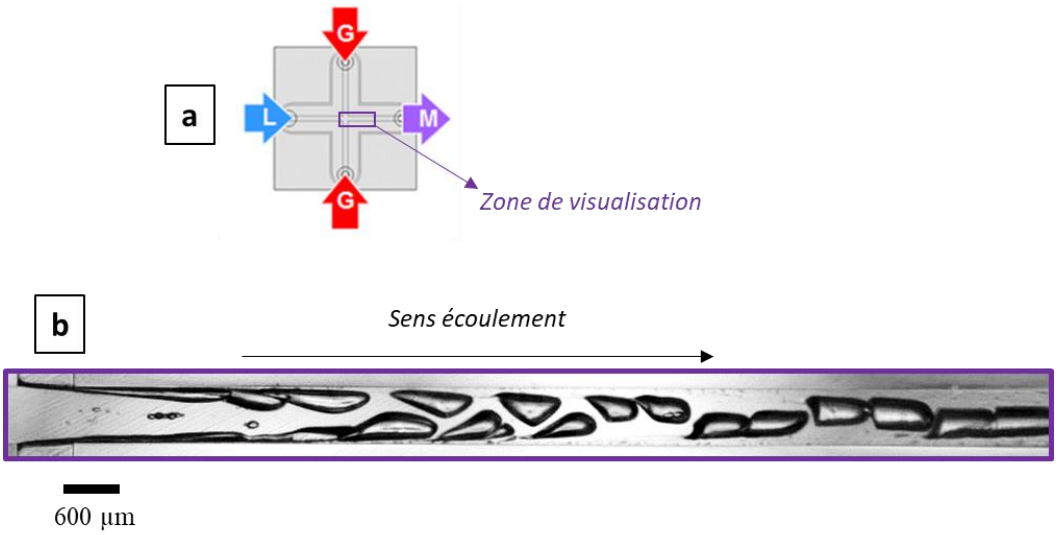


Figure 102. Visualisation de l'écoulement diphasique gaz-liquide à l'intérieur des microcanaux **a)** schéma du dispositif CX600 montrant la zone M1 de visualisation **b)** visualisation du train de bulles formé en utilisant la solution WPI3XG04. Q_{vL} = 11 L.h^{-1}, Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,83 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1}.

2.3 Profil de vitesse

La mesure exacte d'un profil de vitesse dans le cas des microcanaux à hauts débits représente une démarche complexe en raison de la difficulté à figer exactement les bulles ou artefacts aussi bien dans l'axe axial que radial. Malgré cela, il a été possible d'évaluer les vitesses près des parois et celle au centre du microcanal, à 3 positions différentes en augmentant la fréquence d'acquisition des images à 40 000 Hz. Les 3 régions se trouvent à 3, 6 et 10 mm de la zone de de formation des bulles (jonction des fluides). Les vitesses près des

parois ont été mesurées à approximativement 110 µm des parois. Ceci a donc permis d'établir de façon approximative un profil de vitesse 2D pour 3 régions de l'écoulement (figure 103).

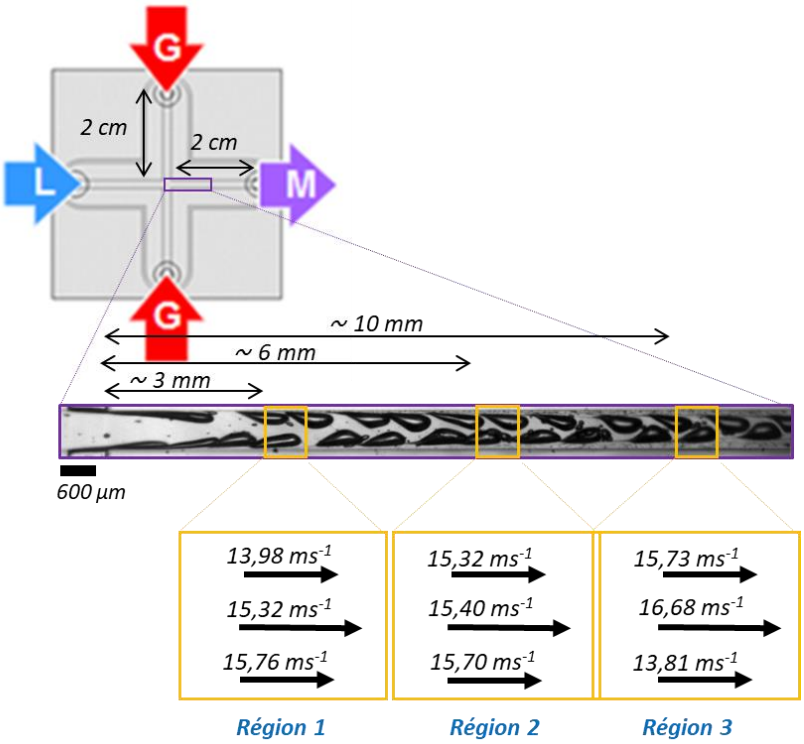


Figure 103. Profils des vitesses des bulles à l'intérieur du canal (zone M1) à 3, 6 et 10 mm de la jonction des fluides. Conditions expérimentales : dispositif CX600, solution WPI3XG04, Q_{vL}=11 L.h^{-1}, Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,83 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1}. Fréquence d'acquisition d'images 40 000 Hz.

Pour les régions 1 et 2 de la figure 103, la vitesse des bulles dans le centre du canal n'a pas été, en fait, la plus élevée par rapport aux vitesses aux parois comme c'est normalement le cas avec un profil parabolique de vitesse en régime laminaire établi. Dans les régions 1 et 3, il existe des écarts importants de la vitesse entre les deux parois. Ces résultats semblent indiquer des changements locaux de la vitesse en raison des effets collectifs entre bulles et entre fluides et renforcent donc l'idée avancée auparavant concernant les bulles agissant comme des parois solides qui changent localement les caractéristiques de l'écoulement. A part d'agir comme des parois solides, la présence de plusieurs bulles en amont crée des passages rétrécis à travers lesquels la solution s'écoule ce qui pourrait ainsi entrainer des changements locaux de la vitesse. Les effets inertiels, en tenant compte d'un nombre de Reynolds calculé autour de 2000 (tableau 5), joueraient aussi un rôle dans les fluctuations locales de vitesses (Çengel & Cimbala, 2014).

Une autre observation importante concerne la vitesse croissante le long du microcanal, au centre de celui-ci. On avait en effet mentionné auparavant que les bulles semblent

s'allonger de plus en plus comme si elles étaient accélérées ce qui pourrait indiquer un régime non établi de l'écoulement. En toute logique, la diminution progressive de la pression dans le canal conduit à une diminution de la masse volumique du gaz et donc à son expansion, chemin faisant. Il est possible de déterminer approximativement la distance d'établissement pour un écoulement laminaire monophasique avec l'équation 54 (Çengel & Cimbala, 2014 ; Kandlikar *et al.*, 2014).

$$\frac{L_{h,laminar}}{D} \cong 0{,}05Re \tag{54}$$

Où D représente le diamètre (ou diamètre hydraulique) et L_h la distance d'établissement de l'écoulement. Pour un Reynolds de 1981 et un diamètre hydraulique de 600 µm, la distance d'établissement serait d'environ 6 cm. Le microcanal ayant une longueur de 2 cm, il serait nécessaire de le rallonger d'au moins 4 cm pour éventuellement obtenir un régime établi dans le dispositif en écoulement monophasique. Il pourrait être intéressant d'observer les comportements des bulles à ces distances de régime établi estimées en écoulement monophasique.

Finalement, un certain nombre d'autres facteurs doivent être mentionnés dans cette discussion. La géométrie des canaux, en l'occurrence les canaux carrés de nos dispositifs, pourraient conduire à des écoulements moins homogènes que dans le cas des conduits circulaires. Un autre facteur serait lié au caractère rhéofluidifiant de nos solutions. Le profil de vitesse en présence d'un liquide rhéofluidifiant est plus arrondi et moins parabolique que celui correspondant à une solution newtonienne (Çengel & Cimbala, 2014). Enfin, la compressibilité du gaz pourrait représenter un facteur ayant un impact sur les mesures des vitesses par analyse d'images. En effet, d'une photo à l'autre, une bulle pourrait s'étirer plus ou moins (en fonction aussi des changements locaux). Ceci peut modifier les points de repère entre deux photos pour les mesures de vitesses sans que cela soit lié à des vrais changements de vitesse, mais plutôt de forme en raison de déformation des interfaces. A minima, la pression diminuant progressivement le long du canal, on peut présumer que le volume des bulles augmente dans le même temps. En effet, si comme expliqué l'ensemble de ces facteurs rend délicat l'interprétation de ces mesures de vitesse, il n'en demeure pas moins que la vitesse moyenne mesurée des bulles augmente systématiquement lors de leur progression le long du canal. Cette évolution parait logique si l'on considère que l'un des fluides augmente

de volume et que le second, contraint d'augmenter sa vitesse par diminution de l'espace disponible, l'entraine à son tour.

2.4 Déformation et fractionnement dans le canal de mélange

Les visualisations ont également permis l'identification des phénomènes de déformation des interfaces gaz-liquide à l'intérieur des microsystèmes. La figure 104a reprend le cas des bulles traversant le microcanal du dispositif CX600 (zone de mélange M1). Il est possible d'identifier la formation des minces filaments gazeux formés à l'arrière des bulles et près des parois où les cisaillements sont les plus forts. Le suivi d'une bulle en utilisant une fréquence d'acquisition d'images de 40 000 images/s a permis de visualiser l'évolution de ce filament (figures 104a-b). La figure 104c présente un grossissement de la bulle encadrée en jaune dans la figure 104b. Le filament gazeux évolue jusqu'à se fractionner progressivement en plusieurs parties ou bulles satellites. Cette érosion systématique de la bulle a été déjà observée par d'autres auteurs, dans d'autres conditions d'écoulement, sous le nom de *tip-streaming* (De Bruijn, 1993 ; Jeong *et al.*, 2012 ; Moyle *et al.*, 2012).

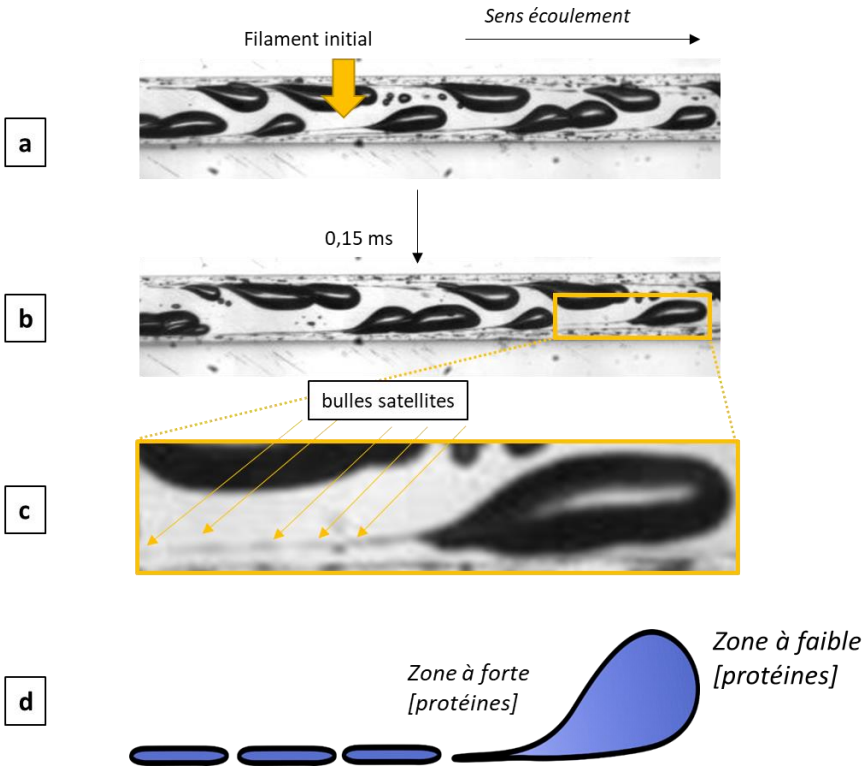


Figure 104. Identification du mécanisme tip streaming **a)** visualisation des filaments gazeux formés à l'arrière des bulles dans le dispositif CX600 avec la solution WPI3XG04, Q_{vL}=11 L.h^{-1}, Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,83 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1} **b)** suivi du fractionnement du filament en plusieurs bulles satellites (tip-streaming) après 6 photos (0,15 ms) à une fréquence d'acquisition d'images de 40 000 images par seconde. **c)** grossissement sur la bulle mère et les bulles satellites détachées. **d)** schéma du mécanisme de tip streaming.

D'après De Bruijn (1989 et 1993) et Moyle *et al.*, (2012), ce type de mécanisme de fractionnement est le résultat des gradients de tension interfaciale. En outre, Anna (2016) et Jain (2017) ajoutent que ce phénomène existe pour des concentrations modérées ou intermédiaires des molécules tensioactives. Dans nos solutions on a utilisé une concentration en excès de protéines (3% en masse) par rapport à la concentration de saturation de l'interface. Cette concentration serait 50 fois plus importante que la concentration micellaire critique signalée par Puerta-gomez (2014) pour le cas des isolats de protéines sériques (0,6 $g.L^{-1}$). Selon nos estimations (annexe F) la concentration de 3% serait en fait à peu près 460 fois supérieure à ce qui serait nécessaire pour recouvrir les bulles. Les concentrations en excès assurent une diffusion immédiate vers l'interface qui vient d'être créée. Dans ces conditions, les interfaces créées devraient normalement être complètement saturées. Cependant, on observe du tip streaming dans nos visualisations, ce qui veut dire qu'il existe des gradients interfaciaux, donc des interfaces probablement partiellement couvertes. La figure 104d schématise cette situation pour les bulles visualisées sous nos conditions expérimentales. Il existerait trois facteurs qui pourraient être à l'origine de gradients interfaciaux formés dans les bulles traversant la région M1.

Le premier facteur est un temps de formation de bulle et de séjour des bulles beaucoup plus court que le temps nécessaire pour l'adsorption de protéines. Aguilera et Lillford (2008) et Muijlwijk *et al.*, (2016b) rapportent des temps d'adsorption allant de 1 à 10 ms pour l'adsorption des molécules de sodium dodécyl sulfate (SDS) dans des interfaces liquide-liquide ; or le SDS est un surfactant de faible poids moléculaire. Les WPI étant des molécules avec des poids moléculaires beaucoup plus importants, on peut s'attendre à des temps d'adsorption plus longs (Saint-Jalmes *et al.*, 2005).

Walstra (2003) a proposé des calculs approximatifs pour connaître le temps d'adsorption des molécules vers des interfaces air-eau et huile-eau en utilisant l'équation 55 pour des adsorptions pilotées par la diffusion en régime plutôt laminaire. t_{ads} correspond au temps nécessaire pour une adsorption complète, D est le coefficient de diffusion, c la concentration des molécules et Γ_∞ la concentration de surface à saturation. Puisque la β-lactoglobuline est la molécule prédominante dans les isolats de protéines sériques, une concentration de surface à saturation de 2,1 $mg.m^{-2}$ a été utilisée (Pérez-Fuentes *et al.*, 2017). Concernant le coefficient de diffusion, une valeur de $2{,}4 \times 10^{-11}$ $m^2.s^{-1}$ a été identifié (Sadek

et al., 2015) pour le cas des WPI. Finalement, la concentration des WPI dans nos solutions étant de 3% en masse, on obtient un temps d'adsorption de l'ordre de 2 ms.

$$t_{ads} \approx 10 \frac{\Gamma_{\infty}^2}{c^2 D} \tag{55}$$

Or nous savons par comparaison entre deux images successives que nos interfaces sont formées dans un temps inférieur à 0,2 ms. Puisque le temps d'adsorption de 2 ms est largement supérieur aux 0,2 ms de formation des interfaces, on pourrait supposer qu'il n'existe pas une couverture totale des interfaces. Il est d'autre part important de mentionner que le temps d'adsorption peut être plus petit que celui précédemment évalué s'il existe un transport convectif (Walstra, 2003). Mais il y a aussi d'autres effets qui pourraient allonger le temps d'adsorption des polymères telles que les protéines. Selon Berton-Carabin *et al.* (2018), pour que les polymères adsorbés à l'interface soient fonctionnels, il est nécessaire que des réarrangements de leur structure aient lieu. Dans le cas des protéines globulaires, ces changements de conformation peuvent durer jusqu'à 10^3 s (Walstra, 2003). Également, une couverture complète de la surface est aussi ralentie par des processus continus de désorption et réadsorption des polymères (Walstra, 2003). En conclusion, le fait que les temps d'adsorption de protéines soient beaucoup plus élevés que les échelles du temps de formation des bulles dans la zone M1 pourrait expliquer une saturation partielle des interfaces favorisant l'établissement des gradients interfaciaux et donc du tip-streaming observé lors des écoulements.

Le deuxième facteur qui pourrait contribuer à l'établissement de gradients interfaciaux serait lié à l'écoulement en lui-même. Les bulles formées dans la zone M1 du microcanal vont subir de fortes contraintes visqueuses surtout près des parois ce qui se traduit par des déformations importantes de l'interface. Les molécules tensioactives sont donc balayées tout au long de l'interface (Anna 2016). Les déformations des interfaces elles-mêmes créent ces gradients ce qui permet de concentrer les tensioactifs à l'arrière de la goutte et de former la queue initiant le tip streaming. Finalement **un troisième facteur** concernerait la « gêne » que les molécules de xanthane dans nos solutions pourraient occasionner aux protéines dans leur migration et arrangements dans l'interface. La concentration de xanthane dans la solution utilisée est de 0,4% en masse. Selon Wyatt *et al.* (2011) et Gu (2013) des solutions de xanthane à ces concentrations appartiendraient déjà à un régime concentré dans lequel les

molécules pourraient se gêner stériquement. En conséquence, la mobilité des protéines en solution serait réduite ralentissant la cinétique d'adsorption et donc des interfaces partiellement couvertes permettant la création de gradients interfaciaux.

D'autres questions qui restent à élucider avec précision sont liées aux instabilités hydrodynamiques responsables de ce fractionnement. La première hypothèse favoriserait la présence d'une *instabilité de Rayleigh-Plateau* laquelle est caractéristique du fractionnement des cylindres effilés par l'action des forces capillaires (Chandrasekhar, 1961 ; Eggers & Villermaux, 2008 ; Link *et al.*, 2004). Cependant, d'autres instabilités pourraient elles aussi contribuer, à un certain degré, à ce type de fractionnement dans nos conditions expérimentales.

Par exemple, l'*instabilité de Kelvin-Helmotz* développe des ondes à l'interface à cause du cisaillement entre deux fluides qui se déplacent à différentes vitesses (Chandrasekhar, 1961 ; Günther & Kreutzer, 2009). Elle pourrait donc être à l'origine de l'érosion des bulles en raison des vitesses de déplacement différentes entre les bulles et le liquide. L'instabilité *de Rayleigh-Taylor* pourrait aussi participer à ce phénomène. Cette instabilité a lieu lorsqu'un fluide plus lourd (masse volumique) est accéléré vers un autre fluide moins lourd (Brennen, 2006 ; Chandrasekhar, 1961). La présence de cette instabilité pourrait être en effet favorisée dans le microcanal en raison des effets collectifs dû à la présence de plusieurs bulles dans le canal. Le rétrécissement au passage du liquide entre deux bulles pourrait en effet occasionner une accélération locale de la solution (plus lourde) vers les bulles (moins lourdes) qui se trouvent en aval.

2.5 Granulométrie dans le microcanal

La taille des bulles dans la zone de mélange M1 est un autre paramètre important à évaluer pour la caractérisation des microsystèmes visant des applications de foisonnement. Généralement, dans les applications microfluidiques traditionnelles, des populations très homogènes de gouttes ou de bulles sont formées dans ces dispositifs submillimétriques. L'évaluation des tailles des bulles à hauts débits d'injection relève donc d'un intérêt scientifique afin de déterminer les caractéristiques structurales des bulles générées dans les microcanaux à ces hauts débits. La figure 105a présente la distribution granulométrique pour les bulles à l'intérieur du dispositif CX600 dans la zone M1 (ou canal de mélange) formées à partir du foisonnement de la solution WPI3XG04 à un débit liquide de 11 $L.h^{-1}$. On constate

une distribution plutôt homogène. Cette relative monodispersité peut être aussi confirmée par comparaison des diamètres de Sauter, qui mesurent la contribution de la surface, et le diamètre moyen, qui est impacté plutôt par le nombre des bulles. Les deux valeurs étant très proches pour ces deux diamètres dans la figure 105b, on a des distributions plutôt resserrées.

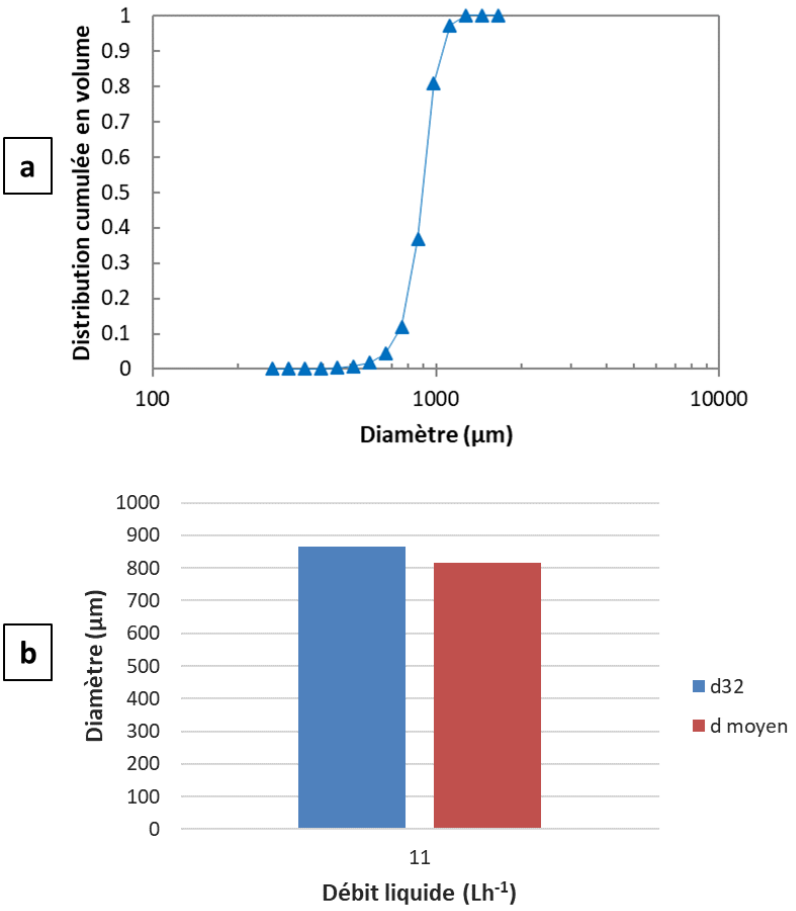


Figure 105. Caractérisation de la taille des bulles à l'intérieur du dispositif CX600 en utilisant la solution WPI3XG04 à Q_{vL}=11 L.h^{-1}, Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} et P_{inj} = 3,83 **a)** granulométrie sous forme de distribution cumulée en volume. **b)** diamètre moyen et de Sauter de l'échantillon analysé. Diamètres rapportés à la pression atmosphérique.

2.6 Evolution des bulles et formation de la mousse en aval du microsystème

Un des objectifs de ces travaux portait aussi sur l'étude de l'évolution du train de bulles le long du procédé. Une cellule permettant une visualisation en ligne a été donc conçue spécifiquement afin de déterminer l'état des bulles dans le premier tuyau de détente (D ~ 0,16 cm). Les bulles sont aussi caractérisées en sortie du procédé afin de connaître leur état dans le produit en sortie de la ligne de production. En revanche, l'écoulement n'est pas visualisable avec le matériel disponible dans le second tuyau de détente car le diamètre de ce dernier est trop important.

2.6.1 Visualisation en ligne du train de bulles

La figure 106 présente un exemple des visualisations effectuées à l'intérieur du dispositif de visualisation en ligne (*CVL* dans la figure 65) placé dans le premier tuyau de détente. En raison des dimensions importantes du conduit (D_h ~ 1600 µm), l'analyse de l'écoulement par imagerie s'est avérée être délicate car plusieurs épaisseurs de bulles se superposent, ce qui ne permet pas de les séparer par rétroéclairage.

Quelques constatations importantes ont néanmoins pu être faites avec ces visualisations. Les vitesses des bulles semblent augmenter entre l'entrée et la sortie de ce dispositif. Ce changement qui n'est néanmoins pas très important ne serait pas nécessairement dû à un régime non établi, mais plutôt à des effets collectifs entre bulles. On constate en effet que les bulles s'organisent dans le centre du canal au cours de la traversée du dispositif de visualisation. Un deuxième aspect à remarquer concerne la forme des bulles. A ce niveau les bulles ont gagné une forme plus proche de la sphère et la vitesse relative entre le liquide et le gaz est devenue très faible comparativement à la situation observée dans le microcanal (les vitesses superficielles sont données respectivement dans le microcanal et dans la cellule de visualisation en ligne dans les tableaux 5 et 6). Cependant, même si la structure de l'écoulement semble plus proche de celle d'une mousse qu'à l'intérieur du microsystème, la fraction de vide de 0,34 calculée pour les conditions de ces visualisations (tableau 6 pour Q_{vL} = 11 Lh^{-1}) est encore inférieure à 0,5 qui est souvent décrite comme la limite en fraction de vide pour qu'un produit soit considéré comme une mousse liquide (Cantat *et al.*, 2013).

Finalement, aucun fractionnement important n'a été visualisé à ce niveau à part quelques fractionnements occasionnels comme celui présenté dans la figure 107. On peut y observer qu'une bulle stagne près de la paroi, puis les forts cisaillements y ayant lieu provoquent la rupture de la bulle. Puisque aucune contribution importante au fractionnement n'est remarquée à ce niveau de la ligne, l'étude de la caractérisation de la taille des bulles va se centrer à partir de maintenant sur les visualisations dans les dispositifs microfluidiques et de la mousse en sortie.

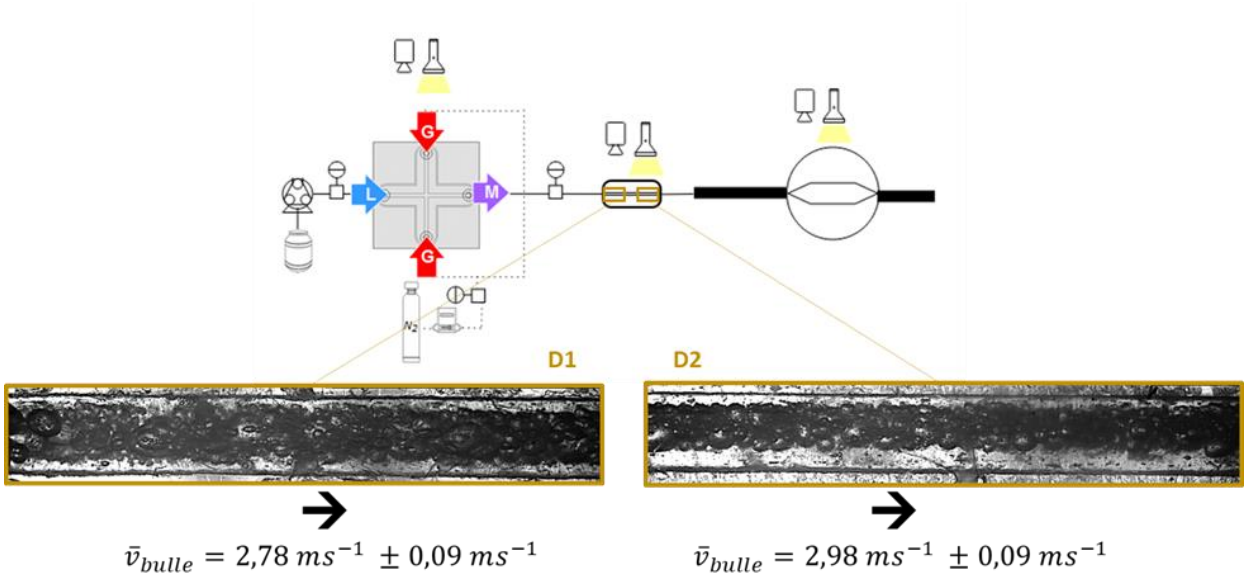


Figure 106. Visualisations en début (D1) et à la fin (D2) d'une cellule de visualisation en ligne à section carrée (diamètre hydraulique 0,16 cm) positionnée dans le premier tuyau de détente. Dispositif microfluidique CX600 et solution modèle WPI3XG04. Débits employés Q_{vL} = 11 L.h^{-1} et Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. Pression relative à l'entrée de la cellule de visualisation ~ 2,30 bars.

Tableau 6 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique en aval du dispositif microfluidique CX600, dans le premier tuyau de détente (zone 2) pour plusieurs conditions de débit en utilisant la solution WPI3XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_2 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_2 bar
3,0	0,40	1,05	2,091	0,30	0,43	2,04E+03	1,33E-02	0,12	46	5	0,59
6,9	0,98	1,70	4,134	0,59	0,38	4,99E+03	7,34E-03	0,16	205	32	0,79
11,0	1,56	2,30	5,626	0,80	0,34	7,94E+03	5,62E-03	0,19	426	81	0,96
13,7	1,95	2,68	6,192	0,88	0,31	9,91E+03	5,01E-03	0,21	596	127	1,07
16,4	2,34	3,18	6,379	0,91	0,28	1,19E+04	4,59E-03	0,23	779	182	1,18
19,1	2,73	3,55	6,883	0,98	0,26	1,39E+04	4,29E-03	0,25	974	247	1,28

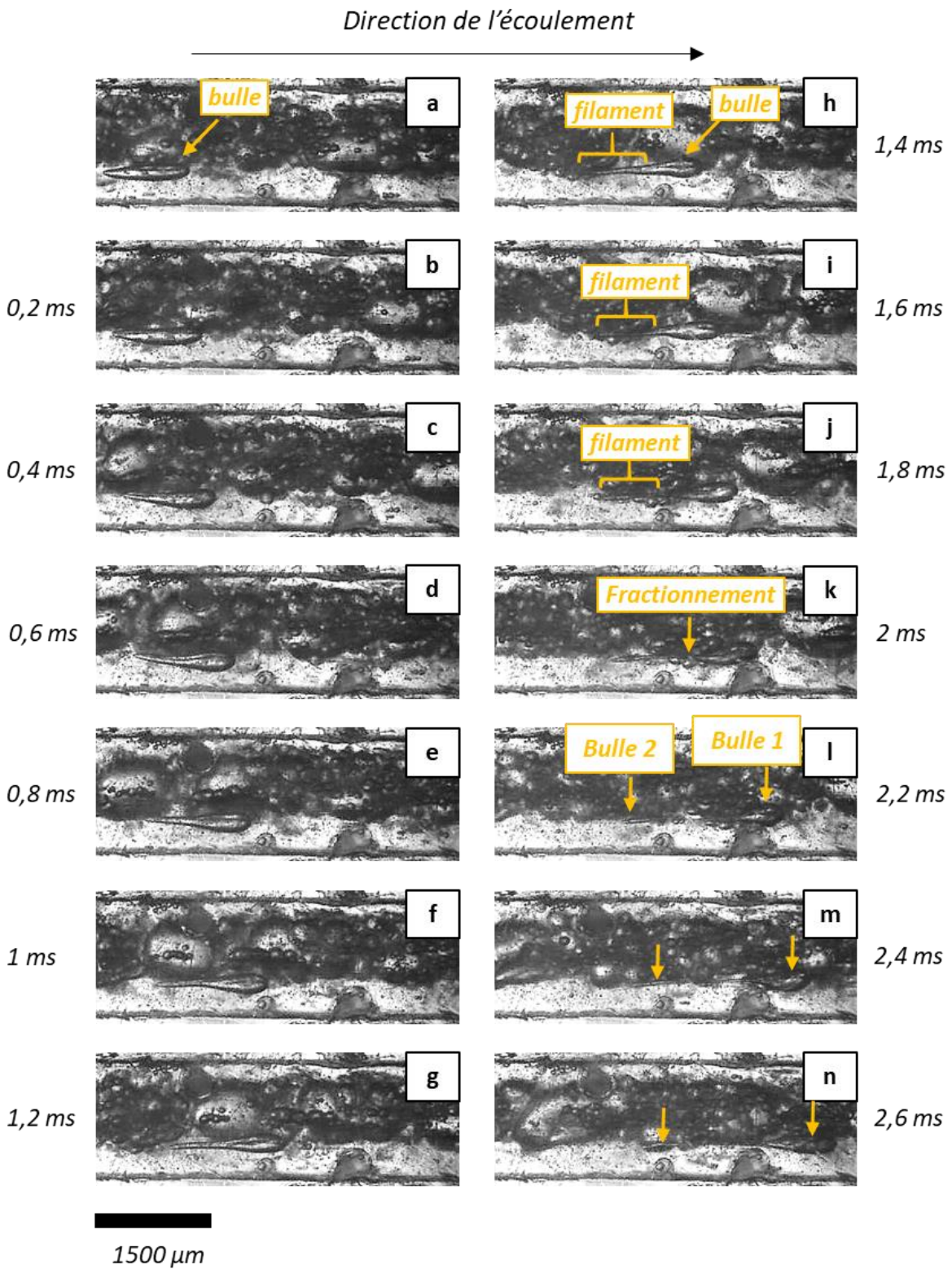


Figure 107. Suivi du fractionnement d'une bulle en début de la cellule de visualisation en ligne pour les débits Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. Solution WPI3XG04. Pression relative à l'entrée de la cellule de visualisation ~ 2,30 bars.

2.6.2 Visualisation de la mousse en sortie du procédé

Comme indiqué précédemment, des visualisations ont été aussi menées afin de déterminer la taille des bulles en sortie du procédé. La figure 108a présente une schématisation du banc expérimental avec des photos de bulles visualisées dans le dispositif CX600 ainsi qu'en sortie du procédé. Les visualisations en sortie sont effectuées grâce à la mise en place d'une cellule de visualisation positionnée juste en sortie du deuxième tuyau de détente. Les fractions de vide accompagnant les deux photos correspondent respectivement aux fractions calculées au niveau M1 du dispositif microfluidique (tableau 5) et en sortie (tableau 7) pour les débits Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. Une évaluation de la taille des bulles dans les deux cas donne la courbe de distribution granulométrique présentée dans la figure 108b.

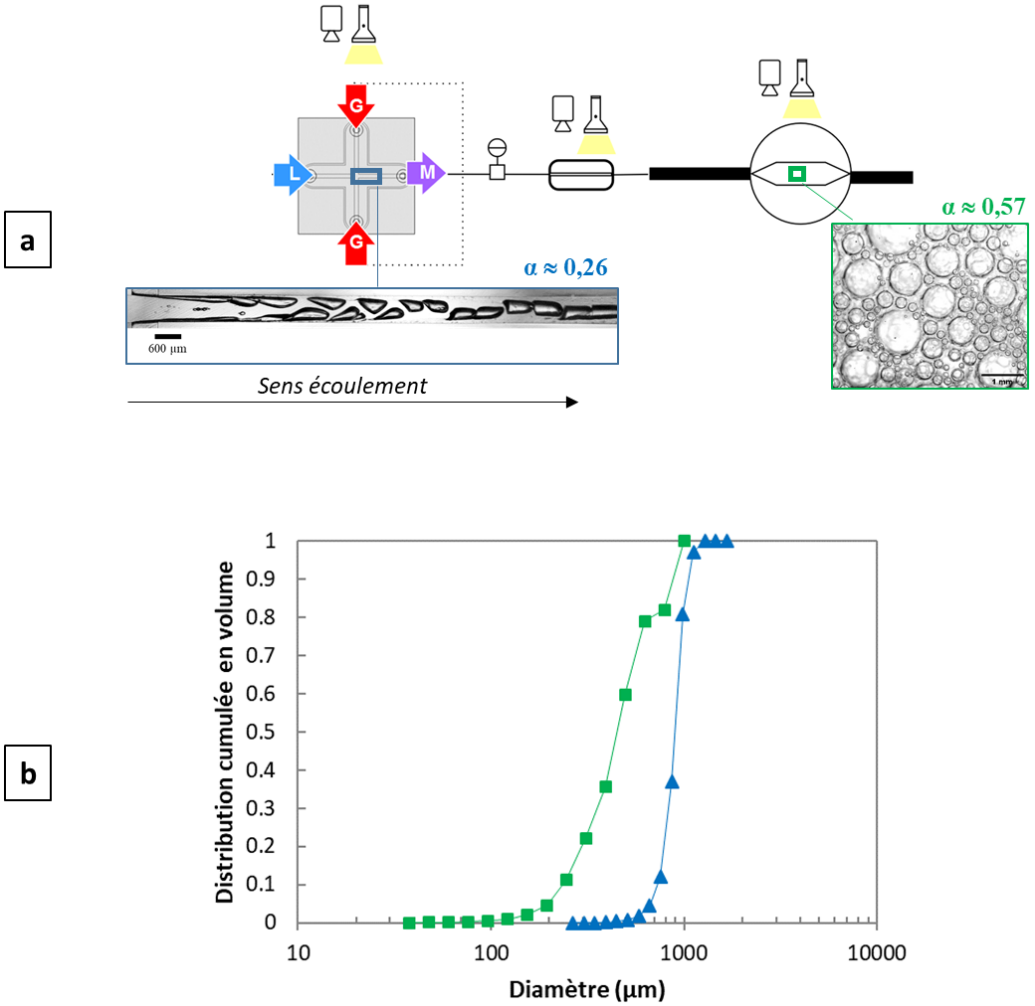


Figure 108. Distribution de la taille des bulles dans le dispositif microfluidique (zone M1) et en sortie du procédé. **a)** schématisation du banc expérimental avec les visualisations effectuées dans le microcanal et en sortie (cellule de visualisation en sortie) à Q_{vL}=11 L.h^{-1} Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. Conditions dans le dispositif microfluidique : P_{inj} = 3,83 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1}. **b)** granulométrie dans le microcanal (triangles) et en sortie (carrés). Les mesures des diamètres dans le microcanal ont été rapportées à la pression atmosphérique pour que les comparaisons soient valides.

Tableau 7 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique en sortie de l'installation pour plusieurs conditions de débit. Dispositif microfluidique utilisé CX600 avec la solution WPI3XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_{atm} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	α_{exp} -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -
3,0	0,01	1,01	4,258	0,02	0,57±0,02	7,95	1,26	0,27	0,08	0,02
6,9	0,02	1,01	11,071	0,04		19,49	0,59	0,31	0,40	0,13
11,0	0,04	1,01	18,395	0,07		31,02	0,40	0,33	0,95	0,32
13,7	0,05	1,01	22,568	0,08		38,71	0,33	0,35	1,43	0,49
16,4	0,06	1,01	26,400	0,09		46,41	0,28	0,36	2,00	0,71
19,1	0,07	1,01	30,999	0,11		54,10	0,25	0,36	2,65	0,97

Concernant les bulles dans le dispositif, les diamètres ont été renormalisés à la pression atmosphérique afin de pouvoir effectuer leur comparaison avec ceux mesurés en sortie. La figure 108b montre une distribution de taille en sortie décalée vers des diamètres des bulles plus petits, mais la courbe est également plus inclinée révélant un caractère plus hétérogène de la taille des bulles. Il est clair qu'il existe une évolution de la taille des bulles entre le moment de leur formation dans les dispositifs et leur sortie du procédé. Il existe donc bien un fractionnement tout au long de la ligne de production qui serait lié aux transitions géométriques rencontrées par les bulles pendant leur voyage à travers de cette ligne.

2.7 Effet du débit sur l'écoulement diphasique dans le canal de mélange

2.7.1 Visualisations de l'écoulement

Les visualisations de la formation des bulles et leur typologie dans le dispositif CX600 sont présentées pour quatre débits liquides dans la figure 109. Globalement, la taille des bulles diminue avec l'augmentation du débit, ce qui est également classiquement rapporté dans le cas des émulsions formées dans les microcanaux. Les forces inertielles plus importantes mises en jeu aux hauts débits seraient à l'origine de cette diminution de taille. Un aspect remarquable concerne la forme en larme des bulles toujours stable malgré des nombres de Reynolds compris entre 2000 et 4000 (tableau 5). Cette stabilité notable de la forme des bulles pourrait être liée aux dimensions submillimétriques du canal qui permet de maintenir un régime laminaire malgré des nombres de Reynolds élevés, mais elle pourrait aussi être due aux propriétés physiques du fluide externe (Abdulbari *et al.*, 2018 ; Nghe *et al.*, 2011 ;

Owolabi *et al.*, 2017). Plusieurs études ont montré que des polymères, dont le xanthane, ont un effet sur la réduction du frottement et permettent de conserver un écoulement de type laminaire à de plus hauts nombres de Reynolds (Owolabi *et al.*, 2017, Abdulari *et al.*, 2017).

Malgré l'augmentation du débit, les bulles gardent à peu près leur configuration globale en épi avec des bulles intercalées de chaque côté des parois verticales, parois où elles ont pris naissance. Petit à petit les bulles vont avoir plutôt tendance à se détacher des parois du canal en cherchant la zone de moindre cisaillement, i.e. le centre du canal.

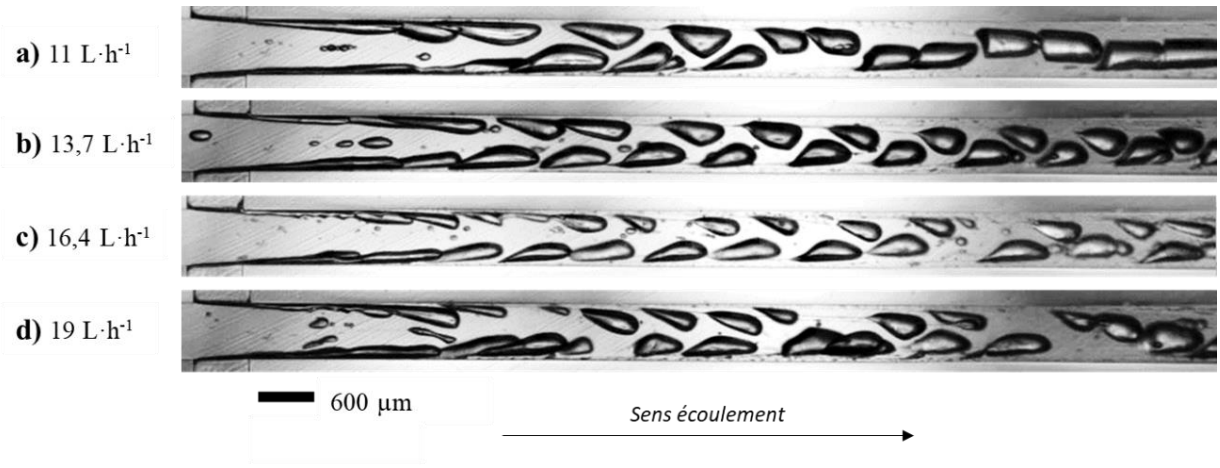


Figure 109. Visualisation de l'écoulement diphasique gaz-liquide dans le dispositif CX600 en utilisant la solution WPI3XG04 à différents débits liquides **a)** $\boldsymbol{Q_{vL}}$**=11 L.h^{-1}** Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,83 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1} **b)** $\boldsymbol{Q_{vL}}$**=13,7 L.h^{-1}** Q_{mG} = 26,5 g.h^{-1}, P_{inj} = 4,65 bars, U_L = 10,56 m.s^{-1}, U_G = 3,12 m.s^{-1} **c)** $\boldsymbol{Q_{vL}}$**=16,4 L.h^{-1}** Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1}, P_{inj} = 5,52 bars, U_L = 12,66 m.s^{-1}, U_G = 3,16 m.s^{-1} **d)** $\boldsymbol{Q_{vL}}$**=19 L.h^{-1}** Q_{mG} = 36,4 g.h^{-1}, P_{inj} = 6,45 bars, U_L = 14,75 m.s^{-1}, U_G = 3,25 m.s^{-1}.

L'évolution de la taille des bulles en fonction de la pression d'injection dans un écoulement diphasique peut être observée dans la figure 110. En général, on constate que la taille des bulles diminue avec l'augmentation du débit. Cependant, cette diminution de la taille avec le débit s'accompagne d'une augmentation de la polydispersité comme révélé par l'écart de plus en plus important entre le diamètre de Sauter et le diamètre moyen. En effet, avec une augmentation de la viscosité ou du débit, le pompage de nos solutions modèles devenait complexe ce qui expliquerait un contrôle plus difficile sur les caractéristiques des bulles.

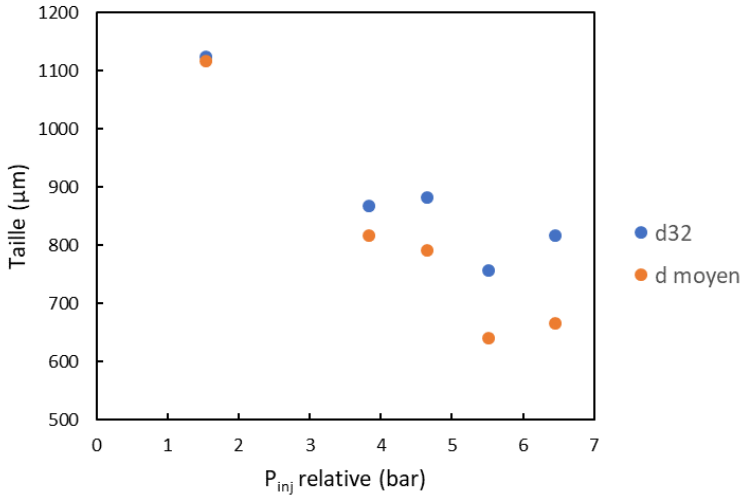


Figure 110. Evolution des diamètres de Sauter (d32) et diamètres moyens des bulles visualisés dans le canal de mélange (zone M1). P_{inj} correspond à la pression d'injection du gaz pour les couples des conditions Q_{vL} =11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, Q_{vL} = 13,7 L.h^{-1}-Q_{mG} = 26,5 g.h^{-1}, Q_{vL} =16,4 L.h^{-1}-Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1}, Q_{vL} =19 L.h^{-1}-Q_{mG} = 36,4 g.h^{-1}. Solution employée WPI3XG04.

2.7.2 Granulométrie dans le canal de mélange (zone M1) et comparaison avec celle en sortie du procédé

La figure 111a présente une distribution cumulée en volume de la taille des bulles dans le canal de mélange pour les 4 débits présentés dans la figure 109. Dans la figure 111a plus la courbe est foncée, plus le débit est important. De façon générale, on observe un décalage des courbes foncées vers des diamètres de bulles plus petits. Cette situation devient plus évidente en analysant la fonction de densité de probabilité (distribution PDF) de la figure 111b. Il est clair que plus le débit est important, plus on favorise l'apparition des bulles de plus petites tailles comme remarqué aussi pour les cas de gouttes produites avec microcanaux (Seemann *et al.*, 2012).

L'augmentation du débit entraîne aussi une plus grande polydispersité comme le montre l'écart entre le diamètre de Sauter et le diamètre moyen (diamètre arithmétique) dans La figure 111c Un calcul du *Span* pour chacune de ces distributions révèle des valeurs respectives 0,37, 0,56, 0,65 et 0,66 pour les débits 11, 13,7, 16,4 et 19 L.h^{-1}. Des conclusions similaires ont été avancées par Gaillard (2016) pour une application millifluidique de foisonnement utilisant des fluides newtoniens. Cette polydispersité supérieure pour les plus hauts débits est une conséquence de plusieurs points de détachement possibles dans les filaments étirés de gaz formés à la jonction des fluides. En effet, à hauts débits, le point de

détachement des bulles n'est pas stationnaire et il peut se mettre en place à plusieurs endroits du filament comme suggéré par Utada *et al.* (2007) et Muijlwijk *et al.* (2016a).

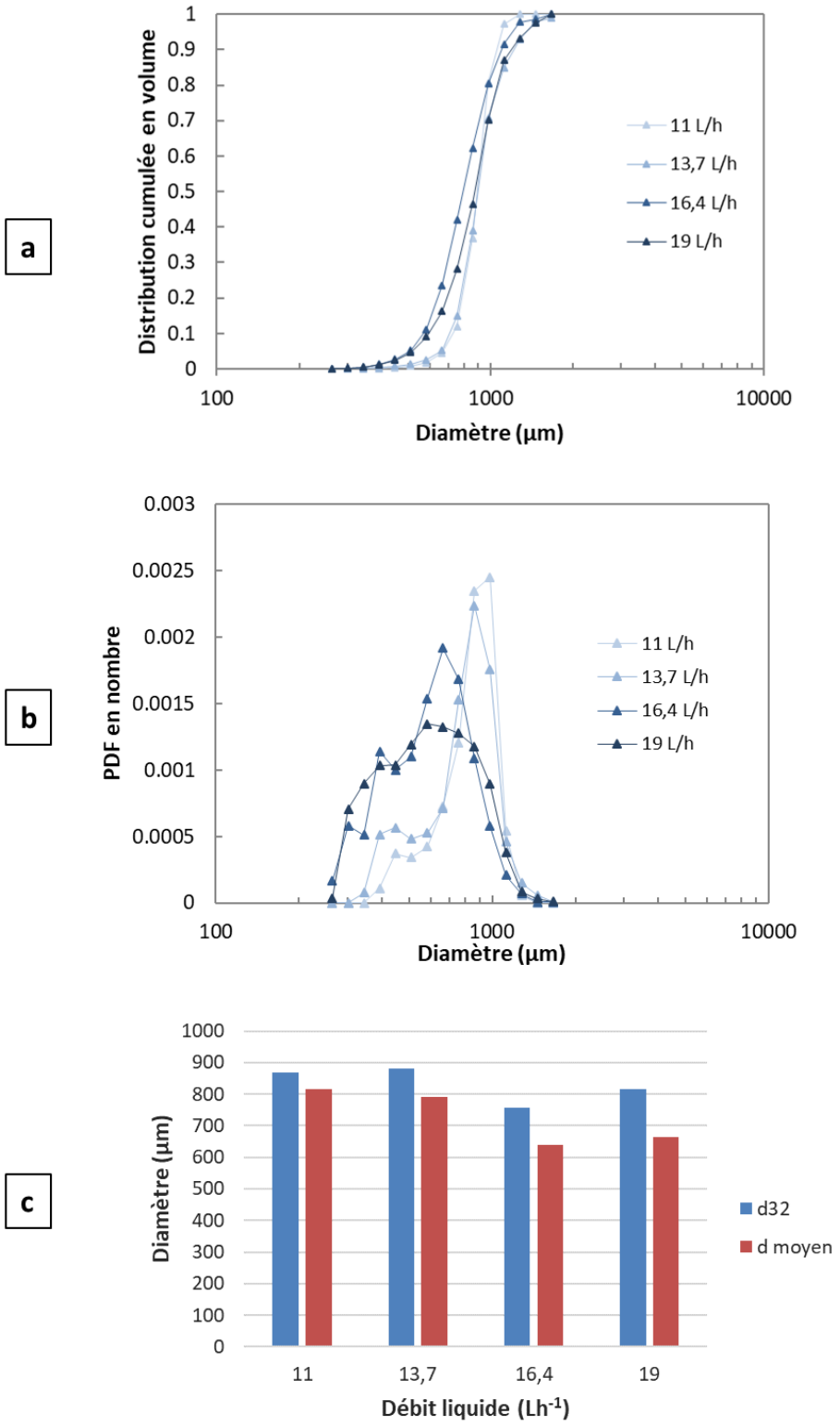


Figure 111. Effet du débit sur la distribution de tailles des bulles à l'intérieur du microcanal pour le dispositif CX600 avec la solution WPI3XG04. **a)** granulométrie sous forme de distribution cumulée en volume. **b)** granulométrie sous forme de fonction de distribution de probabilité (PDF) **c)** diamètres moyens (diamètre arithmétique) et de Sauter des échantillons analysés. Diamètres rapportés à la pression atmosphérique.

Au moment de la genèse des bulles, plusieurs régimes de formation peuvent en effet avoir lieu. C'est souvent dans les régimes dripping et jetting que les filaments de la phase dispersée s'étirent de façon importante comme dans les visualisations de la figure 109. D'après Anna (2016) des nombres capillaires de la phase externe supérieurs à 0,1 signalent déjà un passage du régime squeezing aux régimes dripping et jetting. Les nombres capillaires liquides Ca_L de nos visualisations s'étalent entre 0,46 et 0,75 pour la gamme des débits 11 – 19 L.h^{-1} étudiés dans ce travail (tableau 5). D'après cette comparaison, nous serions donc soit dans un régime dripping soit dans un régime jetting de formation des bulles.

Afin de déterminer avec précision lequel des deux régimes est caractéristique de la genèse des bulles dans nos visualisations, nous utilisons une représentation proposée par Gañan-Calvo *et al*. (2006) dans laquelle nous avons superposé quelques données (figure 112). Il s'agit de différentes courbes délimitant la transition entre les régimes dripping et jetting en fonction des nombres de Weber et de Reynolds de la phase continue ainsi que du rapport des viscosités des deux phases fluides. En tenant compte d'un rapport de viscosités de l'ordre de 10^{-3} dans nos essais, une superposition de nos données (triangles) montre clairement un régime jetting de formation des bulles pour la gamme des débits liquides 11 – 19 L.h^{-1}. Ce régime est caractérisé par des filaments de gaz très longs formés à la jonction des fluides qui peuvent se fractionner à plusieurs endroits conduisant à des tailles de bulles moins uniformes (Utada *et al*., 2007 ; Utada *et al*., 2008).

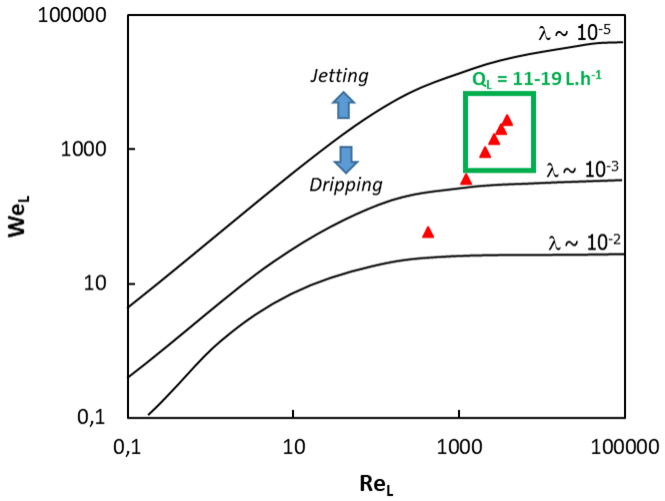
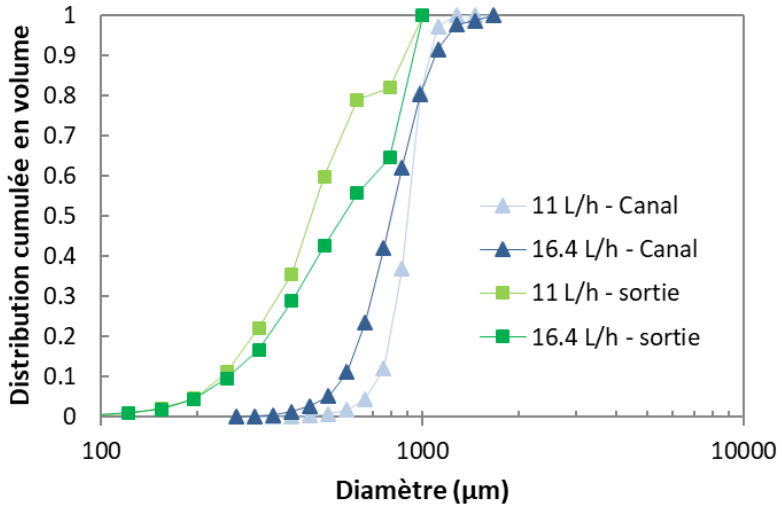


Figure 112. Superposition des données sur un graphe proposé par Gañan-Calvo et al (2006) pour la détermination du régime de formation des goutes en fonction des nombres de Reynolds et Weber de la phase continue. Figure tirée de Drenckhan & Saint-Jalmes (2015). Dans la figure, λ correspond au rapport de viscosités μ_G/μ_L ; sa valeur est comprise entre 6 et 9 10^{-3} pour les données de cette étude. Les lignes solides représentent la limite entre les régimes dripping et jetting pour le rapport de viscosité qui les accompagne.

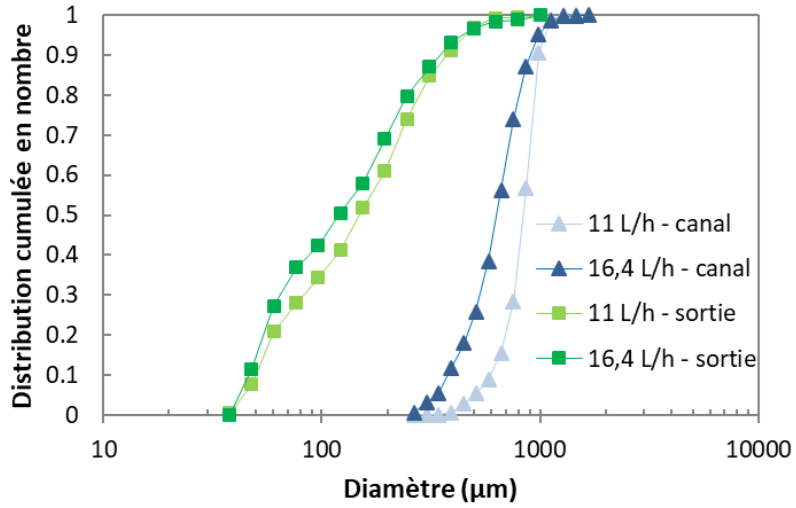
La figure 113a-b présente des distributions granulométriques pour deux débits dans le canal de mélange et en sortie. D'abord on voit, comme signalé précédemment, que les distributions granulométriques en sortie sont décalées vers des tailles des bulles plus petites révélant un fractionnement des bulles le long de la ligne. Comme les populations sont très hétérogènes, nous avons choisi d'utiliser deux représentations de la granulométrie (en volume et en nombre) afin de mieux visualiser les effets sur les petites bulles. L'analyse de la représentation en nombre (figure 113b) montre plus clairement qu'il existe un nombre plus important des petites bulles en sortie dans le cas du débit plus fort (courbe vert foncé).

On peut constater de gros écarts qui révèlent des distributions très polydisperses pour les mousses en sortie en comparant les diamètres de Sauter et moyen dans la figure 113c. Le diamètre moyen permet en même temps de vérifier qu'il existe quand même une tendance à la création de bulles plus petites (fractionnement) en sortie avec l'augmentation de débit. La polydispersité remarquée dans le produit en sortie serait probablement liée aux pulsations occasionnées par le pompage des fluides très visqueux comme les solutions WPI-XG, ce qui a affecté de façon systématique les propriétés des mousses en sortie. En raison de cette polydispersité significative qui impacte fortement les distributions en volume, on a décidé de présenter le cas échéant, des courbes cumulées en nombre pour les analyses des effets sur les petites bulles.

a



b



c

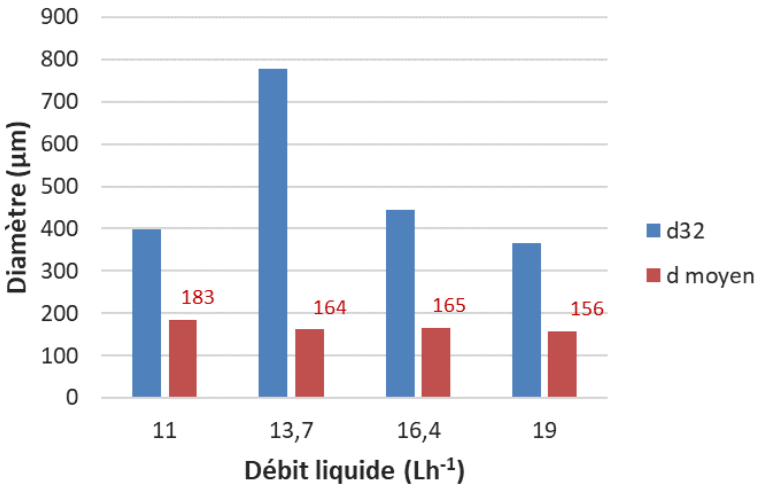


Figure 113. Comparaison de la distribution de taille des bulles dans le microcanal et en sortie pour les débits Q_{vL} = 11 L.h^{-1} et Q_{vL} = 13,7 L.h^{-1}. Dispositif CX600 avec la solution WPI3XG04. **a)** granulométrie sous forme de distribution cumulée en volume**. b)** granulométrie sous forme de distribution cumulée en nombre. **c)** diamètres moyens et de Sauter pour les échantillons analysés en sortie. Diamètres dans le canal rapportés à la pression atmosphérique.

2.8 Effet du diamètre hydraulique sur l'écoulement diphasique dans le canal de mélange

Dans la première partie de la présentation des résultats, une discussion basée sur la confrontation des cartographies montrant les limites de régimes d'écoulement avait conduit à favoriser l'utilisation des microsystèmes avec un arrangement des canaux en croix ayant des diamètres hydrauliques 600 µm. En effet, l'utilisation d'une croix avec des canaux de 500 µm pose plus d'inconvénients ; celle-ci génère notamment des instabilités d'écoulement ce qui conduit à des limites du régime dispersé qui seraient plus difficiles à appréhender dans le cadre d'une application industrielle par exemple. Cette partie du travail s'efforcera de montrer, en se basant sur des visualisations et des mesures de pression, si ces différences de typologie d'écoulement font écho ou non à des phénomènes d'écoulement significativement différents au sein des croix.

2.8.1 Visualisations du train de bulles

La figure 114 présente deux exemples de trains de bulles visualisés pour le dispositif CX600 et pour le dispositif CX500, ayant respectivement des canaux carrés avec un diamètre hydraulique de 600 et 500 µm. Ce changement de dimension ne montre pas un effet notable de l'aspect visuel de l'écoulement diphasique. La forme des bulles est à peu près similaire ainsi que leur distribution sur les deux côtés du canal. Cependant, il semblerait que la population des bulles obtenues avec CX500 soit plus hétérogène, ce qui justifie une étude de la granulométrie des bulles formées dans ces microcanaux. Les conditions hydrodynamiques au niveau du dispositif des visualisations de la figure 114 peuvent être retrouvées dans le tableau 5 pour CX600 et tableau 8 pour CX500.

Tableau 8 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans le dispositif microfluidique CX500 pour plusieurs conditions de débit en utilisant la solution WPI3XG04

P_{pompe}	Q_{vL}	U_L	Q_{mG}	p_{inj}	Q_{vG}	U_G	$\alpha\ (p)$	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L	ΔP_1
bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	g.h^{-1}	bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	-	s^{-1}	Pa.s	-	-	-	bar
10,12	11,0	12,18	21,60	5,15	3,00	3,33	0,215	1,73E+05	2,34E-03	0,62	2533	1568	2,80
12,36	13,7	15,20	26,50	6,33	3,09	3,43	0,184	2,16E+05	2,29E-03	0,76	3221	2442	3,53
16,13	16,4	18,22	31,00	7,47	3,13	3,47	0,160	2,59E+05	2,26E-03	0,90	3914	3508	4,32
20,01	19,1	21,24	36,40	8,70	3,20	3,56	0,144	3,02E+05	2,24E-03	1,03	4608	4768	5,15



Figure 114. Visualisations de l'écoulement diphasique gaz-liquide à l'intérieur des microsystèmes pour la solution WPI3XG04 **a) CX600 : Q_{vL}=11 L.h^{-1}** Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,83 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1} **b) CX500 : Q_{vL}=11 L.h^{-1}** Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 5,15 bars, U_L = 12,18 m.s^{-1}, U_G = 3,33 m.s^{-1}.

2.8.2 Granulométrie dans le canal de mélange (zone M1)

La distribution de taille des bulles à l'intérieur des dispositifs CX600 et CX500 est présentée dans la figure 115 pour un débit liquide de 11 L.h^{-1}. Concernant le dispositif CX500, une présence plus importante de petites bulles est observée, comparativement au dispositif CX600. En analysant attentivement les courbes, on constate également la présence d'une population de grosses bulles légèrement plus importante avec CX500. Ceci conduit à une polydispersité plus importante des bulles formées avec CX500. En effet, le *Span* calculé pour CX500 donne une valeur de 0,81 tandis qu'il est de 0,37 pour le dispositif CX600. La dispersion plus étalée obtenue avec CX500 serait le résultat de fortes instabilités repérées lors de l'incorporation du gaz, comme décrit précédemment. Les dimensions du microcanal CX500 semblent rendre plus complexe la dispersion du gaz dans le liquide. En travaillant à débit identique pour les deux croix, CX500 et CX600, on force l'écoulement à être plus rapide dans le cas de la croix CX500. L'effet de la vitesse a été discuté par ailleurs. Nous allons donc poursuivre la comparaison des croix en nous basant sur des vitesses d'écoulement comparables au sein des microcanaux et sur le nombre de Reynolds de la phase liquide.

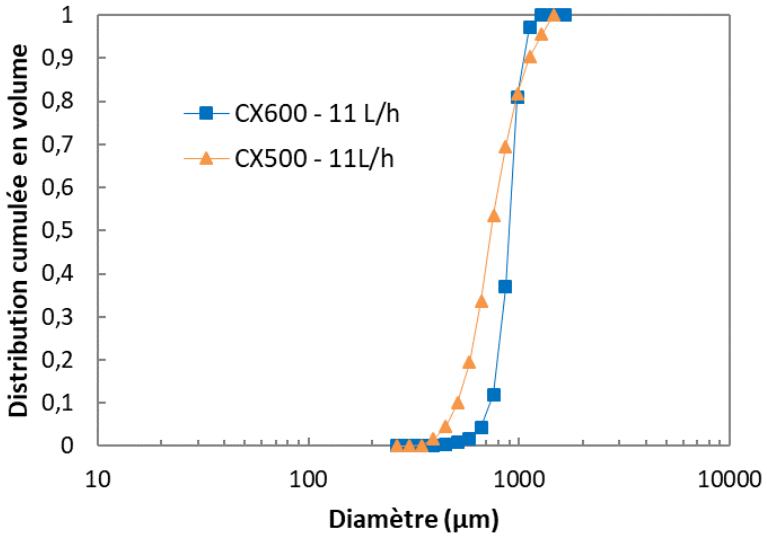


Figure 115. Comparaison de distributions granulométriques du train de bulles dans le microcanal (zone M1) des dispositifs CX600 et CX500 avec la solution WPI3XG04 à Q_{vL}=11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. Diamètres rapportés à la pression atmosphérique.

La figure 116a présente la chute de pression dans le dispositif microfluidique (ΔP_1) en fonction de la vitesse superficielle du liquide dans le canal de mélange ($U_{L\text{-}\mu canal}$). On constate qu'au même débit de 11 L.h^{-1} les chutes de pression sont relativement différentes. L'utilisation d'un canal de plus petit diamètre engendre bien évidement une déperdition énergétique plus importante. En revanche, pour un débit liquide de 11 L.h^{-1} avec CX500 et 16,4 L.h^{-1} avec CX600, les vitesses superficielles du liquide sont similaires et donc une comparaison de la taille de bulles pour ces conditions pourrait permettre d'avoir une meilleure idée sur l'effet du diamètre hydraulique. La figure 116b présente une comparaison de la granulométrie pour les conditions sélectionnées. En se basant sur des vitesses similaires, le changement du diamètre montre un effet discret sur la distribution de taille des bulles ; néanmoins, on peut observer une dispersion de taille plus importante avec la croix CX500, ce qui va dans le sens des commentaires précédents. En particulier, la pression plus élevée dans le dispositif CX500 (Figure 116a) conduit à la génération de bulles en général plus petites. En diminuant le diamètre hydraulique on joue sur l'effet de l'augmentation de la vitesse et également de la pression au sein du microcanal.

Dans des conditions de débits liquides traités identiques, par exemple 11 L/h, le nombre de Reynolds du liquide est d'environ 2000 dans CX600 et de 2500 dans CX500 (Figure 116c), les distributions de taille des bulles respectivement obtenues sont significativement différentes ; le nombre de Reynolds est plus élevé dans le cas de la croix CX500 ce qui peut

favoriser le fractionnement. Si l'on compare maintenant les croix dans des conditions de vitesses identiques, avec par exemple 11 L.h^{-1} dans la croix CX500 et 16,4 L.h^{-1} dans la croix CX600, le nombre de Reynolds du liquide est alors égal à 2500 dans CX500 et il est cette fois plus élevé, valant 3100 environ, dans CX600. Les granulométries obtenues présentent alors des différences certes beaucoup plus discrètes mais il persiste toujours deux effets : une taille moyenne de bulle plus petite et une dispersion de taille plus élevée dans le cas de la croix CX500. Dans tous les cas, la chute de pression est plus élevée dans la croix CX500. En conclusion, l'effet du diamètre hydraulique a un impact sur la granulométrie des bulles formées. Cet impact semble principalement être inhérent à la pression plus élevée requise pour la mise en œuvre de la croix CX500.

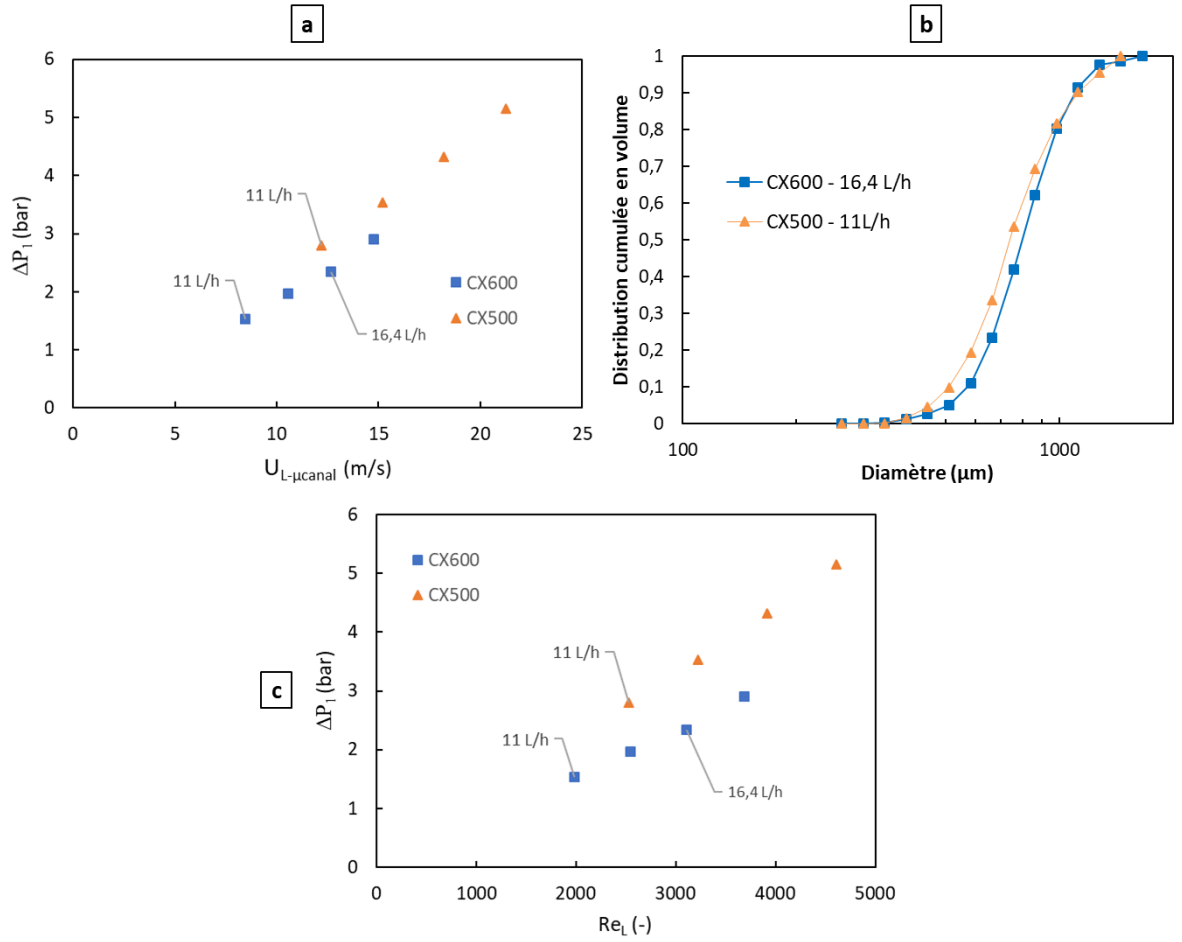


Figure 116. a) chute de pression dans la dispositif en fonction de la vitesse superficielle du liquide dans le microcanal de mélange pour les dispositifs CX600 et CX500 avec la solution WPI3XG04 aux conditions Q_{vL} =11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, Q_{vL} = 13,7 L.h^{-1}-Q_{mG} = 26,5 g.h^{-1}, Q_{vL} =16,4 L.h^{-1}-Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1} et Q_{vL} =19 L.h^{-1}-Q_{mG} = 36,4 g.h^{-1}. **b)** comparaison de la distribution de taille des bulles dans le microcanal de mélange (zone M1) pour les dispositifs CX600 et CX500 à vitesses superficielles du liquide similaires (~12 m.s^{-1}) avec la solution WPI3XG04. **c)** évolution de la chute de pression dans le dispositif en fonction du nombre de Reynolds du liquide.

Par la suite, on s'intéresse à la granulométrie des bulles en sortie du procédé afin de vérifier si l'impact du diamètre hydraulique est également observé au niveau de celle-ci. La granulométrie en sortie est montrée pour les deux dispositifs dans la figure 117 pour un débit liquide de 11 $L.h^{-1}$. On constate que la tendance se maintient en sortie du procédé ; ainsi, de manière générale, il serait possible d'obtenir des mousses ayant des bulles plus petites avec le dispositif CX500. Ce résultat serait a priori intéressant d'un point de vue des applications visant à fractionner davantage les bulles pour améliorer la stabilité des mousses. Cependant, la polydispersité plus importante des bulles pour le dispositif CX500 pourrait renforcer les cinétiques de déstabilisation par murissement d'Ostwald. Il est important de rappeler que les résultats ici présentés correspondent à un débit de 11 $L.h^{-1}$, qui reste quand même le débit le plus faible de notre gamme des débits. Une augmentation du débit liquide serait encore plus désavantageuse pour le dispositif CX500 car elle aurait pour effet de renforcer la polydispersité.

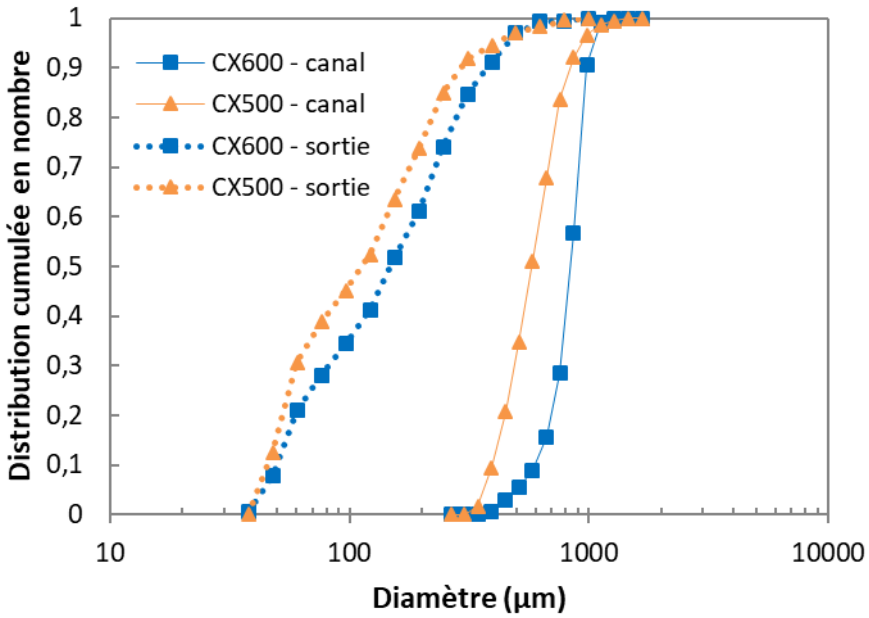


Figure 117. Comparaison de distributions granulométriques du train de bulles dans le microcanal (zone M1) et en sortie du procédé pour les dispositifs CX600 et CX500 employés avec la solution WPI3XG04 à Q_{vL}=11 $L.h^{-1}$-Q_{mG} = 21,6 $g.h^{-1}$.

2.8.3 Fréquence de bullage

La fréquence de bullage des dispositifs CX500 et CX600 est mesurée dans la gamme de débits liquides 11-19 L.h-1 et les résultats obtenus présentés dans la figure 118. En général, il existe une fréquence de bullage plus élevée dans le cas du dispositif CX500. Ceci

est une situation attendue compte tenu des forces inertielles plus élevées dans le dispositif CX500. En conséquence, les bulles seraient détachées plus rapidement. D'un autre côté, le taux de croissance est plus faible pour le dispositif CX500 ($f \propto Q_L^{1,2}$) par rapport au dispositif CX600 ($f \propto Q_L^{1,5}$). Dans un premier temps, ce résultat serait un peu contradictoire car on s'attendrait à une production de bulles de plus en plus rapide pour un dispositif ayant un diamètre hydraulique inférieur. Cependant la difficulté pour incorporer le gaz dans la matrice liquide dans le cas du dispositif CX500 serait à l'origine de son taux de croissance plus faible. En effet, l'augmentation du débit renforce les instabilités observées avec le dispositif CX500.

Une comparaison est faite avec l'étude menée par Gaillard (2016) pour une application du foisonnement utilisant des dispositifs millifluidiques. Dans ses travaux, l'auteur utilise une gamme des débits liquides similaire à la nôtre. En revanche, ses dispositifs ont des dimensions légèrement supérieures au millimètre tandis que les nôtres ont des dimensions submillimétriques. Ces légères différences de dimensions des canaux provoquent d'énormes écarts de fréquence de bullage. Tandis que ce même auteur obtient des fréquences de bullage dans la gamme 0,01 – 10 kHz, nous arrivons à des fréquences dans la gamme 10 – 100 kHz. Il resterait à vérifier si les propriétés physiques des fluides utilisés, sodium dodecyl sulfate dans les travaux de Gaillard (2016) et solutions à base de biopolymères (WPI et XG) pour cette étude, contribueraient-elles aussi à expliquer ces différences de bullage.

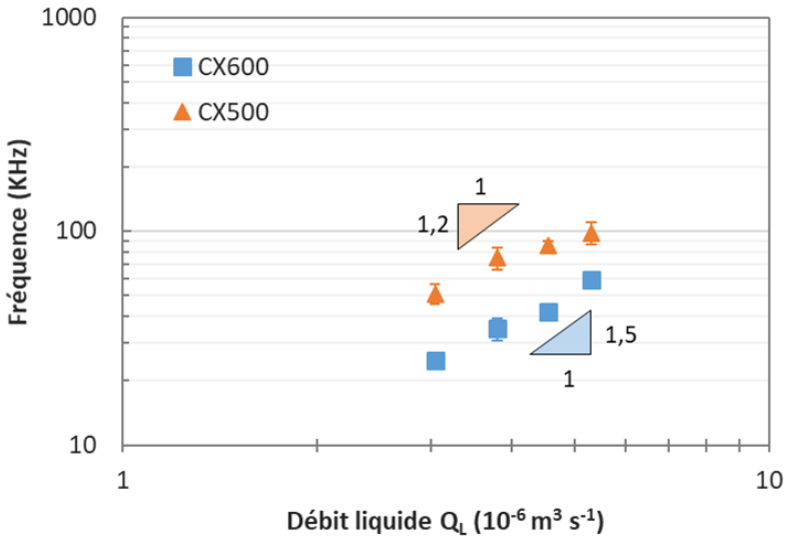


Figure 118. Comparaison de la fréquence de bullage pour les dispositifs CX600 et CX500 en utilisant la solution WPI3XG04 et les couples des conditions Q_{vL} =11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, Q_{vL} =13,7 L.h^{-1}-Q_{mG} = 26,5 g.h^{-1}, Q_{vL} =16,4 L.h^{-1}-Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1} et Q_{vL} =19 L.h^{-1}-Q_{mG} = 36,4 g.h^{-1}.

2.9 Effet de la concentration de xanthane sur l'écoulement diphasique dans le canal de mélange

2.9.1 Visualisations du train de bulles

Les trains de bulles pour deux solutions ayant différentes concentrations de gomme xanthane sont présentés dans la figure 119 dans le dispositif CX600 à débit liquide 11 L.h^{-1}. La figure 119a correspond à la solution ayant une concentration de 0,4% en masse (WPI3XG04) tandis que la figure 119b concerne une solution avec une concentration plus faible en xanthane 0,2% (WPI3XG02). Aucun effet important n'est remarqué au niveau de la forme des bulles dans les visualisations à l'intérieur du canal de mélange. Dans les deux cas, les bulles présentent des formes de larme et aussi des mécanismes de fractionnement par tip streaming. En revanche, les bulles dans le cas de la concentration plus faible semblent avoir des tailles plus petites, ce qui va être discuté par la suite.

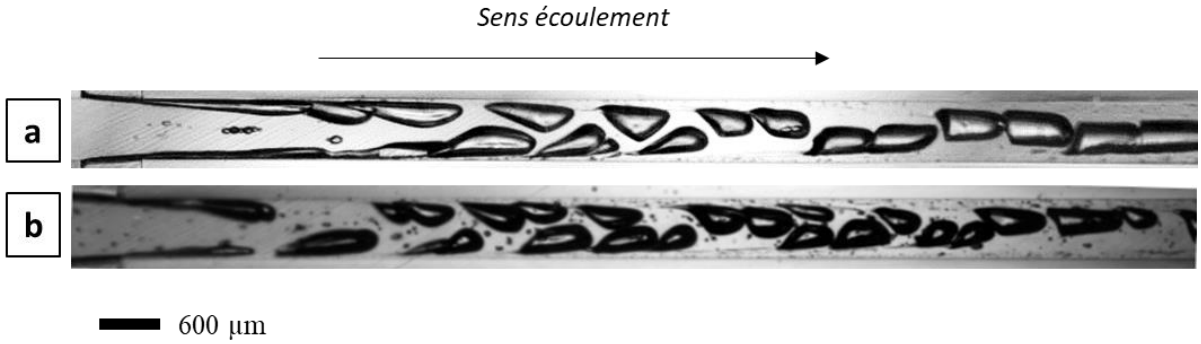


Figure 119. Visualisations de l'écoulement diphasique gaz-liquide à l'intérieur du dispositif microfluidique CX600 pour deux formulations **a) WPI3XG04 : Q_{vL}=11 L.h^{-1}** Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,83 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1} **b) WPI3XG02 : Q_{vL}=11 L.h^{-1}** Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,08 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 3,56 m.s^{-1}.

2.9.2 Granulométrie dans le canal de mélange (zone M1)

L'étude de la granulométrie pour ces deux solutions est présentée dans la figure 120. Une diminution de la concentration de xanthane décale en effet la distribution vers des tailles de bulles plus petites. La viscosité de la solution WPI3XG02 étant plus faible, elle va permettre l'établissement d'effets inertiels plus importants, comme le montre le nombre de Reynolds, 3120, atteint dans ces conditions avec cette solution (tableau 9). Comparativement, le nombre de Reynolds vaut 1980 pour la solution WPI3XG04 (tableau 5). Ces forces inertielles plus importantes vont donc permettre de détacher plus rapidement les bulles en formation conduisant à des bulles plus petites. Cette diminution de la concentration de xanthane s'est aussi avérée avantageuse pour l'obtention de distributions de tailles plus

monodisperses. Cependant, une plus faible concentration de xanthane se traduit aussi par une viscosité au repos plus faible et donc une stabilité sans doute diminuée du produit en sortie.

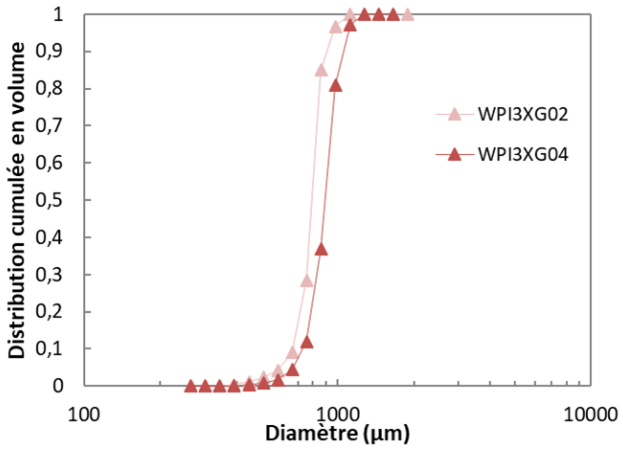


Figure 120. Granulométrie pour les bulles visualisées dans le microcanal (zone M1) du dispositif CX600 pour les solutions WPI3XG02 et WPI3XG04 à Q_{vL}=11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. Les mesures des diamètres dans le microcanal ont été rapportées à la pression atmosphérique.

Tableau 9 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans le dispositif microfluidique CX600 pour plusieurs conditions de débit en utilisant la solution WPI3XG02

P_{pompe}	Q_{vL}	U_L	Q_{mG}	p_{inj}	Q_{vG}	U_G	α (p)	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L	ΔP_1
bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	g.h^{-1}	bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	-	s^{-1}	Pa.s	-	-	-	bar
4,79	11,0	8,46	21,60	3,08	4,61	3,56	0,296	1,00E+05	1,52E-03	0,29	3214	945	13,46
6,21	13,7	10,56	26,50	3,93	4,69	3,62	0,255	1,25E+05	1,48E-03	0,36	4122	1472	17,20
8,27	16,4	12,66	31,00	4,71	4,74	3,66	0,224	1,50E+05	1,45E-03	0,42	5039	2115	22,13
10,17	19,1	14,75	36,40	5,60	4,82	3,72	0,201	1,75E+05	1,43E-03	0,48	5961	2874	26,84

2.9.3 Fréquence de bullage et vitesse des bulles

Une comparaison de la vitesse moyenne des bulles et de la fréquence de bullage a été effectuée aussi pour l'effet de la concentration d'hydrocolloïde. La figure 121 présente un diagramme en bâtons avec ces caractéristiques pour les solutions WPI3XG02 et WPI3XG04 et pour des conditions identiques de débits en gaz et liquide dans les deux cas. On peut constater globalement que la fréquence de production de bulles, au même débit, a tendance à être plus élevée dans le cas d'une solution à plus faible concentration de xanthane (WPI3XG02). Ceci est un résultat attendu en raison du détachement plus rapide des bulles pour la solution à faible concentration de xanthane expliqué précédemment, mais aussi en raison d'un réseau moins structuré qui va permettre à la phase gazeuse de s'introduire plus facilement dans la matrice liquide.

D'autre part, Les mesures de la vitesse des bulles ont présenté des résultats en quelque sorte contradictoires. Étant donné que les forces inertielles sont plus élevées pour la solution WPI3XG02, on devrait donc s'attendre à des bulles allant localement à des vitesses plus élevées pour cette solution, mais ce sont plutôt les bulles formées dans la solution WPI3XG04 qui voyagent plus rapidement. Une possible explication à ce phénomène serait liée au rôle des effets collectifs des bulles de gaz dans nos écoulements diphasiques. En effet une évaluation de la fraction de vide calculée dans le canal montre une fraction volumique du gaz de 0,29 pour WPI3XG02 (tableau 9), contre 0,26 pour WPI3XG04 (tableau 5) aux conditions Q_{vL}=11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. Ceci est logique car la pression d'injection du gaz est plus faible avec la solution WPIXG02. Comme conséquence de cette occupation du canal plus importante par le gaz dans le cas de la solution WPI3XG02, l'écoulement sera encore plus perturbé que pour WPI3XG04 et les changements locaux dans les conditions de l'écoulement seront plus significatifs pour WPI3XG02. Cela peut conduire aux valeurs locales plus faibles de la vitesse des bulles pour WPI3XG02.

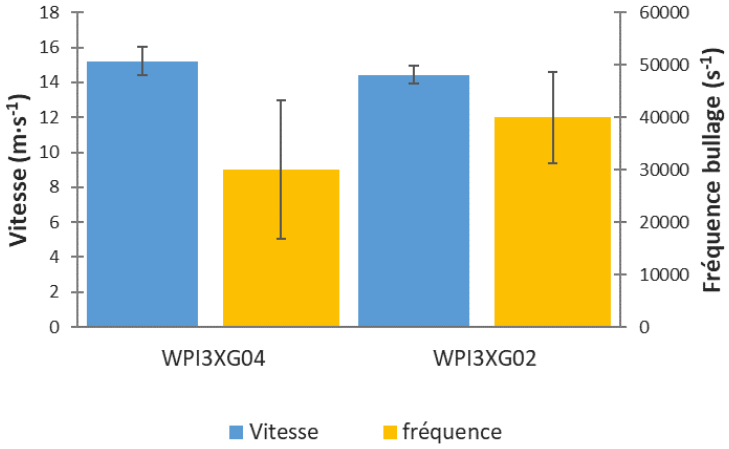


Figure 121. Comparaison de fréquence de bullage et de vitesse des bulles dans le microcanal du dispositif CX600 pour les solutions WPI3XG02 et WPI3XG04 à Q_{vL}=11 L.h^{-1} Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}.

2.10 Conclusion

L'étude du train des bulles par imagerie à haute vitesse à l'intérieur du canal de mélange d'un dispositif comportant un arrangement des canaux carrés en croix a permis l'identification de plusieurs aspects remarquables. Tout d'abord, la forme en larme des bulles, caractéristique dans un écoulement à travers un fluide viscoélastique, est observée ici malgré les nombres de Reynolds élevés (Re > 2000). Cette stabilité pourrait être liée aux échelles submillimétriques mises en œuvre mais aussi aux propriétés physiques des fluides. Une étude proposée dans la partie 4 des résultats permettra de mieux élucider le rôle de la formulation sur la forme des bulles et l'écoulement diphasique. Cela permettra à son tour d'établir si

l'utilisation des échelles submillimétriques combinée à l'utilisation d'un polymère est suffisante pour assurer un régime laminaire aux hauts débits utilisés.

Un autre résultat important de cette partie concerne l'identification et la vérification d'un mécanisme de fractionnement dans l'écoulement en cisaillement caractéristique du canal de mélange. Un mécanisme d'érosion systématique des bulles du type *tip streaming* a été en effet constaté. Le temps très court, inférieur à 0,2 ms, de formation des interfaces ainsi que des échelles de temps d'adsorption de protéines de quelques secondes ont conduit à des interfaces non saturées. Cette couverture partielle des interfaces gaz-liquide a été identifiée comme étant la principale responsable de la formation de gradients de tension interfaciale conduisant à l'établissement du mécanisme de fractionnement des bulles par *tip streaming*.

Finalement, les comparaisons systématiques de la granulométrie dans le microcanal et dans le produit en sortie ont mis en évidence une évolution de la taille des bulles favorisant leur fractionnement. Il est donc clair qu'il doit exister des éléments dans la ligne de production des mousses qui peuvent booster la rupture des bulles. En effet, en sortie du dispositif (figure 122), il existe des transitions géométriques telles qu'un élargissement ou un changement de direction couplé avec un élargissement qui sont soupçonnées de contribuer au fractionnement et donc à l'évolution de la taille des bulles le long de la ligne de production. Afin de cerner l'effet de ces transitions géométriques sur le train de bulles, des visualisations par imagerie haute vitesse à travers des dispositifs intégrant ces singularités géométriques sont proposées dans la partie suivante des résultats (partie 3).

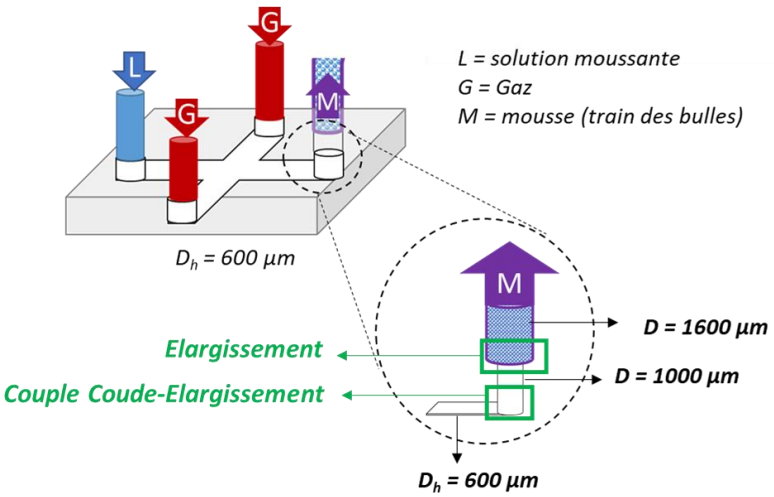


Figure 122. Schéma du dispositif CX600 avec grossissement sur le piquage en sortie du dispositif.

3 Troisième partie : Effet des singularités sur le train de bulles et le fractionnement

3.1 Introduction

La partie 2 des résultats a montré que les transitions géométriques dans une ligne de production de mousses joueraient un rôle essentiel dans le fractionnement et donc dans l'évolution de la taille des bulles. Dans cette troisième partie, un intérêt sera porté sur l'exploration de l'écoulement diphasique à l'intérieur des dispositifs microfluidiques ayant la même configuration des canaux carrés en croix avec diamètre hydraulique 600 µm, mais comportant aussi une transition géométrique ou singularité en sortie du canal de mélange. La figure 123 présente un schéma de ces dispositifs et de leurs singularités.

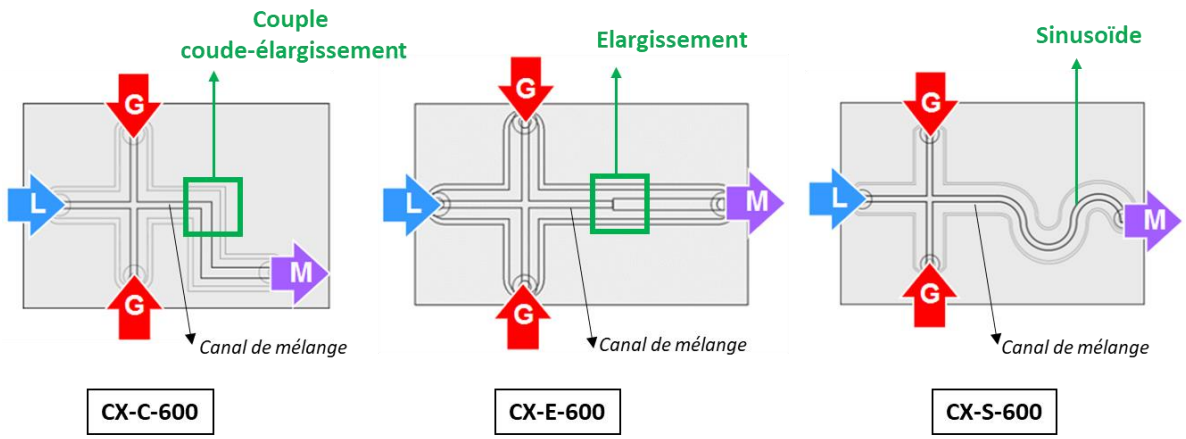


Figure 123. Dispositifs intégrant des singularités géométriques en sortie du canal de mélange.

Trois géométries sont donc proposées pour les singularités. Un élargissement (CX-E-600) et le couple coude-élargissement (CX-C-600) sont proposés en raison des transitions caractéristiques en sortie du dispositif de référence identifiés dans la figure 122. Quant au canal en sinusoïde (CX-S-600), il a été proposé en raison que celle-ci est une géométrie qui est de plus en plus étudiée en microfluidique lorsque des fluides viscoélastiques sont utilisés. Il serait donc intéressant d'étudier si cette géométrie présente un intérêt au niveau du fractionnement à haut débit.

Dans cette troisième partie, on va s'intéresser d'abord aux visualisations des interfaces gaz-liquide à l'intérieur de ces singularités géométriques ainsi qu'à l'identification des mécanismes de déformations des interfaces. Ensuite, en raison des mousses plus fermes

obtenues avec le dispositif avec un élargissement (voir partie 1 des résultats), l'étude se focalisera sur le dispositif CX-E-600. En particulier, on proposera d'un point de vue méthodologique une analyse du fractionnement en se basant sur la courbe de Grace (Grace, 1982). On présentera aussi des comparaisons au niveau du canal de mélange entre le dispositif de référence (CX600) et le dispositif avec l'élargissement (CX-E-600). Finalement, les effets du type du dispositif, du débit liquide et de la concentration de xanthane sur les propriétés de la mousse en sortie seront présentés. L'intégralité des tableaux de cette troisième partie ainsi que d'autres tableaux complémentaires peuvent être retrouvés dans l'annexe B.

3.2 Visualisation à l'intérieur des singularités géométriques

La figure 124 présente une compilation des visualisations réalisées à l'intérieur des singularités des dispositifs CX-S-600, CX-C-600 et CX-E-600 en utilisant les conditions Q_{vL} = 3 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1} et Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. Généralement, nos conditions de foisonnement sont comprises dans la gamme des débits liquides entre 11 et 19 L.h^{-1}. En raison de la complexité de l'écoulement diphasique à ces forts débits à l'intérieur de certains dispositifs, il a été nécessaire de réaliser des visualisations à un débit plus faible (Q_{vL} = 3 L.h^{-1}) dans le but de mieux appréhender les phénomènes ayant lieu dans les microcanaux.

3.2.1 Le cas d'un canal en sinusoïde

La figure 124a montre le cas pour l'écoulement diphasique à l'intérieur d'un canal en sinusoïde (ou serpentin) dans le dispositif CX-S-600. Les bulles formées en foisonnant la solution WPI3XG04 ont été visualisées à trois endroits différents du dispositif à un débit liquide de Q_{vL} = 11 L.h^{-1}. La vitesse des bulles dans les trois points visualisés a été mesurée (figure 125a). Leur vitesse moyenne augmente au fur et à mesure qu'elles traversent les différentes parties de la singularité. D'un autre côté, il est clair que les bulles s'étirent de plus en plus, ce qui est quantifié par une mesure de la circularité effectuée pour quelques bulles (figure 125b). Cet étirement pourrait cependant occasionner un surdimensionnement dans les calculs de vitesses étant donné qu'ils sont effectués à partir d'une analyse d'image en mesurant la distance parcourue par une bulle à partir d'un repère (souvent une partie de la bulle).

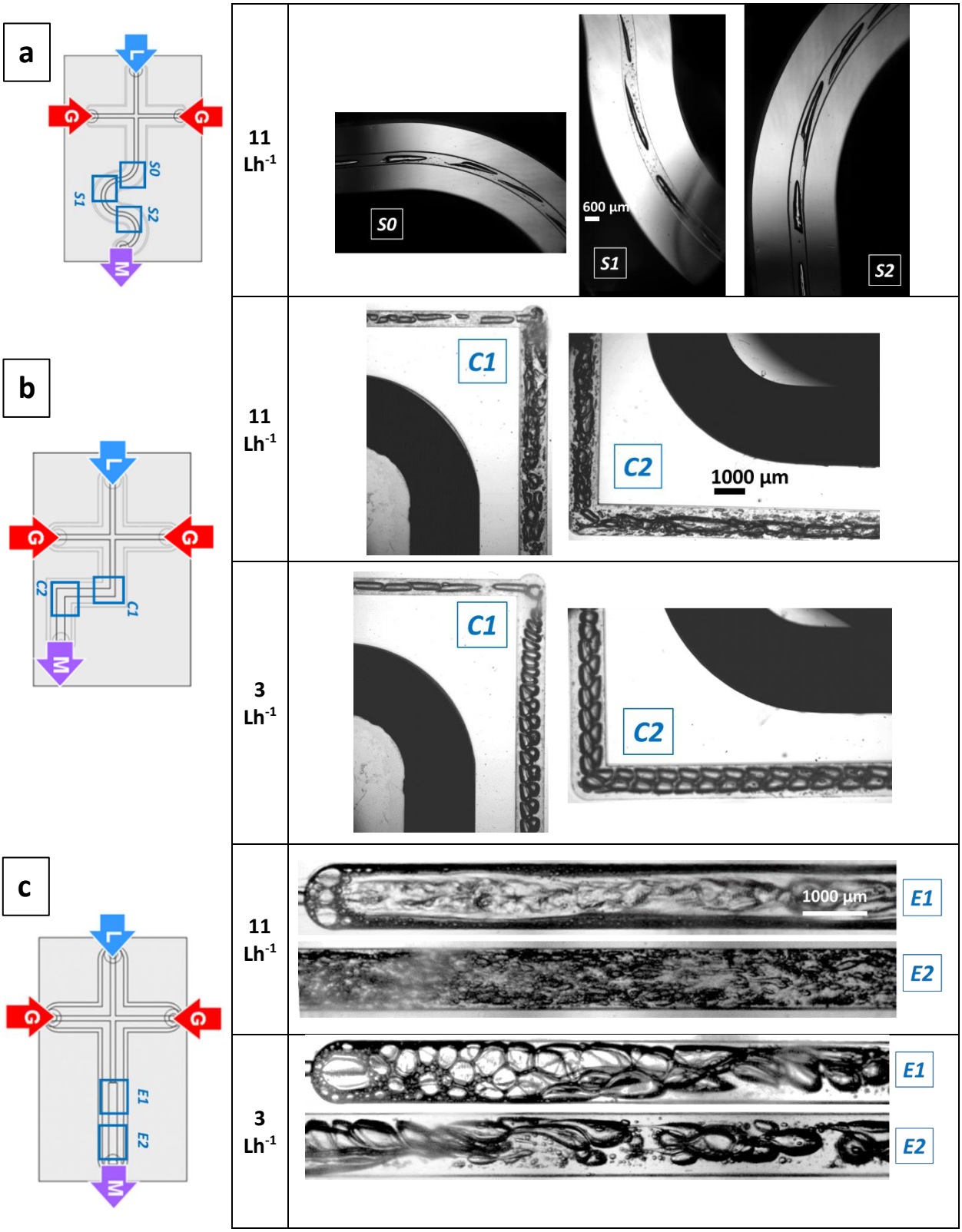


Figure 124. Visualisations à l'intérieur des singularités géométriques en utilisant la solution WPI3XG04 **a)** visualisations dans le dispositif **CX-S-600 à Q_{vL}=11 L.h^{-1}-Q_{mG}** = 21,6 g.h^{-1} **b)** visualisation dans le dispositif **CX-C-600 à Q_{vL}=11 L.h^{-1}-Q_{mG}** = 21,6 g.h^{-1} et **Q_{vL}=3 L.h^{-1}-Q_{mG}** = 5 g.h^{-1} **c)** visualisations dans le dispositif **CX-E-600 à Q_{vL}=11 L.h^{-1}-Q_{mG}** = 21,6 g.h^{-1} et **Q_{vL}=3 L.h^{-1}-Q_{mG}** = 5 g.h^{-1}.

Les étirements particuliers des bulles au moment du changement de direction invitent à penser aussi à des changements dans le profil de vitesse. En effet, selon Caro *et al.* (2012), les profils de Poiseuille de vitesses caractéristiques dans le cas d'un écoulement laminaire peuvent être déformés lors du passage à travers des géométries incurvées. Ces auteurs affirment même que ce type d'altération peut engendrer des écoulements secondaires. En effet ce type de géométrie a été déjà utilisé dans le domaine de la microfluidique pour la recherche des instabilités viscoélastiques et turbulence élastique caractéristiques des solutions des polymères à des nombres de Reynolds inférieurs à 1 (Copeland *et al.*, 2017 ; Galindo-Rosales *et al.*, 2014). Dans notre cas, malgré les élongations importantes observées, nous n'avons visualisé aucun fractionnement des bulles avec cette géométrie.

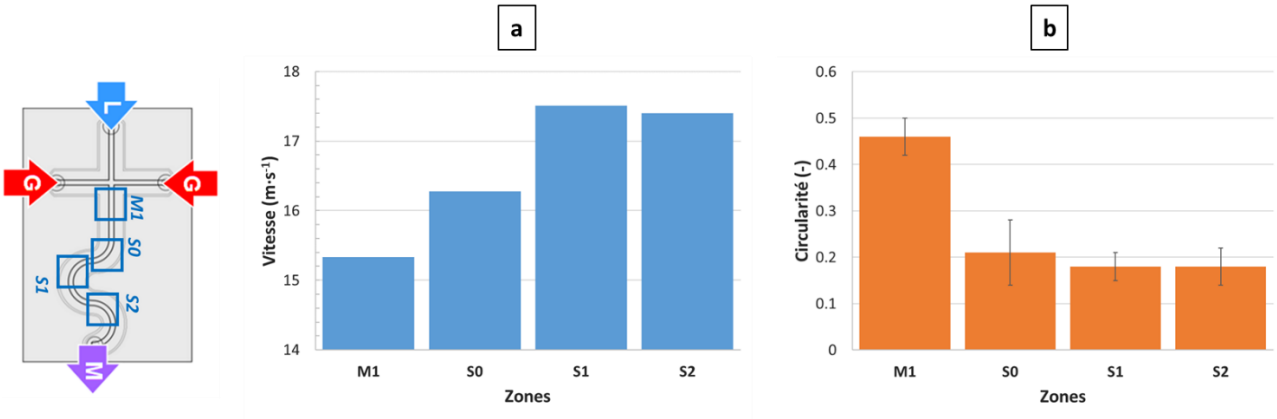


Figure 125. Caractérisation des bulles traversant les différentes régions du dispositif CX-S-600 en utilisant la solution WPI3XG04 à Q_{vL} = 11 L.h^{-1} **a)** vitesse des bulles. **b)** circularité des bulles.

3.2.2 Le cas du couple coude-élargissement

L'écoulement diphasique à travers le dispositif microfluidique intégrant un coude (couplé à un élargissement), CX-C-600, est présenté dans la figure 124b pour les débits liquides Q_{vL} = 3 et 11 L.h^{-1}. Une analyse pour le débit 11 L.h^{-1} permet de constater la complexité de la démarche de visualisation de l'écoulement à forts débits dans les coudes. Malgré ceci, il a été possible d'identifier le fractionnement de quelques bulles par impact lors de leur passage par le premier coude (figure 126). Ce type de mécanisme de fractionnement des interfaces par impact a été déjà étudié par d'autres auteurs dans le cas des collisions des gouttes dans les conditions suivantes : $Re >> 1$ et $We >> 1$ (Michaelides *et al.*, 2017 ; Wildeman *et al.*, 2016) et dans le cas de systèmes liquide-liquide à l'intérieur des microsystèmes T-junction à des $Re < 1$ (Yap *et al.*, 2008). En raison d'une diminution importante de la vitesse des bulles dans le premier coude, le passage à travers le deuxième

coude n'a pas entraîné des collisions importantes qui puissent fractionner davantage les bulles et au contraire, ce deuxième coude favorisait plutôt la coalescence (figure 127).

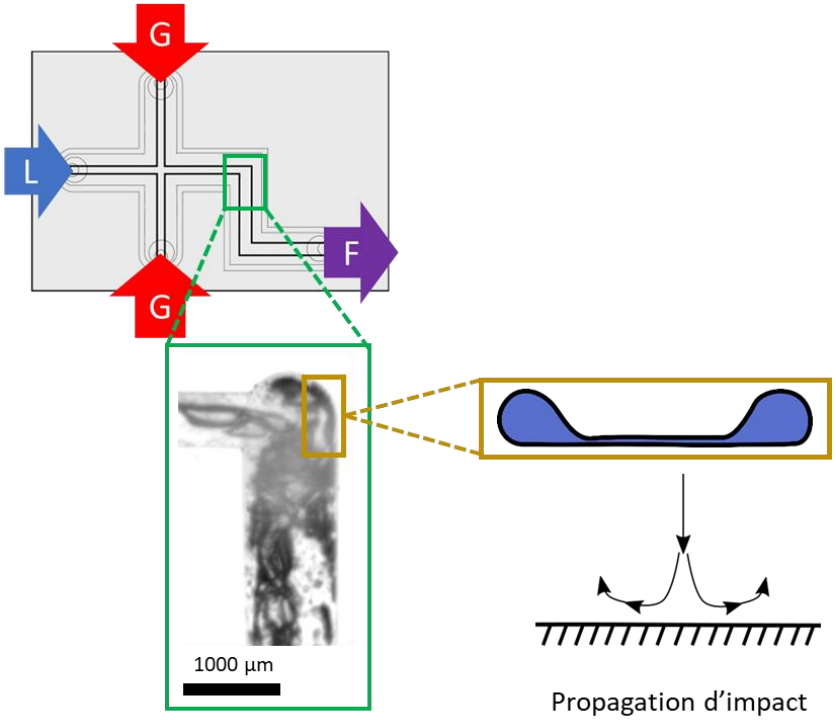


Figure 126. Mécanisme de fractionnement par propagation d'impact identifié dans le premier coude du dispositif CX-C-600 avec la solution WPI3WG04 à Q_{vL}=11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}.

Des visualisations pour cette géométrie ont été aussi effectuées à un débit de Q_{vL} = 3 L.h^{-1} (figure 124b). Le train de bulles acquiert une configuration remarquable en forme d'épi qui s'approche des dispositions spatiales des bulles observées dans des études de la microfluidique traditionnelle à de plus faibles débits (Marmottant & Raven, 2009 ; Raven & Marmottant, 2009). On peut constater une diminution de la vitesse des bulles lors de leur passage par les différentes sections visualisées (figure 128a). En analysant cet histogramme des vitesses on confirme que c'est le passage par le premier coude qui fait diminuer brusquement la vitesse à cause des impacts contre les parois mais aussi en raison de l'élargissement du canal. En revanche, la présence du deuxième coude, favorisant la coalescence, est désavantageuse pour un procédé de foisonnement dont l'objectif est de fractionner davantage les bulles. Enfin, Il est possible aussi de remarquer comment cette diminution de la vitesse des bulles mène à une situation où la vitesse relative entre les deux fluides devient presque nulle, permettant aux bulles d'acquérir leur forme sphérique et de ce fait des circularités plus élevées (figure 128b).

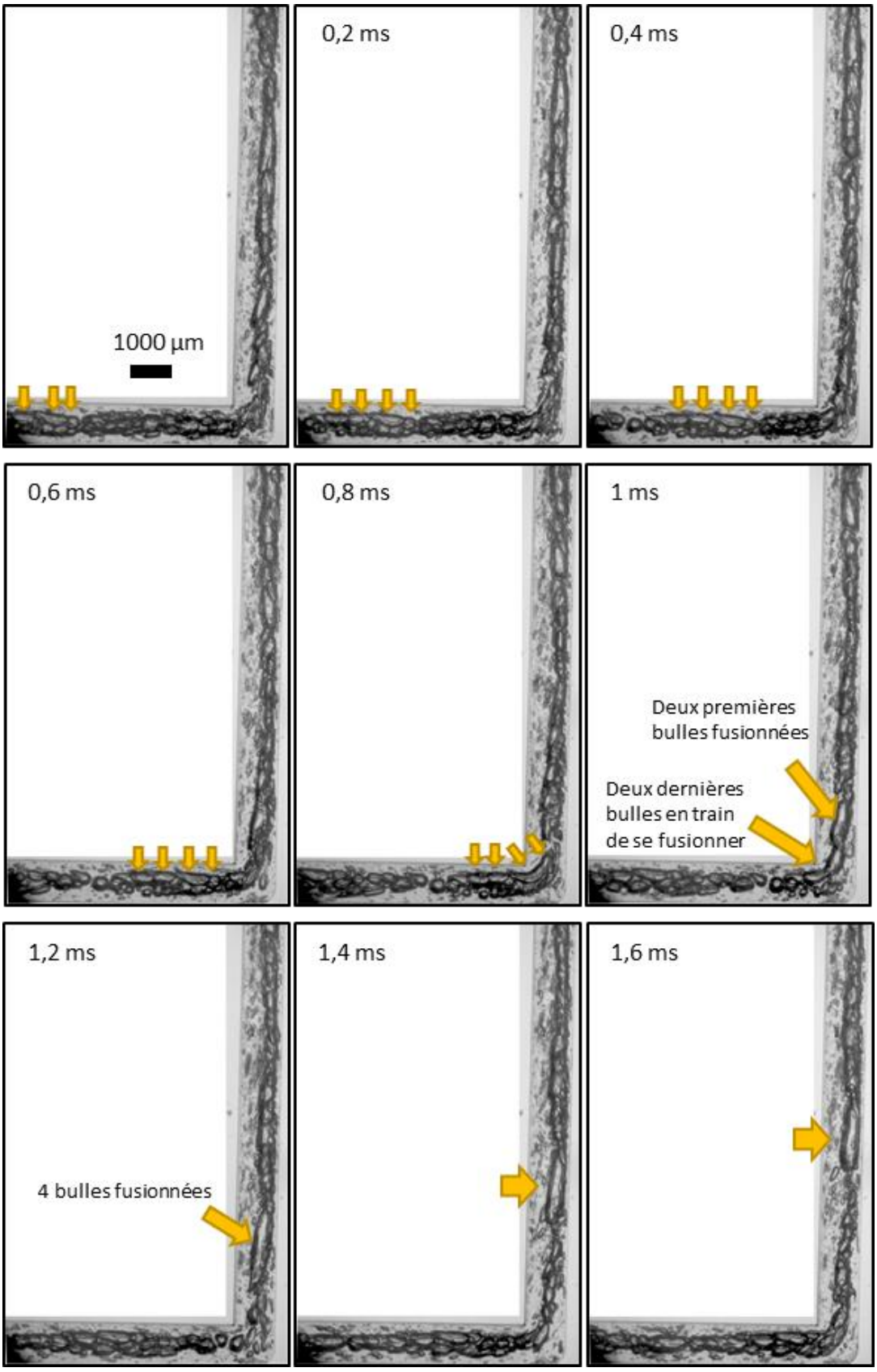


Figure 127. Coalescence des bulles dans le deuxième coude du dispositif CX-C-600 pour la solution WPI3XG04 et débits Q_{vL}=11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}.

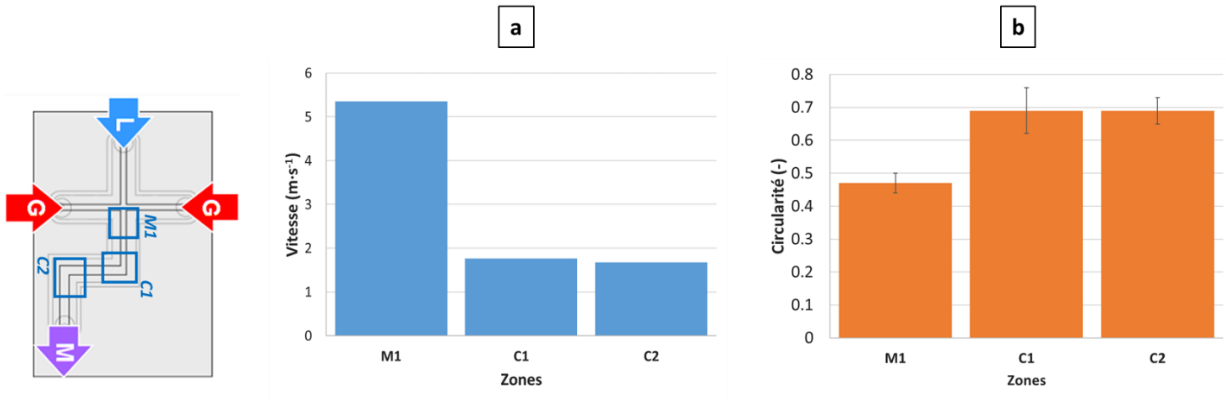


Figure 128. Caractérisation des bulles traversant les différentes régions du dispositif avec coudes CX-C-600 en utilisant la solution WPI3XG04 à Q_{vL} = 3 L.h^{-1} **a)** vitesse des bulles. **b)** circularité des bulles.

3.2.3 Le cas d'un élargissement

L'écoulement diphasique gaz-liquide à travers un élargissement (diamètre hydraulique 600➔1000 µm) est présenté dans la figure 124c à deux conditions de débit liquide Q_{vL} = 3 L.h^{-1} et 11 L.h^{-1}, pour le dispositif CX-E-600. Les visualisations ont été effectuées en début (E1) et à la fin (E2) de l'élargissement. Les visualisations en début de la singularité (E1) montrent de manière systématique la présence de poches d'air. Il s'agit de bulles qui stagnent contre les parois dans cette zone. Elles empêchent d'ailleurs une visualisation nette de ce qui se déroule dans cette partie de la singularité, même à des faibles débits. En conséquence, des visualisations en fin de singularité (E2) ont également été effectuées. Les visualisations à cet endroit (E2) montrent plus clairement le comportement individuel des bulles. Cependant, en raison des dimensions relativement importantes de ce canal d'élargissement (D_h ~ 1000 µm), la veine fluide a une épaisseur importante ce qui rend difficile l'analyse des bulles individuellement, à débits trop élevés. Pour des débits plus faibles comme dans le cas de 3 L.h^{-1}, ces comportements individuels ont été plus facilement identifiables. En conséquence, les visualisations sur cette géométrie ont été effectuées à la fin du canal d'élargissement et principalement en utilisant un débit liquide relativement faible de 3 L.h^{-1}.

La figure 129 présente un exemple de la vitesse des bulles calculée dans plusieurs régions du dispositif CX-E-600 en utilisant un le débit liquide de 3 L.h^{-1}. La vitesse moyenne dans la zone M1 est mesurée à 4 mm de la zone de la jonction des deux fluides. De façon similaire, la vitesse moyenne des bulles en fin du canal de mélange (M2) est déterminée à peu près à 18 mm de la jonction des fluides. Une comparaison des vitesses M1 et M2 montre une légère diminution de la vitesse entre le début et la fin du canal de mélange. Cette tendance

paraît contradictoire car la vitesse devrait normalement augmenter jusqu'à une certaine longueur d'établissement de régime, comme avancé dans la première partie des résultats pour CX600. La vitesse en M2 devrait donc être de même valeur ou plus élevée que celle en M1. Les changements locaux de l'écoulement en raison des effets collectifs ainsi qu'une possible diminution de la vitesse avant l'entrée de l'élargissement pourraient expliquer ces résultats. En effet, le passage vers un élargissement est connu pour provoquer une diminution significative de la vitesse moyenne des bulles à l'approche de cette singularité (Çengel & Cimbala, 2014). Les vitesses axiales des bulles dans l'élargissement ont des écarts importants en raison des écoulements secondaires qui déplacent les bulles dans plusieurs directions. Cela se traduit par un écart-type sur la valeur moyenne très élevé. Des comparaisons avec le dispositif de référence CX600 concernant les vitesses des bulles et les temps de séjour sont proposées par la suite dans cette troisième partie. D'abord, on s'intéressera aux phénomènes de déformation et fractionnement des interfaces dans l'élargissement qui ont pu être observés en utilisant le débit liquide de 3 L.h^{-1}.

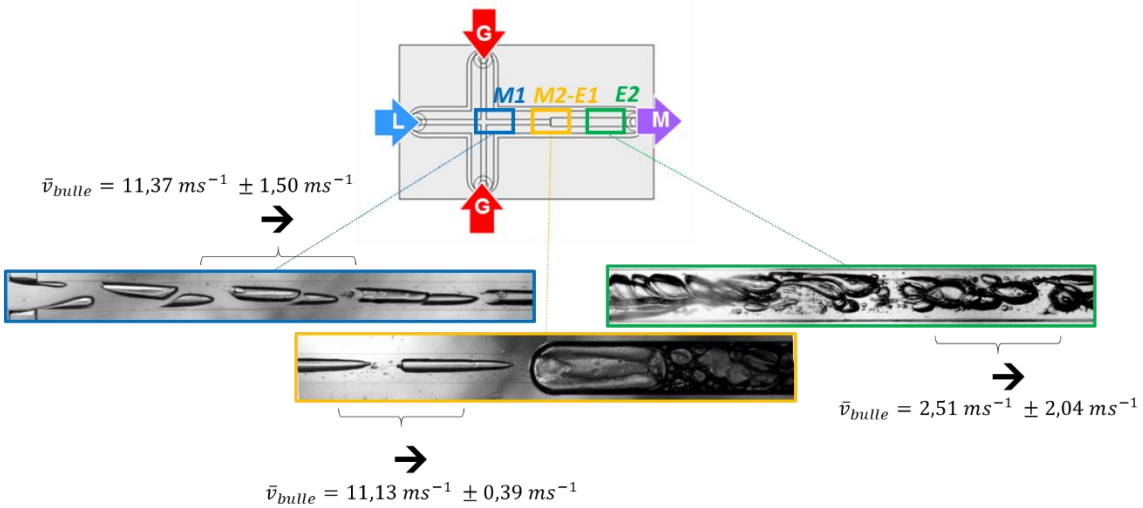


Figure 129. Vitesse moyenne des bulles à plusieurs endroits du dispositif ayant un élargissement CX-E-600 pour la solution WPI3XG04 à Q_{vL} = 3 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1}.

3.3 Déformation et fractionnement des interfaces dans un élargissement

Les visualisations menées à un débit de la phase liquide valant 3 L.h^{-1} en fin d'élargissement ont permis de remarquer plusieurs aspects intéressants de l'écoulement diphasique gaz-liquide avec la solution WPI3XG04. A ce débit, l'écoulement diphasique dans l'élargissement est plutôt laminaire avec un nombre de Reynolds liquide calculé de 110 (tableau 11). Toutefois l'écoulement n'est pas établi, des tourbillons et des phénomènes de recirculation et de refoulement ont été remarqués. Ces phénomènes appelés écoulements

secondaires sont dus au changement de géométrie et ont déjà été étudiés par d'autres auteurs dans le cas de macroconduits (Çengel & Cimbala, 2014 ; Hallett & Günther, 1984 ; Mak & Balabani, 2007 ; Rocha *et al.*, 2007) mais également à des échelles micrométriques (Peixinho & Besnard, 2013).

La présence de ces écoulements secondaires a conduit à des phénomènes de déformation et de fractionnement des interfaces gaz-liquide assez remarquables malgré le faible débit liquide utilisé. La figure 130a présente le cas d'une bulle dans l'élargissement qui subit une élongation importante et finit par se fragmenter en deux bulles (fractionnement binaire). Les tourbillons et phénomènes de recirculation sont généralement à l'origine des écoulements élongationnels (Macosko, 1994) lesquels sont décrits dans la littérature comme intensifiant le fractionnement dans les systèmes dispersés (Grace, 1982). D'après Deshpande *et al*. (2010) et Macosko (1994) ces écoulements sont présents dans diverses opérations industrielles de filage de fibres, thermoformage, soufflage et production de mousses impliquant des contractions et élargissements.

L'écoulement élongationnel qui s'établit localement explique les étirements et fractionnements binaires des bulles visualisées dans l'élargissement. Ce mécanisme de fractionnement binaire est schématisé dans la figure 130b. Contrairement au tip-streaming, le fractionnement binaire observé produit des bulles filles plus grosses et de manière plus intermittente, comme remarqué par Janssen *et al.* (1994). Le mécanisme de rupture binaire pourrait être lié à une couverture plus élevée en tensioactifs (Jain, 2017). En effet, dans le canal d'élargissement, les temps de séjour sont plus longs ce qui permettrait une plus grande diffusion et adsorption des protéines dans l'interface. Pour les bulles dans l'élargissement, les formes sont très variées en raison de fortes élongations. On peut en effet trouver des bulles très étirées comme des bulles ayant des formes sphériques. L'analyse de la circularité ne serait donc pas un bon paramètre pour caractériser et différencier les bulles dans l'élargissement. C'est pourquoi on n'a pas effectué cette caractérisation comme dans le cas des dispositifs CX-C-600 et CX-S-600.

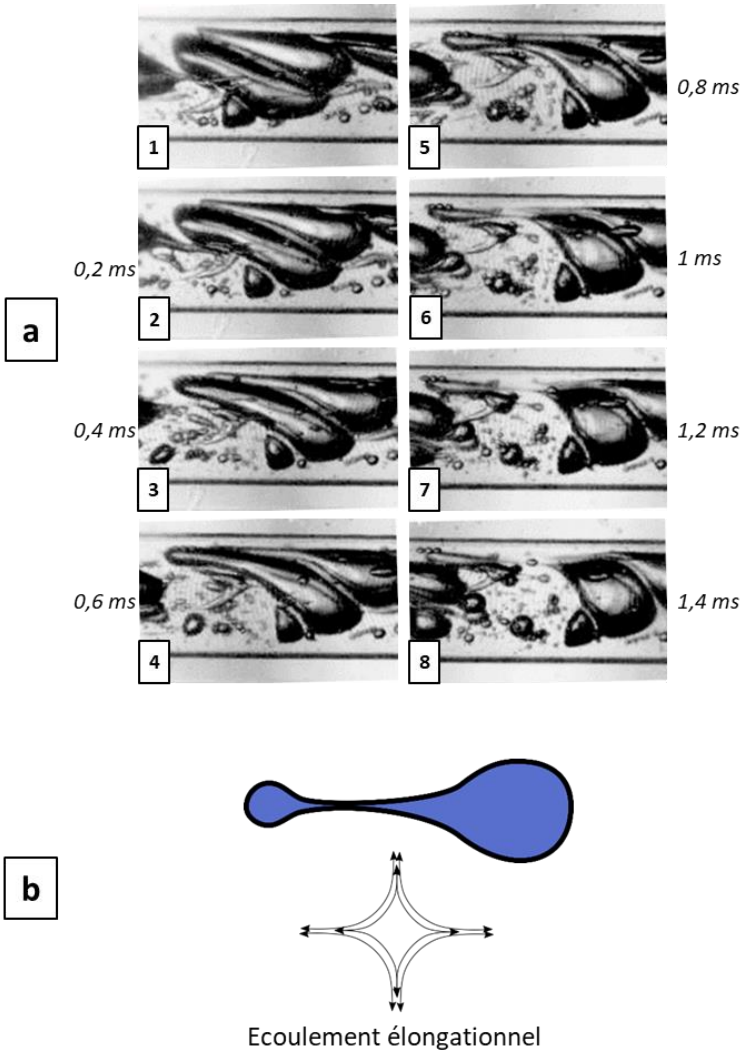


Figure 130. Mécanisme de fractionnement des bulles identifié dans l'élargissement du dispositif CX-E-600 en utilisant la solution WPI3XG04 à Q_{vL} = 3 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1} **a)** Photos successives de la bulle fractionnée en E2. **b)** Schéma de fractionnement binaire d'une bulle dans un écoulement élongationnel.

Il est observé que certaines bulles en cours de déformation par élongation dans l'élargissement essayent de regagner leur forme mais finissent par se fractionner. Il pourrait bien s'agir aussi d'un mécanisme de fractionnement du type *end-pinching*. Le mécanisme « end-pinching » est présent lorsqu'une bulle ou goutte est étirée et que l'écoulement est ensuite arrêté. La bulle tend à regagner sa forme mais le temps caractéristique des instabilités mis en jeu est plus court que le temps de récupération et la rupture a finalement lieu (Stone, 1994). Ce mécanisme peut aussi apparaitre lorsque les bulles ou gouttes se déplacent vers des régions où l'écoulement est caractérisé par des nombres capillaires plus faibles (Drenckhan & Saint-Jalmes, 2015 ; Janssen, 1994 ; Leal, 2004 ; Stone, 1994). Ceci est le cas lors du passage du canal de mélange vers l'élargissement où pour un débit liquide de 3 L.h-1, on passe d'un nombre capillaire de 0,16 dans le canal de mélange à 0,12 dans l'élargissement (tableaux

10 et 11). Puisque les phénomènes ayant lieu dans l'élargissement ne sont pas pour le moment complètement maitrisés, nous ne sommes pas absolument sûrs de pouvoir attribuer le fractionnement visualisé dans l'élargissement comme appartenant à un mécanisme de type « end-pinching ». En conséquence, nous allons faire référence au terme fractionnement binaire pour les discussions du fractionnement dans l'élargissement.

Tableau 10 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans le canal de mélange du dispositif microfluidique CX-E-600 pour plusieurs conditions de débit en utilisant la solution WPI3XG04

P_{pompe}	Q_{vL}	U_L	Q_{mG}	p_{inj}	Q_{vG}	U_G	$\alpha\ (p)$	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L	ΔP_1
bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	g.h^{-1}	bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	-	s^{-1}	Pa.s	-	-	-	bar
3,74	3,0	2,17	5,00	2,32	1,29	0,99	0,314	2,57E+04	3,38E-03	0,16	373	60	1,12
7,86	6,9	5,32	12,00	4,18	1,98	1,53	0,223	6,30E+04	2,69E-03	0,31	1153	358	2,38
12,62	11,0	8,46	21,60	6,32	2,53	1,95	0,187	1,00E+05	2,49E-03	0,46	1981	907	3,82
16,57	13,7	10,56	23,00	7,49	2,32	1,79	0,145	1,25E+05	2,42E-03	0,56	2545	1413	4,49
20,48	16,4	12,66	31,00	9,16	2,61	2,02	0,138	1,50E+05	2,37E-03	0,65	3113	2030	5,52

Tableau 11 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans l'élargissement du dispositif microfluidique CX-E-600 pour plusieurs conditions de débit en utilisant la solution WPI3XG04

Q_{vL}	U_L	Q_{vG}	U_G	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L
L.h^{-1}	m.s^{-1}	L.h^{-1}	m.s^{-1}	s^{-1}	Pa.s	-	-	-
3,0	0,78	12,873	0,36	5,55E+03	6,88E-03	0,12	110	13
6,9	1,91	19,829	0,55	1,36E+04	4,32E-03	0,18	431	77
11,0	3,05	25,277	0,70	2,17E+04	3,59E-03	0,24	825	196
13,7	3,80	23,212	0,64	2,70E+04	3,33E-03	0,28	1109	305
16,4	4,56	26,150	0,73	3,24E+04	3,15E-03	0,31	1405	439

Pour résumer, plusieurs morphologies semblent coexister dans l'élargissement et le canal de mélange (figure 131). Dans le cas de l'élargissement des élongations importantes ont lieu permettant d'observer plusieurs situations. Quelques bulles s'étirent complètement formant de longs filaments qui peuvent éventuellement se fractionner en plusieurs petites bulles en raison des instabilités capillaires développées le long du filament. Cependant, ce fractionnement n'a pas encore été mesurable. Dans certaines images, l'arrière des bulles semble se fractionner en plusieurs parties de taille importante (fractionnement multiple). Enfin, le cas le plus observé est celui du fractionnement binaire dans lequel la bulle développe un long filament à l'arrière, lequel essaye de regagner sa forme mais finit par se détacher de l'autre partie de la bulle « mère » et former une nouvelle bulle « fille ».

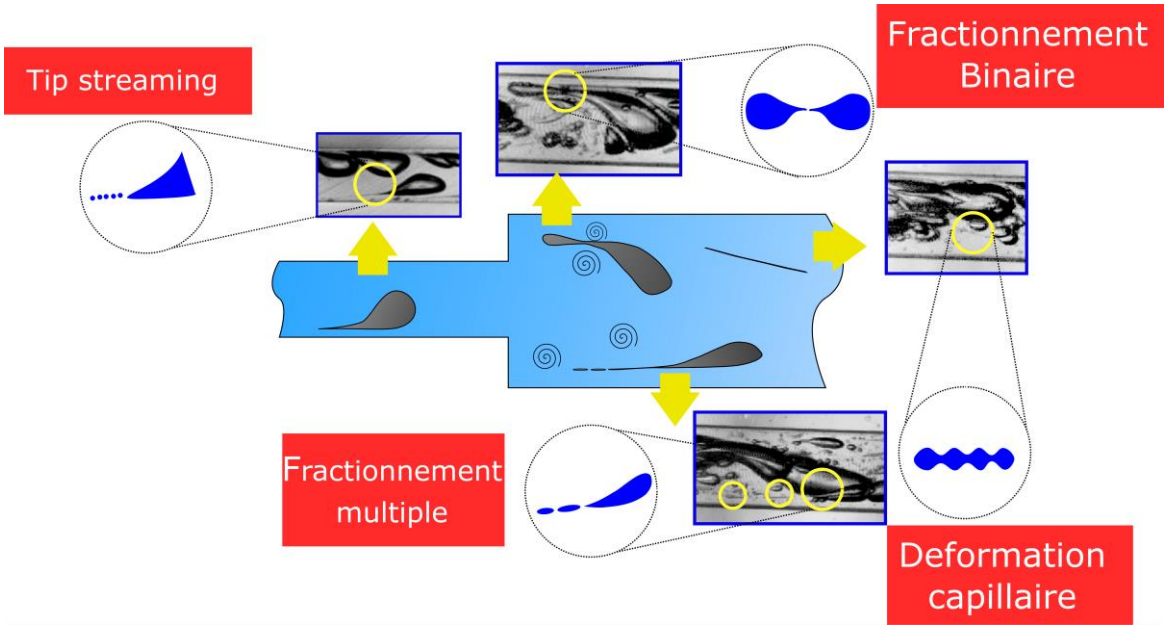


Figure 131. Schématisation de différentes situations de déformation et fractionnement des bulles observés dans le canal de mélange (M1) et l'élargissement (E2).

3.3.1 Analyse courbe de Grace

Afin d'analyser le fractionnement observé dans les zones M1 et E2 à la lumière des outils traditionnels d'analyse des systèmes dispersés, nous avons superposé quelques-unes de nos données sur la courbe de Grace (Grace, 1982). L'analyse basée sur la courbe de Grace est l'approche la plus utilisée dans l'étude du mélange dispersif (Stegeman *et al.*, 2008). Cette courbe décrit le fractionnement d'une goutte en fonction du nombre capillaire de la goutte (équation 42) et du rapport de la viscosité de deux fluides en jeu (équation 43). La figure 132a présente la courbe de Grace qui est en fait composée de trois limites déterminant la rupture des interfaces pour 3 conditions expérimentales. La première courbe correspond à celle d'un fractionnement dans un écoulement de cisaillement simple (ligne solide). Une deuxième courbe représentant le fractionnement par tip streaming en présence de tensioactifs a été aussi proposée (ligne pointillée). Finalement, le fractionnement d'une goutte dans un écoulement élongationnel (ligne en tirets) fut aussi étudié par Grace (1982). Bien que cette étude ait été à l'origine réalisée sur un système dispersé liquide-liquide, les conclusions qui en ont été tirées ont été également appliquées aux dispersions gaz-liquide (Müller-Fischer *et al.*, 2008).

Par la suite, nous avons d'abord évalué le nombre capillaire de bulles pour quelques bulles traversant la zone M1 (cercles) et ces données ont été superposées sur le graphique de Grace de la figure 132a. Les bulles traversant cette zone étaient soumises à un écoulement de

cisaillement. La première constatation qu'on peut faire concerne le fait que nos points sont positionnés légèrement au-dessus de la courbe de fractionnement en écoulement de cisaillement simple. Selon ce résultat, on pourrait observer un fractionnement de la bulle en deux comme celui observé par Grace (1982). Cependant, dans nos visualisations à haute vitesse, on n'a jamais observé une rupture drastique des bulles dans la région M1. On a plutôt visualisé un mécanisme d'érosion des bulles par tip streaming (figure 132b). Compte tenu de ceci, quand on compare nos résultats avec la courbe pour tip streaming (ligne pointillée), on voit bien que nos points sont au-dessus de cette ligne. On devrait donc constater du tip streaming dans nos conditions expérimentales et c'est exactement ce que nous avons pu remarquer dans nos visualisations. On peut donc dire que dans ce cas, la courbe de Grace semble en bonne adéquation pour décrire ce fractionnement par tip streaming visualisé dans nos conditions expérimentales.

Un deuxième jeu de mesures, celles des bulles dans l'écoulement élongationnel (figure 132b) observés dans l'élargissement (zone E2), est superposé également sur le graphique de Grace (triangles). Ces points sont comparés avec la courbe proposée par Grace (1982) pour le fractionnement dans un écoulement élongationnel (ligne en tirets). On peut constater que nos points se trouvent plutôt au-dessous de la courbe, ce qui mènerait à conclure que les bulles dans l'élargissement ne devraient pas subir une rupture. Ce résultat est contraire à nos visualisations où nous avons pu constater des fractionnements binaires des bulles. En conséquence dans le cas des écoulements élongationnels, la courbe de Grace ne décrit pas bien les phénomènes de fractionnement des interfaces observés.

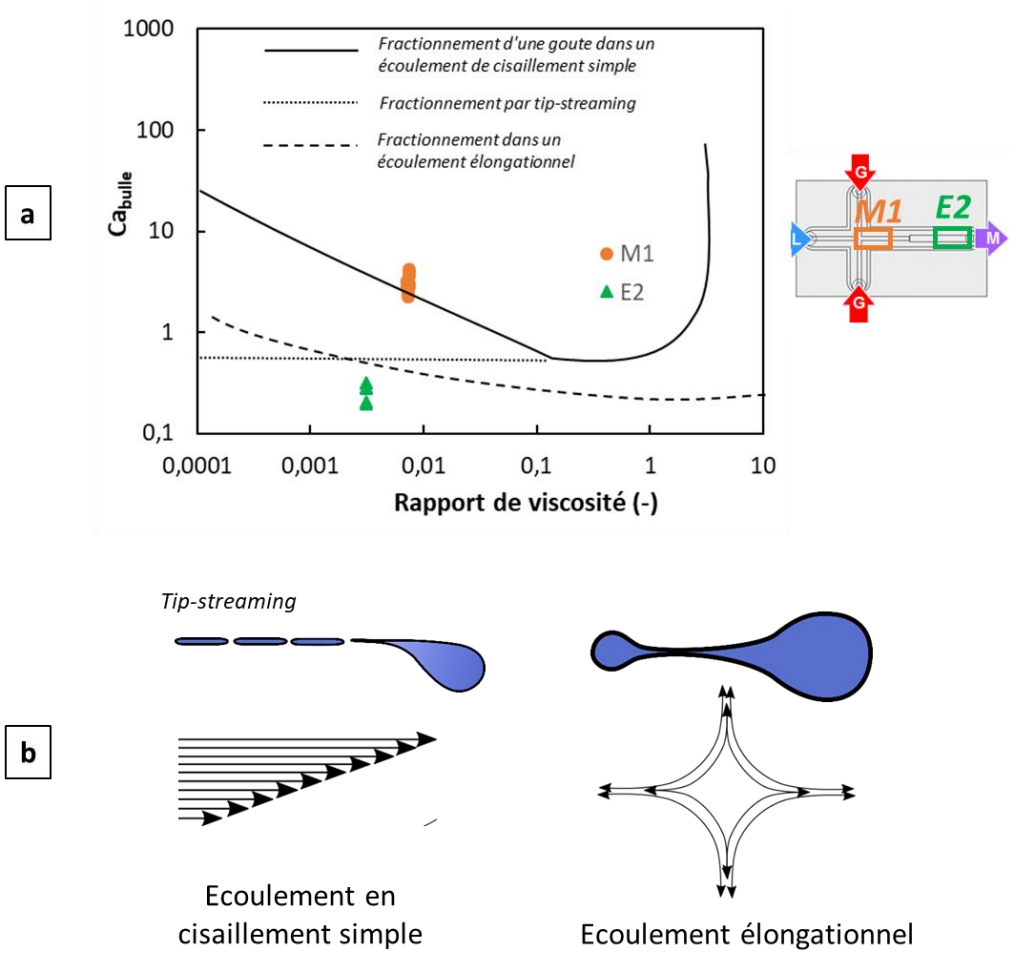


Figure 132. Analyse du fractionnement des bulles observé dans le canal de mélange (zone M1) et dans l'élargissement (zone E2). **a)** superposition sur la courbe de Grace de mesures pour quelques bulles étudiées. **b)** schématisation des fractionnements observés dans la zone M1 et E2. L'analyse pour la zone M1 a été effectué pour des bulles produites avec la solution WPI3XG04 à Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. L'analyse des bulles dans E2 est effectuée à une condition des débits inférieurs de Q_{vL} = 3 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1}.

On constate donc, que bien que la courbe de Grace soit un outil de prédiction largement répandu dans l'étude des milieux dispersés, elle ne serait pas capable de décrire correctement les comportements dans des conditions expérimentales impliquant des effets collectifs de bulles, qui plus est dans le cas de fluides non-newtoniens s'écoulant dans des géométries complexes. Cette inadéquation de la courbe de Grace pour la description des opérations de dispersion a été aussi remarquée par Janssen et Meijer (1993) et Stegeman *et al.* (2008) pour les opérations de mélange industriel. Malgré ceci, d'autres paramètres pourraient être précisés pour améliorer la qualité des observations effectués par cette analyse pour notre cas. Par exemple, il existe en fait plusieurs courbes qui vont d'un écoulement purement élongationnel ($\alpha = -1$) à un écoulement purement rotationnel ($\alpha = +1$), α étant un paramètre du type d'écoulement (Stone *et al.*, 1986). Nous avons assumé des écoulements purement de

cisaillement ($\alpha = 0$) et purement élongationnel ($\alpha = -1$) comme proposé dans les travaux originaux de Grace (1982). Enfin, un deuxième facteur qui pourrait influencer nos résultats concerne la subjectivité impliquée dans une analyse manuelle des caractéristiques des bulles en raison des formes très hétérogènes qui empêchaient une analyse automatisée.

3.3.2 Analyse de l'étirement des filaments

Une analyse complémentaire est proposée pour la déformation des bulles dans l'élargissement. Cette analyse concerne une théorie développée originalement par Rayleigh (1878) et amplement abordée dans Castrejon-Pita *et al.* (2012), Driessen *et al.* (2013) et Eggers et Villermaux (2008). Selon ces travaux, le fractionnement d'un filament liquide est déterminé par un rapport d'aspect critique. Nous avons basé cette étude sur les travaux présentés par Driessen *et al.* (2013) pour des filaments liquides visqueux. Dans leur article, les auteurs proposent une courbe décrivant la rupture d'un filament liquide en fonction du rapport d'aspect (Γ) et du nombre adimensionnel d'Ohnesorge (Oh) (voir équations 44 et 45).

Dans la figure 133a nous présentons d'abord une photo d'une bulle qui développe un filament gazeux surligné en jaune. La figure 133b correspond à une schématisation des bulles étirées et du filament développé ainsi que des dimensions axiale et radiale de ce filament qui sont utilisées pour l'analyse du rapport d'aspect. Enfin, la figure 133c montre la courbe proposée dans Driessen *et al.* (2013) pour le fractionnement des filaments liquides (ligne en tirets) ainsi que plusieurs de nos points superposés (cercles, carrés, triangles). Chaque type de marqueur représente une seule bulle qui a été suivie sur plusieurs photos au cours de son trajet. Par exemple, les cercles correspondent à une seule bulle, mais il y a plusieurs cercles car l'étirement du filament a été caractérisé dans plusieurs photos successives. Seules les photos correspondant à l'élongation maximale du filament observée sont liées par des flèches à leur point correspondant sur la figure.

Par la suite on a pu constater que les points situés au-dessus de la courbe correspondaient effectivement aux moments d'élongation maximale, c'est à dire avant détachement du filament par un processus d'étranglement (*necking),* dans le cas des bulles représentées par des carrés et des cercles. En revanche, dans le cas de la bulle représentée par les triangles, le filament ne s'est jamais détaché bien qu'ayant subi une forte élongation, comme visualisé dans la photo. Les mesures pour ce cas de non-fractionnement se sont positionnées précisément en dessous de la courbe de fractionnement. Ces résultats sont donc

plutôt prometteurs puisqu'il s'avère que la théorie développée pour le fractionnement des filaments liquides semble bien prédire le fractionnement (détachement) des filaments gazeux développés par les bulles sous écoulement élongationnel dans l'élargissement. Cependant, d'autres études complémentaires sont nécessaires pour confirmer ces premières expériences.

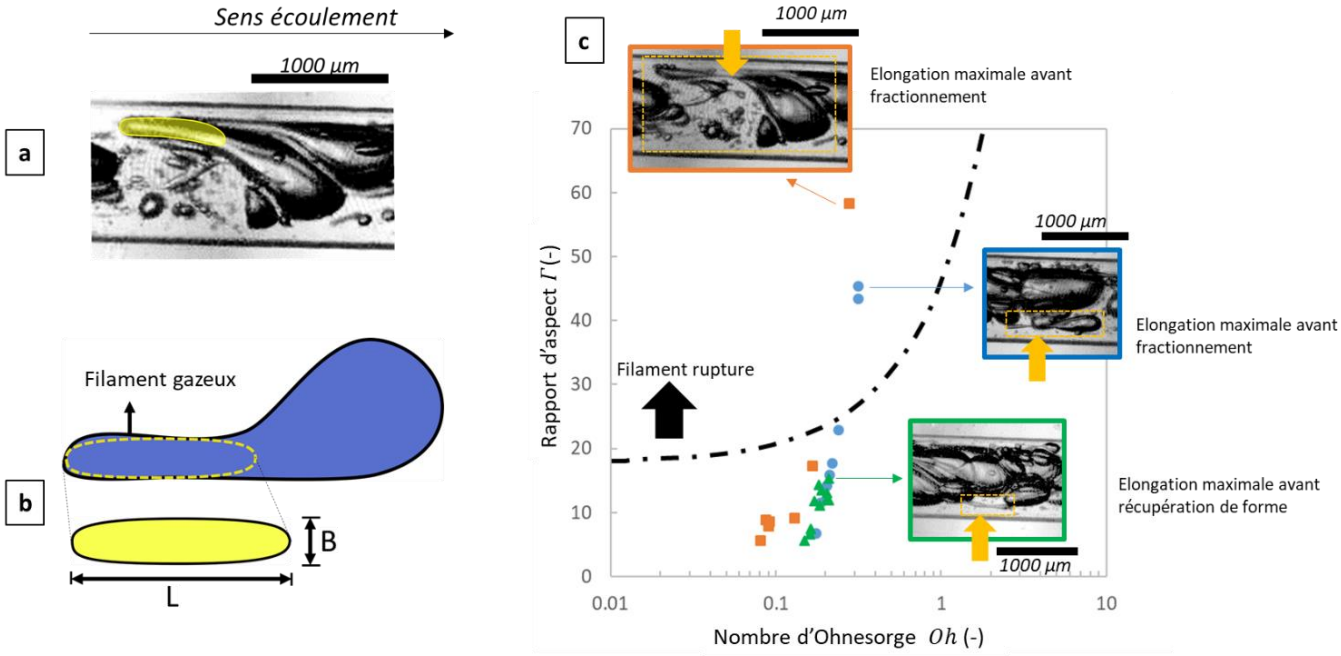


Figure 133. Analyse du fractionnement des filaments. **a)** photo d'une bulle étirée et présentant un filament en cours de développement à l'arrière. **b)** Schématisation de la bulle étirée ainsi que du filament surligné en jaune et des dimensions mesurées pour l'analyse. **c)** superposition sur la courbe présentée dans Driessen et al. (2013) de mesures successives effectuées sur trois bulles (respectivement représentées par des triangles, carrés et cercles) traversant l'élargissement. Solution employée : WPI3XG04 à Q_{vL} = 3 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1}. Chaque type de marqueur correspond à une seule bulle. Plusieurs marqueurs du même type correspondent à des photos successives pour la même bulle.

3.4 Train de bulles dans le canal de mélange pour CX-E-600 à fort débit

Des visualisations dans la zone M1 ont été menées aussi dans le cas du dispositif CX-E-600. L'étude de l'écoulement diphasique étant plus aisée dans cette zone, les débits ont pu être rétablis dans la gamme d'intérêt pour le foisonnement (11-19 L.h^{-1}). La figure 134 présente donc une comparaison des visualisations dans la zone M1 pour CX600 et CX-E-600 en foisonnant la solution WPI3XG04 à un débit liquide de 11 L.h^{-1}. D'abord, on peut remarquer que dans le cas du dispositif CX-E-600 (figure 134a), les bulles semblent être plus distantes les unes des autres que dans le cas du CX600 (figure 134b). De manière similaire, les bulles du CX-E-600 semblent être plus petites que pour CX600.



Figure 134. Visualisations de l'écoulement diphasique gaz-liquide à l'intérieur des microsystèmes pour la solution WPI3XG04 **a) CX-E-600 : Q_{vL}=11 L.h^{-1}** Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 6,32 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 1,95 m.s^{-1} **b) CX600 : Q_{vL}=11 L.h^{-1}** Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,83 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}.

La pression à l'intérieur des dispositifs est différente dans les deux cas. La figure 135 montre le profil de pression monophasique pour le dispositif CX-E-600 ainsi que ceux des dispositifs CX600 et CX500. Il est évident que les pressions pour CX-E-600 sont beaucoup plus importantes que pour CX600 à un même débit liquide. Ces pressions élevées vont comprimer davantage les bulles qui sont donc plus petites dans le canal de mélange de CX-E-600. De ce fait, les fractions de vide dans le canal de mélange aux mêmes conditions de débits sont plus faibles pour le cas du CX-E-600 (tableau 11) que pour CX600 (tableau 5).

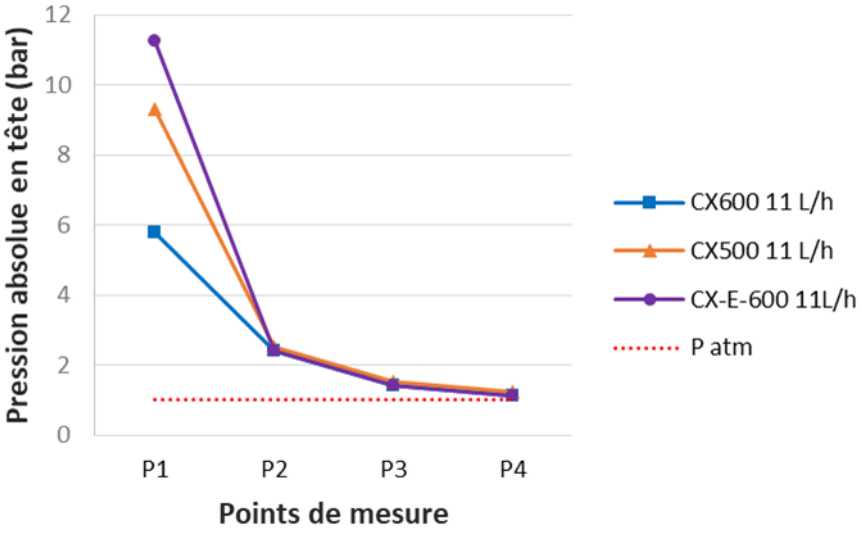


Figure 135 Comparaison des profils de pression en écoulement monophasique pour les dispositifs CX600, CX500 et CX-E-600 en utilisant la solution WPI3XG04 à Q_{vL} = 11 L.h^{-1}.

3.4.1 Granulométrie dans le canal de mélange M1

Dans la figure 136, on peut constater d'abord que les deux courbes ont des allures très similaires. Cependant, un regard plus attentif montre qu'il existe une présence de petites bulles plus significative pour le dispositif CX-E-600. Les pressions plus élevées pour ce dispositif sont à l'origine de ces tailles plus petites. En effet, la pression à l'arrière d'une bulle qui se forme va provoquer son détachement du fil de gaz dans la jonction de deux fluides (Muijlwijk, 2017). Les pressions sont plus importantes pour CX-E-600 et vont occasionner un détachement plus rapide conduisant à des bulles plus petites. Une deuxième constatation concerne la pente plus faible de la courbe CX-E-600 ce qui implique une polydispersité plus importante. Un calcul du *Span* pour les deux courbes donne en effet une valeur de 0,55 pour CX-E-600 et de 0,37 pour CX600.

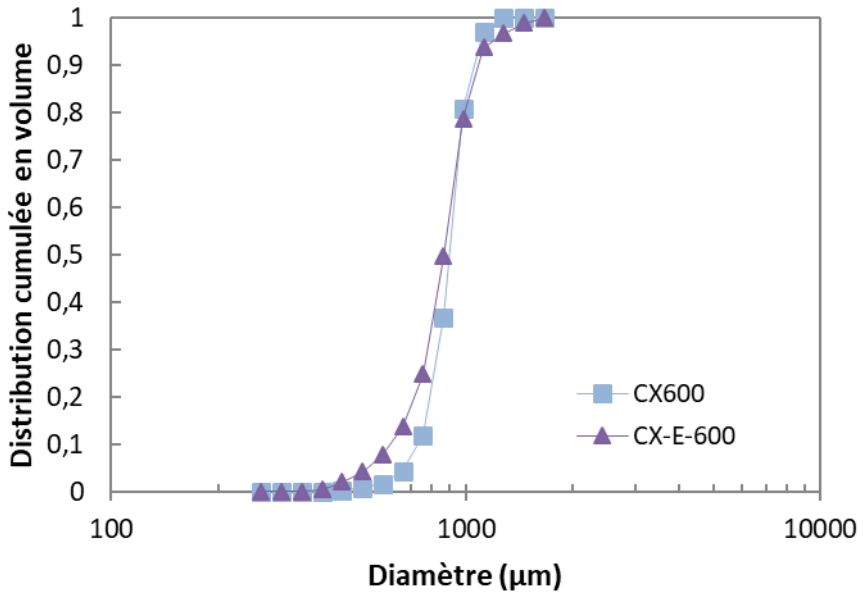


Figure 136. Comparaison des distributions granulométriques du train de bulles dans le microcanal (zone M1) des dispositifs CX600 et CX-E-600 avec la solution WPI3XG04 à Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. Les mesures des diamètres dans le microcanal ont été rapportées à la pression atmosphérique.

3.4.2 Modélisation de la taille des bulles dans le canal de mélange pour les dispositifs CX600 et CX-E-600

Maintenant, une modélisation de la taille des bulles formées dans la zone M1 avec la solution WPI3XG04 pour les dispositifs CX600 et CX-E-600 est proposée. Selon Çengel et Cimbala (2014) pour les cas où des forces inertielles significatives sont impliquées, l'analyse dimensionnelle s'avère être la meilleure approche pour la détermination des variables

d'intérêt. La procédure pour l'analyse dimensionnelle présentée dans Delaplace *et al.* (2015) est utilisée pour le développement d'un modèle décrivant la taille des bulles formées dans la croix.

D'abord, un jeu de variables physiques pertinent pour le procédé est sélectionné. Parmi ces variables nous trouvons les vitesses superficielles du liquide et du gaz ($U_L \; et \; U_G$), les masses volumiques des phases continue et dispersée ($\rho_L \; et \; \rho_G$), la viscosité dans le procédé de la phase continue et la phase dispersée (μ_L, μ_G), la tension interfaciale (σ), la chute de pression dans la zone du dispositif (ΔP), le diametre hydraulique du canal (D_h). La variable cible, le diametre de Sauter ou d_{32}, sera donc exprimé en fonction de ces variables physiques comme présenté dans l'équation 56. Le diamètre de Sauter est choisi comme paramètre cible pour la modélisation car il est pertinent dans des procédés d'augmentation de surfaces (Mary *et al.*, 2013 ; McClements, 2005).

$$d_{32} = f(U_L, U_G, \rho_L, \rho_G, \mu_L, \mu_G, \sigma, \Delta P, D_h) \tag{56}$$

La méthode de résolution par opérations matricielles permet de trouver les nombres adimensionnels formés avec les variables physiques décrites (Delaplace *et al.*, 2015). Après avoir obtenu tous les nombres sans dimension pertinents, ils sont réorganisés de manière à faire apparaître des nombres sans dimension dont les significations physiques sont déjà comprises (par exemple nombre de Reynolds) ou que l'on trouve couramment dans un domaine d'étude (rapport de débits dans le cas de la microfluidique). Ensuite, un seul monôme est choisi comme relation mathématique pour corréler les nombres. Finalement, les exposants des nombres sans dimensions sont calculés en minimisant la somme des carrés des erreurs entre les valeurs expérimentales et prédites. Le modèle obtenu est présenté dans l'équation 57.

$$\frac{d_{32}}{D_h} = 21 \left(\frac{Q_G}{Q_L}\right)^{0.29} {Re_L}^{-0.27} \, {Ca_L}^{0.36} \tag{57}$$

L'écart relatif moyen obtenu pour ce modèle est de 3,40% et la figure 137 présente l'ajustement du modèle empirique aux données expérimentales. Dans cette représentation, les diamètres de Sauter correspondent à ceux calculés pour les populations de bulles analysées

pour les 7 conditions employées : 11, 13,7, 16,4 et 19 L.h^{-1} pour CX600 et 11, 13,7, 16,4 L.h^{-1} pour CX-E-600. L'écart entre le modèle et les données expérimentales est plutôt faible ce qui permet de garantir de bonnes prédictions de la taille de bulles formées dans la zone M1 sous nos conditions expérimentales.

Une analyse de cette équation montre l'importance de l'équilibre des forces visqueuses-interfaciales représentée par le grand exposant du nombre capillaire par rapport aux autres. Ceci est cohérent avec la littérature concernant les bulles dans les canaux miniaturisés où les nombres capillaires seraient d'une importance capitale pour la description des phénomènes à ces échelles (Pipe & McKinley, 2009 ; Weaire & Drenckhan, 2008). Le rapport de débit et le nombre de Reynolds présentent également des exposants relativement importants, révélant une contribution considérable des forces d'inertie à la description de la taille des bulles dans les conditions expérimentales étudiées. Ces considérations soulignent l'importance de la prise en compte des forces d'inertie (par opposition à la microfluidique classique) pour la caractérisation de l'opération de foisonnement utilisant des dispositifs microfluidiques dans des conditions plus proches des applications industrielles agroalimentaires.

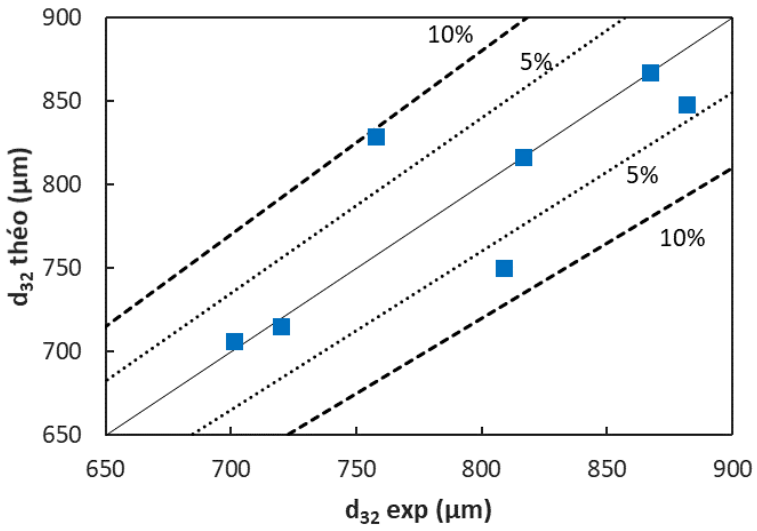


Figure 137. Diamètre de Sauter théorique, calculé avec le modèle obtenu par analyse dimensionnelle, en fonction du diamètre de Sauter expérimental pour les bulles dans le canal de mélange (zone M1) en utilisant les dispositifs CX600 et CX-E-600 et la solution WPI3XG04 pour les couples des conditions Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, Q_{vL} = 13,7 L.h^{-1}-Q_{mG} = 26,5 g.h^{-1}, Q_{vL} = 16,4 L.h^{-1}-Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1}, Q_{vL} = 19 L.h^{-1}-Q_{mG} = 36,4 g.h^{-1}.

3.4.3 Fréquence de bullage, vitesse des bulles et temps de séjour

D'autres caractéristiques des bulles formées avec le dispositif CX-E-600 ont été évaluées et comparées avec celles du dispositif de base CX600. En particulier, nous avons évalué la fréquence de bullage, la vitesse des bulles ainsi que leurs temps de séjour dans le procédé. La figure 138 présente la fréquence de production des bulles pour les dispositifs CX-E-600 (triangles) et CX600 (carrés). Dans le cas de CX-E-600 seulement trois points correspondants aux débits liquides sont superposés sur la figure du fait de pressions trop importantes dans ce dispositif ; il n'a pas été possible de monter plus en débit liquide. On constate que pour le débit plus faible de 11 $L.h^{-1}$, les fréquences sont similaires. Cependant, avec l'augmentation du débit, la fréquence de bullage devient beaucoup plus élevée pour le dispositif avec l'élargissement ($f \; \alpha \; Q_L^{3,2}$). A un débit de 16,4 $L.h^{-1}$ les différences sont flagrantes et le dispositif CX-E-600 double même la fréquence de bullage du CX600. Même si ces fréquences supérieures avec le CX-E-600 restent intéressantes pour le rendement d'un procédé de foisonnement, elles impliquent aussi un apport plus important d'énergie (chutes de pression plus importantes).

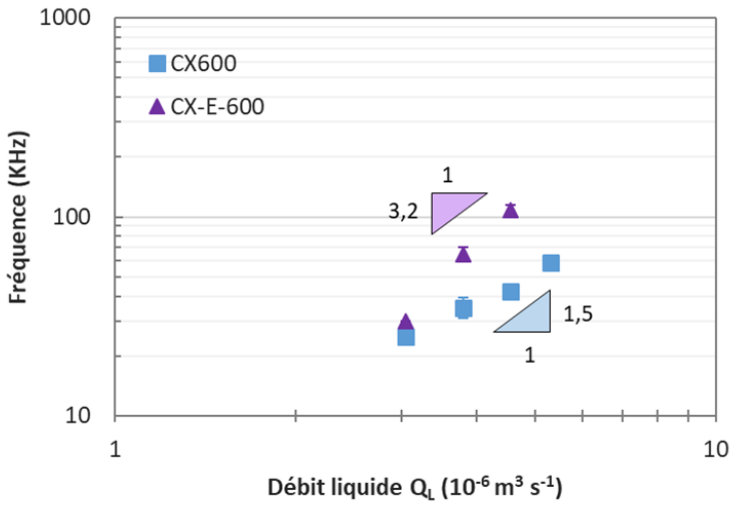


Figure 138. Fréquence de bullage à débits liquides 11, 13,7 et 16,4 $L.h^{-1}$ pour CX-E-600 et 11, 13,7, 16,4 et 19 $L.h^{-1}$ pour CX600 en utilisant la solution WPI3XG04.

La figure 139 présente des profils de vitesses pour des bulles traversant une région à 3 mm de la jonction des fluides et une autre à 10 mm dans le canal de mélange (zone M1) du dispositif CX-E-600. Une comparaison avec les vitesses pour le dispositif CX600 présentées dans la figure 103 permet de constater que les bulles voyagent deux fois plus vite dans la zone M1 du dispositif avec un élargissement. La figure 140 montre l'évolution de la vitesse

moyenne des bulles (figure 140b) et la vitesse relative, U_L - U_G (figure 140c), dans l'ensemble de l'installation pour CX600 et CX-E-600 à deux conditions de débits. Puisque dans la zone 3 (Z3) le tuyau avait une dimension trop importante (1cm de diamètre), empêchant la visualisation des bulles superposées, la vitesse des bulles n'a pas pu être évaluée par analyse d'image. Dans cette zone nous avons décidé d'approximer la vitesse des bulles avec la vitesse superficielle de la mousse $U_M = U_L + U_G$ car les résultats estimés pour le temps de séjour des bulles dans cette zone en utilisant *Um* étaient plus en adéquation avec la réalité des temps caractéristiques remarqués lors de l'expérimentation.

Il est évident que pour un même débit, les vitesses des bulles (figure 140b) pour le dispositif CX-E-600 au niveau du canal de mélange (M) sont plus importantes. La vitesse des bulles va se stabiliser dans la zone Z2 et elle aura en fait la même valeur pour les deux dispositifs à un même débit dans la partie finale du procédé. Dans la figure 140c, on observe que les vitesses relatives au niveau du canal de mélange sont elles aussi beaucoup plus élevées pour le dispositif CX-E-600 que pour CX600. Cela se traduit par des déformations des interfaces plus importantes pour les bulles dans la zone M pour CX-E-600 contre CX600. En effet, la figure 140d montre une circularité en général plus faible pour CX-E-600, et donc un allongement des bulles plus important, pour les bulles dans la zone M du dispositif CX-E-600 à débit liquide de 11 $L.h^{-1}$. Les vitesses des bulles pour les dispositifs CX600 et CX-E-600 à débits liquides 3 et 11 $L.h^{-1}$ sont réunies dans le tableau 12. De façon similaire, les tableaux 13 et 14 réunissent les estimations des vitesses superficielles dans l'ensemble de l'installation lors de l'utilisation des dispositifs CX600 et CX-E-600 à plusieurs débits liquides.

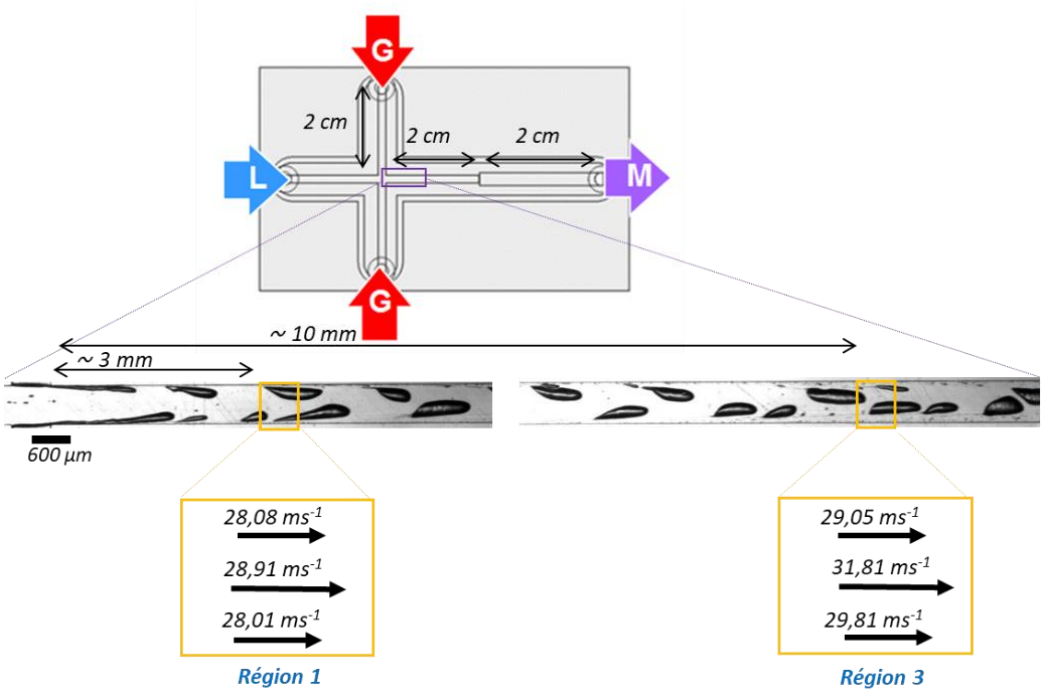


Figure 139. Profil de vitesse des bulles dans le canal de mélange à 3 et 10 mm de la jonction des fluides pour le dispositif CX-E-600 à pour la condition Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} en utilisant la solution WPI3XG04. Fréquence d'acquisition d'images 40000 Hz.

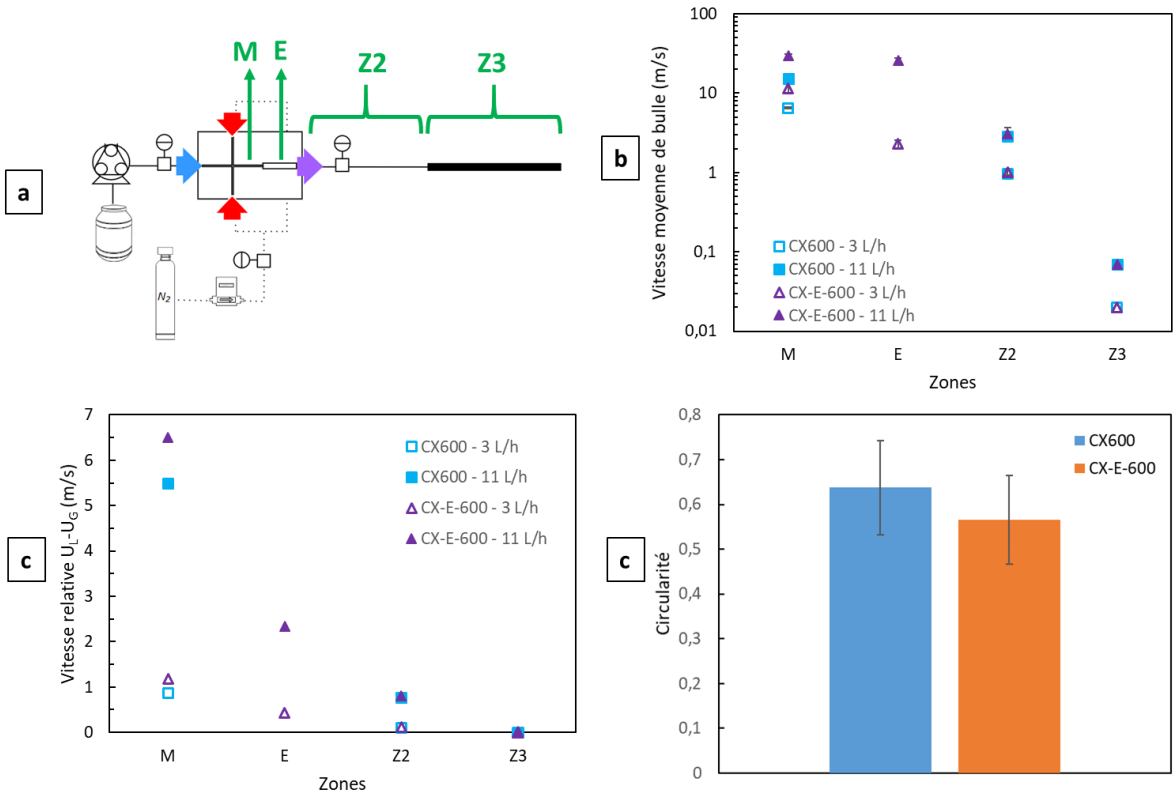


Figure 140. a) schéma de l'installation et identification des zones de l'installation **b)** Vitesses moyennes des bulles dans l'installation pour les dispositifs CX600 et CX-E-600 pour les conditions Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} et Q_{vL} = 3 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1} **c)** Vitesses relatives dans l'installation pour les dispositifs CX600 et CX-E-600 pour les conditions Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} et Q_{vL} = 3 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1} **d)** circularité des bulles dans le canal de mélange pour les dispositifs CX600 et CX-E-600 pour Q_{vL}= 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}.

Tableau 12 Vitesses moyennes des bulles dans l'installation pour les dispositifs CX600 et CX-E-600 pour les conditions Q_{vL}=11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} et Q_{vL}=3 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1}. Solution employée : WPI3XG04

Dispositif	Q_{vL}	$V_{bulle-M}$	$V_{bulle-E}$	$V_{bulle-Z2}$	$V_{bulle-Z3}$
(L h^{-1})	*(L h^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*
CX600	3	6,48	x	0,96	0,020
CX600	11	15,22	x	2,89	0,070
CX-E-600	3	11,37	2,31	1,00	0,020
CX-E-600	11	29,28	25,71	3,06	0,070

Tableau 13 Vitesses relatives dans l'installation pour le dispositif microfluidique CX600 à plusieurs conditions de débits

		Canal mélange (M)			*Zone 2 (Z2)*		*Zone 3 (Z3)*	
Q_{vL}	Q_{mG}	p_{inj}	U_G	U_L	U_G	U_L	U_G	U_L
(L h^{-1})	*(g h^{-1})*	*(bar)*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*
3,0	5	1,53	1,31	2,17	0,30	0,40	0,010	0,010
6,9	13	2,7	2,33	5,32	0,59	0,98	0,021	0,024
11,0	21,6	3,83	2,97	8,46	0,80	1,56	0,029	0,039
13,7	26,5	4,65	3,12	10,56	0,88	1,95	0,032	0,048
16,4	31	5,52	3,16	12,66	0,91	2,34	0,033	0,058
19,1	36,4	6,45	3,25	14,75	0,98	2,73	0,036	0,068

Tableau 14 Vitesses relatives dans l'installation pour le dispositif microfluidique CX-E-600 à plusieurs conditions de débits

		Canal mélange (M)			*Elargissement*		*Zone 2*		*Zone 3*	
Q_{VL}	Q_{mG}	p_{inj}	U_G	U_L	U_G	U_L	U_G	U_L	U_G	U_L
(L h^{-1})	*(g h^{-1})*	*(bar)*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*
3,0	5	2,32	0,99	2,17	0,36	0,78	0,28	0,40	0,09	0,010
6,9	12	4,18	1,53	5,32	0,55	1,91	0,52	0,98	0,018	0,024
11,0	21,6	6,32	1,95	8,46	0,70	3,05	0,75	1,56	0,026	0,039
13,7	23	7,49	1,79	10,56	0,64	3,80	0,70	1,95	0,024	0,048
16,4	31	9,16	2,02	12,66	0,73	4,56	0,82	2,34	0,028	0,058

Finalement, du fait des vitesses différentes au niveau du canal de mélange, on constate que le temps de séjour des bulles dans les microcanaux est différent pour les dispositifs CX600 et CX-E-600. La figure 141 présente le temps de séjour des bulles dans toute l'installation lors de l'utilisation de ces deux dispositifs à deux débits liquides. Ce sont des temps de séjour estimés par zone et non des valeurs cumulées. Ces résultats sont aussi répertoriés dans le tableau 15. Aux hauts débits utilisés, les temps de séjour des bulles dans le

canal de mélange sont extrêmement courts et ils se trouvent dans la gamme 0,5 à 3 ms pour des débits compris entre 3 et 11 $L.h^{-1}$; débits qui restent les plus faibles de ceux utilisés dans ces travaux. Il est donc attendu qu'à ces courtes échelles du temps, avec des taux de cisaillement élevés de l'ordre de 10^5 s^{-1}, des phénomènes particuliers d'insaturation et de déformation d'interfaces se manifestent comme le tip streaming amplement discuté dans la deuxième partie des résultats.

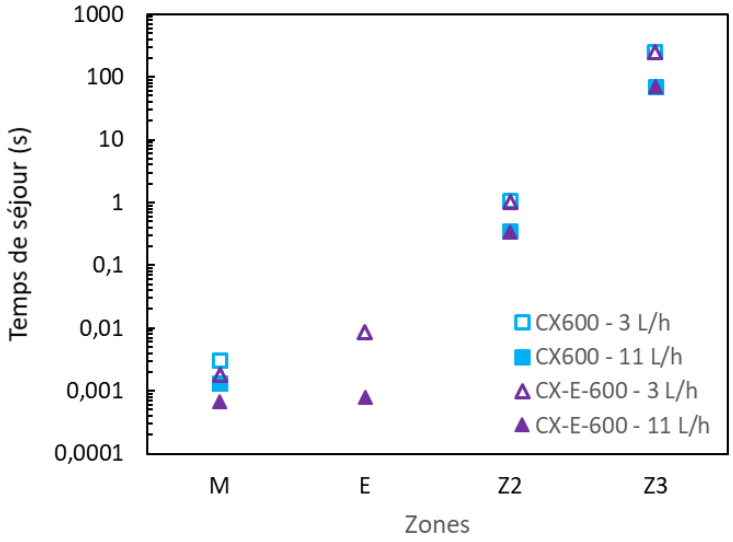


Figure 141. Temps de séjour des bulles dans l'installation pour les dispositifs CX600 et CX-E-600 pour les conditions Q_{vL}=11 $L.h^{-1}$-Q_{mG} = 21,6 $g.h^{-1}$ et Q_{vL}=3 $L.h^{-1}$-Q_{mG} = 5 $g.h^{-1}$ et en utilisant la solution WPI3XG04. Temps de séjour estimés par zone et non des valeurs cumulées.

Tableau 15. Temps de séjour ($t_{séj}$) des bulles dans le procédé pour les dispositifs CX600 et CX-E-600 pour les conditions Q_{vL}=11 $L.h^{-1}$-Q_{mG} = 21,6 $g.h^{-1}$ et Q_{vL}=3 $L.h^{-1}$-Q_{mG} = 5 $g.h^{-1}$. Solution employée : WPI3XG04. Temps de séjour estimés par zone et non des valeurs cumulées

Dispositif	Q_{vL}	$T_{séj-M}$	$T_{séj-E}$	$T_{séj-Z2}$	$T_{séj-Z3}$
(L h^{-1})	*(L h^{-1})*	*(s)*	*(s)*	*(s)*	*(s)*
CX600	3	3,09E-03	x	1,05	250
CX600	11	1,32E-03	x	0,35	71
CX-E-600	3	1,78E-03	8,75E-03	1,00	250
CX-E-600	11	6,84E-04	7,81E-04	0,34	71

3.5 Caractérisation de la mousse en sortie.

Les différences importantes entre un dispositif avec un élargissement (CX-E-600) et un autre sans cette singularité (CX600) ont motivé une étude complémentaire d'évaluation des propriétés du produit final. D'abord on présentera une comparaison des propriétés des

mousses dans le cas d'une production avec CX-E-600 et CX600 à un débit liquide fixé à 11 $L.h^{-1}$. Par la suite, on abordera également l'effet d'un changement de débit lors de l'utilisation du dispositif avec élargissement. Enfin, on évaluera l'effet d'un changement de la concentration de l'agent stabilisant, la gomme xanthane (XG) sur les caractéristiques de la mousse en sortie.

3.5.1 Effet dispositif

Les visualisations de l'écoulement diphasique à l'intérieur des microsystèmes, ont permis de constater une intensification du fractionnement des interfaces gaz-liquides lors du passage de bulles par un élargissement. Maintenant, on s'intéresse à l'effet que ceci aurait sur le produit en sortie de la ligne. A cet égard, les mousses produites avec les dispositifs CX-E-600 et CX600 sont caractérisées et comparées. Pour ces expériences, la solution WPI3XG04 a été injectée à un débit liquide de 11 $L.h^{-1}$ et les mousses produites ont immédiatement été caractérisées.

La figure 142 présente une compilation des différentes caractérisations effectuées. D'abord, dans la figure 142a les courbes pour la granulométrie dans le canal (lignes solides) et dans les mousses (lignes pointillées) sont superposées. On constate que malgré leur distribution similaire dans le canal de mélange (zone M1), les courbes de granulométrie pour CX600 (carrés) et CX-E-600 (triangles) sont très différentes en sortie. En effet, la présence d'un élargissement a conduit à un fractionnement intensifié des bulles et donc à un décalage vers des tailles plus petites de la granulométrie en sortie pour le dispositif CX-E-600. Une évaluation de la viscosité des mousses (figure 142b) n'a cependant pas révélé de différences de propriétés en écoulement. Cependant, une analyse des modules mécaniques (figure 142c) a clairement montré un comportement élastique plus important pour les mousses CX-E-600 et donc l'obtention des mousses plus fermes dans le cas du dispositif avec élargissement. Ceci est en lien avec le fait d'avoir trouvé des tailles de bulles plus petites pour la mousse élaborée avec ce dispositif.

Finalement, une analyse de la stabilité des mousses produites a été menée (figure 142d). Le fait de ne pas avoir utilisé un agent conservateur dans l'élaboration de nos mousses rendait cette caractérisation complexe car il existait un risque d'altération biologique du produit (en raison de la présence des protéines) en parallèle de la dénaturation de la structure de la mousse. Globalement, on a identifié une stabilité améliorée pour les mousses

produites avec CX-E-600 ce qui serait lié au fait d'avoir une population de bulles plus petites qui vont retarder la déstabilisation de la structure.

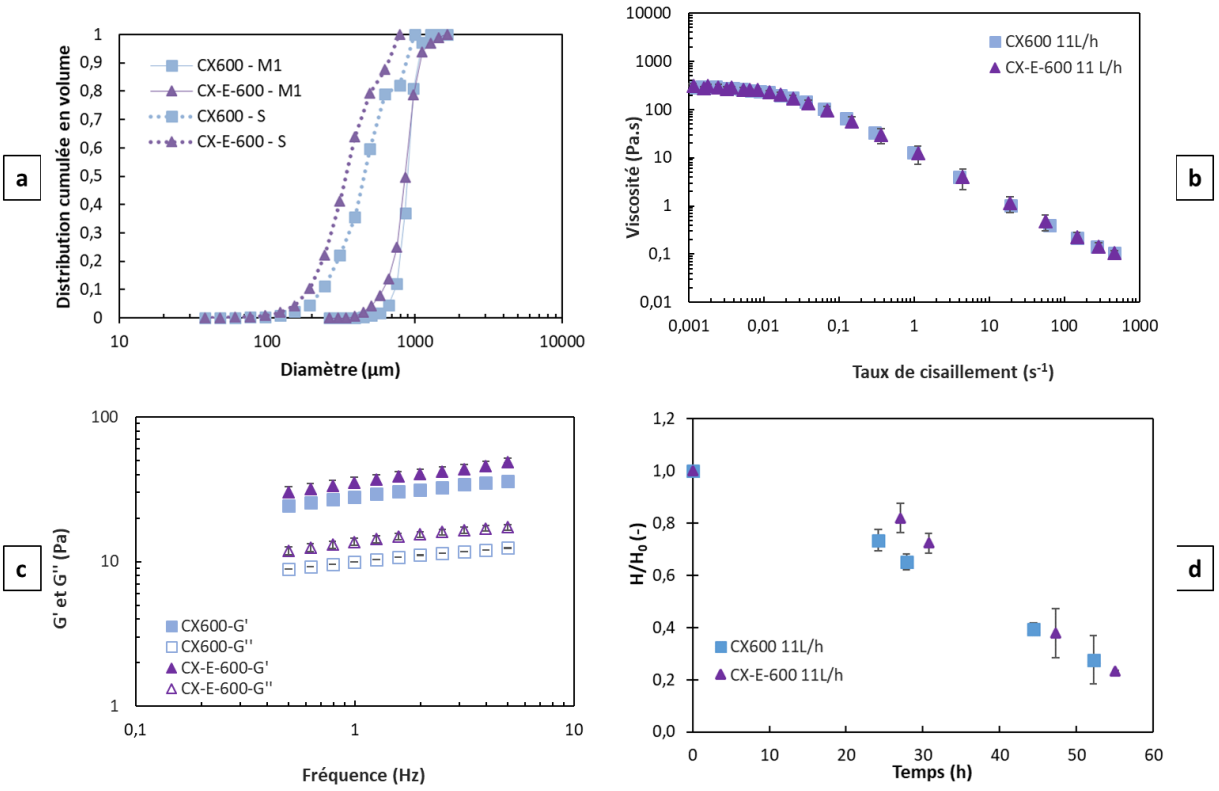


Figure 142. Caractérisation de mousses produites avec les dispositifs CX600 et CX-E-600 en utilisant la solution WPI3XG04 à Q_{vL}= 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. **a)** Granulométrie dans la zone M1 et en sortie S. **b)** Tests d'écoulement pour détermination de la viscosité effectués avec géométrie plan-plan striée à 20° en contrainte imposée. **c)** détermination des modules élastiques *G'* et modules visqueux *G''* effectuée à 20°C. **d)** Stabilité des mousses.

Le dispositif CX-E-600 est donc capable de créer des bulles ayant des diamètres plus faibles. Cependant, d'un point de vue énergétique il faudrait encore travailler sur l'optimisation de ces dispositifs. Afin de comparer les besoins énergétiques, des mesures de la surface spécifique créée (équation 58) en fonction de l'énergie spécifique (équation 59), exprimée en J.kg^{-1}, sont proposées. La figure 143 montre les points correspondant au CX600 (carrés) ainsi que ceux de CX-E-600 (triangles). On constate en effet que la surface spécifique créée avec le dispositif CX-E-600 est plus importante ce qui veut dire une proportion de petites bulles plus élevée. Cependant, cette augmentation de la surface spécifique va être accompagnée d'un apport d'énergie plus grand par rapport à CX600.

$$S_{sp} = \frac{6\alpha}{d_{32}} \quad (58)$$

$$E_{sp} = \frac{\Delta P}{\rho_m} \quad (59)$$

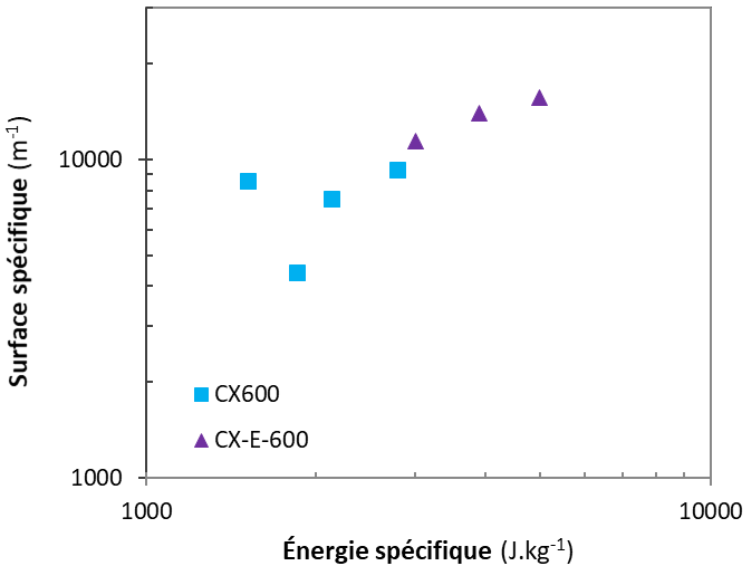


Figure 143. Comparaison de la surface spécifique créée en fonction de l'énergie nécessaire pour les mousses produites avec les dispositifs CX600 et CX-E-600 en utilisant la solution WPI3XG04. Débits liquides employés : 11, 13,7, 16,4 et 19 L.h^{-1} pour CX600 et 11, 13,7, 16,4 L.h^{-1} pour CX-E-600.

3.5.2 Effet du débit

L'effet de l'augmentation du débit liquide sur les propriétés finales des mousses produites avec le dispositif CX-E-600, en utilisant la solution WPI3XG04, est présenté dans la figure 144. De manière générale, on constate qu'une augmentation du débit contribue à un fractionnement plus important qui se révèle dans des courbes granulométriques décalées vers des plus petites tailles (figure 144a) comme présenté aussi pour le dispositif CX600 dans le paragraphe 2.6 de la deuxième partie des résultats. En ce qui concerne les caractérisations rhéologiques, des différences importantes ont été remarquées aussi bien en termes de viscosité que de modules mécaniques. La figure 144b présente les tests d'écoulement pour les mousses élaborées avec les trois débits liquides étudiés. Des valeurs de viscosité au repos (premier plateau newtonien) plus élevées sont remarquées pour les forts débits. De façon similaire, des réseaux plus structurés sont obtenus pour les mousses produites avec le plus fort débit (figure 144c). Enfin, les résultats de stabilité des mousses (figure 144d) concordaient avec les caractérisations précédentes, c'est-à-dire, les réseaux plus structurés

développés par les plus hauts débits ont donné des stabilités supérieures. On a aussi constaté des stabilités quasiment similaires pour les débits 16,4 et 13,7 L.h^{-1} ce qui coïncide avec leurs distributions granulométriques quasiment superposées.

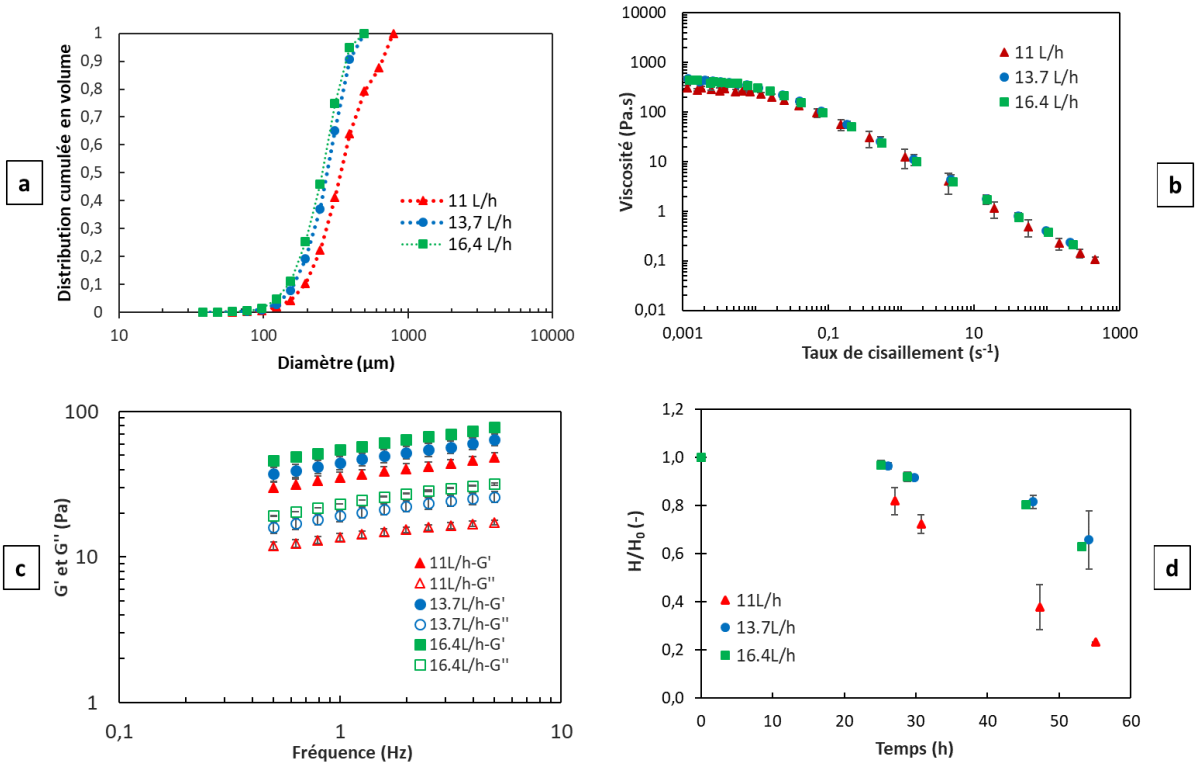


Figure 144. Caractérisation des mousses produites avec le dispositif CX-E-600 en utilisant la solution WPI3XG04 pour les couples des conditions Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, Q_{vL} = 13,7 L.h^{-1}-Q_{mG} = 23 g.h^{-1} et Q_{vL} = 16,4 L.h^{-1}-Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1}. **a)** Granulométrie en sortie. **b)** Tests d'écoulement pour détermination de la viscosité effectuées avec géométrie plan-plan striée à 20° en contrainte imposée. **c)** détermination des modules élastiques G' et modules visqueux G'' effectué à 20°C. **d)** Stabilité des mousses.

3.5.3 Effet de la concentration en xanthane

Les effets d'un changement de la concentration de l'agent épaississant sur les mousses en sortie sont aussi évalués et présentés dans la figure 145. La figure 145a présente la granulométrie en sortie pour deux solutions, l'une contenant les WPI à 3% et la gomme xanthane à 0,2% en masse (WPI3XG02 symbolisée avec des cercles dans la figure 145a) et la deuxième solution comportant la même concentration de WPI et le xanthane à 0,4% (WPI3XG04 symbolisée avec des triangles dans la figure 145a). Par ailleurs, deux conditions de débits sont présentées pour cette première figure, 11 L.h^{-1} (marqueurs vides) et 16,4 L.h^{-1} (marqueurs pleins). Pour le plus faible débit on constate un décalage vers des bulles plus petites pour le cas de la solution ayant une concentration plus faible. L'écart entre les deux solutions devient encore plus évident dès qu'un débit plus fort est utilisé. La production de bulles plus petites dans le cas d'une solution moins concentrée en xanthane est liée à des

forces inertielles plus importantes compte tenue d'une viscosité apparente plus faible. Malgré la présence de bulles plus petites, la mousse produite avec la solution WPI3XG02 a présenté une viscosité au repos plus faible (figure 145b). En effet, la teneur en xanthane joue un rôle crucial de stabilisant de la mousse au repos. La figure 145c permet de constater une dépendance plus marquée des modules mécaniques avec la fréquence pour la solution WPI3XG02 montrant que les mousses élaborées à partir de cette solution ont des propriétés élastiques plus faibles (Rao, 2007). Enfin, les mousses élaborées à partir WPI3XG04, bien qu'ayant des bulles plus grosses, présentent une stabilité très supérieure (figure 145d) en raison de la viscosité de la phase continue plus élevée qui piège les bulles, ralentissant les mécanismes de déstabilisation par murissement d'Ostwald.

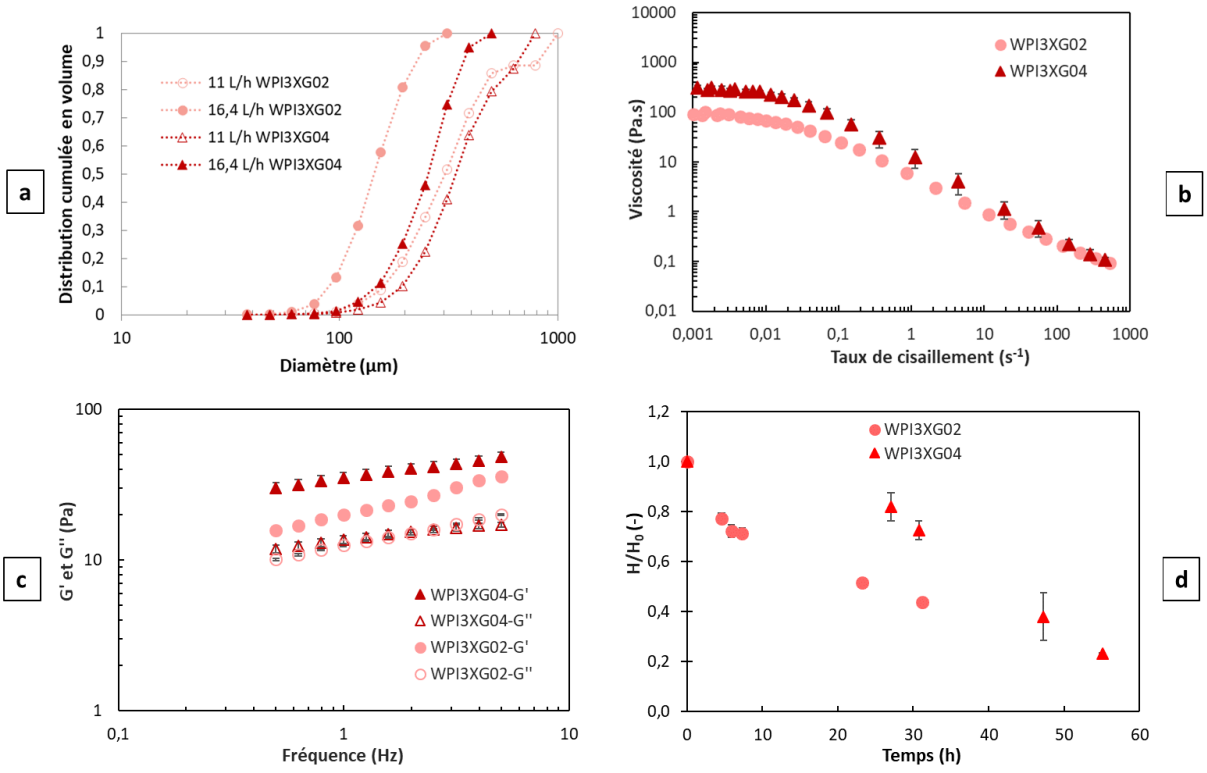


Figure 145. Caractérisation des mousses produites avec le dispositif CX-E-600 en utilisant les solutions WPI3XG04 (triangles) et WPI3XG02 (cercles). **a)** Granulométrie en sortie pour les couples des conditions Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} (marqueurs vides), Q_{vL} = 13,7 L.h^{-1}-Q_{mG} = 23 g.h^{-1} (marqueurs pleins) **b)** Tests d'écoulement pour détermination de la viscosité effectuées avec géométrie plan-plan striée à 20° en contrainte imposée pour Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. **c)** Détermination des modules élastiques G' et modules visqueux G'' effectué à 20°C pour Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. **d)** stabilité des mousses pour Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}.

3.6 Conclusion

L'analyse des images de l'écoulement diphasique à travers les singularités géométriques proposées a permis de démontrer la déformation et le fractionnement des interfaces lorsque le train de bulles rencontre ces transitions géométriques. En particulier, on a pu constater que lorsque les bulles rencontrent une géométrie couplant un coude et un élargissement (CX-C-600), il existe une rupture de l'interface dans le premier coude seulement à partir de débits suffisamment élevés de l'ordre de 11 $L.h^{-1}$. En revanche, dans le dispositif CX-E-600, présentant un élargissement mais sans coude, l'établissement d'écoulements secondaires (tourbillons et refoulements) a permis l'instauration des écoulements élongationnels qui ont favorisé le fractionnement des bulles, même à des faibles débits de l'ordre de 3 $L.h^{-1}$. Quant au canal sinusoïdal, aucun fractionnement n'y été remarqué malgré les fortes déformations qui ont été visualisées. Ces résultats couplés aux travaux menés par d'autres auteurs sur des géométries similaires avec des dimensions moins importantes, donnent des pistes intéressantes à approfondir. Il pourrait s'avérer qu'en rallongeant le canal sinusoïdal, en modifiant légèrement son diamètre hydraulique ou en jouant sur la formulation on arrive à provoquer un fractionnement des interfaces.

Les comparaisons menées entre le dispositif de référence CX600 et le dispositif avec un élargissement CX-E-600 ont aussi conduit à des phénomènes remarquables. En général, la forme ainsi que la taille des bulles dans le canal de mélange étaient similaires pour les deux dispositifs avec une polydispersité légèrement supérieure pour le dispositif CX-E-600. Les pressions d'injection plus élevées pour le dispositif CX-E-600 ont entraîné des vitesses de bulles dans le canal de mélange deux fois plus importantes que celles concernant les bulles dans le cas du dispositif CX600. De même, la fréquence de bullage pour les plus forts débits liquides dans le cas du dispositif CX-E-600 était jusqu'à plus de trois fois égale à celle de CX600 pour le même débit. En plus de ces différences au niveau du canal de mélange, cette troisième partie a permis de mettre en évidence que l'incorporation d'une singularité géométrique impacte fortement les propriétés texturales et de stabilité des mousses en sortie. En effet, ce fractionnement intensifié, développé dans l'élargissement, a conduit à des mousses ayant une fermeté et une stabilité supérieure.

4 Quatrième partie : Effet de la formulation sur le fractionnement dans un dispositif microfluidique en croix avec ou sans élargissement

4.1 Introduction

Dans cette partie de l'étude, on s'attache à identifier de manière plus approfondie, les effets respectifs des ingrédients biosourcés utilisés : le xanthane et les protéines sériques. Ainsi d'autres bases liquides vont être sélectionnées pour mieux découpler les effets des ingrédients. Ces bases liquides seront foisonnées avec l'azote gazeux à l'intérieur du dispositif CX600 et l'écoulement diphasique sera visualisé et analysé pour une seule condition d'écoulement correspondant à un débit volumique du liquide égal à 11 $L.h^{-1}$ et un débit massique du gaz égal à 21,6 $g.h^{-1}$, soit pour une fraction de vide du produit final égale à 0,57. Le lecteur pourra trouver, en outre, en annexe D des photos complémentaires de l'écoulement diphasique pour toutes les solutions testées, et ce à plusieurs conditions de débits dans le canal de mélange du dispositif CX600.

Dans un premier temps, les solutions aqueuses étudiées de manière complémentaire dans cette partie du travail sont respectivement une solution contenant uniquement la gomme xanthane à 0,4% en masse (XG04), une solution à base seulement d'isolats de protéines sériques à 3% en masse (WPI3), une solution de glycérol à 50% en masse. Ces solutions ont été choisies afin de permettre, après comparaison avec les typologies d'écoulement observées précédemment avec nos solutions modèles à base de WPI + XG (WPI3XG04 et WPI3XG02), d'identifier le rôle respectif des différentes biomolécules présentes dans nos formulations. Dans un deuxième temps, les effets du changement de la force ionique dans nos solutions modèles (par ajout de NaCl) ainsi que du remplacement des protéines globulaires (WPI) par des protéines à structure plus ouverte (caséinates de sodium) seront analysés. En parallèle, des visualisations de l'écoulement diphasique dans l'élargissement du dispositif CX-E-600 viendront compléter les discussions. Ces visualisations sont en revanche effectuées en utilisant un débit liquide plus faible de 3 $L.h^{-1}$ afin d'identifier des comportements individuels des bulles comme expliqué dans la partie précédente. L'intégralité des tableaux présentés ici ainsi que d'autres tableaux complémentaires liés à cette quatrième partie peuvent être retrouvés dans l'annexe C.

4.2 Rôle des protéines sériques dans la typologie du train de bulles à l'intérieur d'un dispositif microfluidique

Afin de mettre en évidence plus finement le rôle qu'ont les isolats de protéines sériques dans nos solutions modèles, une comparaison de l'écoulement diphasique à l'intérieur du dispositif CX600 est proposée dans la figure 146a. Le comportement de la solution modèle à 3% d'isolats de protéines sériques et 0,4% de gomme xanthane (WPI3XG04) est comparé avec celui d'une solution contenant seulement le xanthane à la même concentration de 0,4% (XG04). A titre comparatif, l'écoulement d'un fluide newtonien consistant en une solution de glycérol à 50% en masse et ayant une viscosité égale à 6 fois celle de l'eau, est également étudié. Parallèlement, la figure 147 présente des séries de 4 images successives dans le canal de mélange pour ces trois solutions. Des artéfacts permettant de se repérer entre une photo et la suivante ont été signalés dans la mesure du possible par une flèche jaune.

Les bulles formées dans la solution XG04 conservent cette forme caractéristique en larme déjà remarquée dans les parties 2 et 3 des résultats pour les bulles formées au sein de WPI3XG04. Cependant, une analyse plus attentive permet de constater également que les bulles formées dans XG04 ne développent pas de filaments gazeux à l'arrière de la bulle et que le mécanisme de tip streaming semble être complétement absent pour ces bulles malgré les forts cisaillements mis en jeu dans nos conditions expérimentales. Ceci confirme le propos de Anna (2016), De Bruijn (1989 et 1993) et Jain (2017) sur le fait que la présence de molécules tensioactives est une des conditions nécessaires au développement du phénomène de tip streaming et d'autre part sur l'importance de la mise en jeu de gradients interfaciaux élevés sur l'établissement de ce mécanisme.

La solution de glycérol ayant une viscosité plus élevée dans le procédé conduit à la formation de bulles plus grosses. Leur formation doit vaincre les forces de viscosité (tableau 16) de la phase continue, le nombre de Reynolds est en est effet plus faible et le nombre capillaire plus élevé ; ce qui conduit à une incorporation de gaz à la matrice liquide plus contrôlée et se rapprochant d'un régime de formation squeezing où les bulles occupent la totalité du canal. Les bulles de glycérol s'organisent aussi de manière très différente favorisant plutôt un positionnement directement sur le centre du canal contrairement aux configurations en forme d'épi remarquées pour les solutions non-newtoniennes. La déformation des bulles dans l'écoulement donne des formes d'obus, avec une asymétrie à

l'extrémité en aval de la bulle, à l'opposé des formes de larmes visualisées pour les solutions à base de xanthane. Dans la figure 147 on observe également que les bulles de glycérol commencent à présenter des torsions sous les forts cisaillements dans le canal. Ces torsions peuvent éventuellement conduire à la dislocation des bulles plus loin dans le canal de mélange.

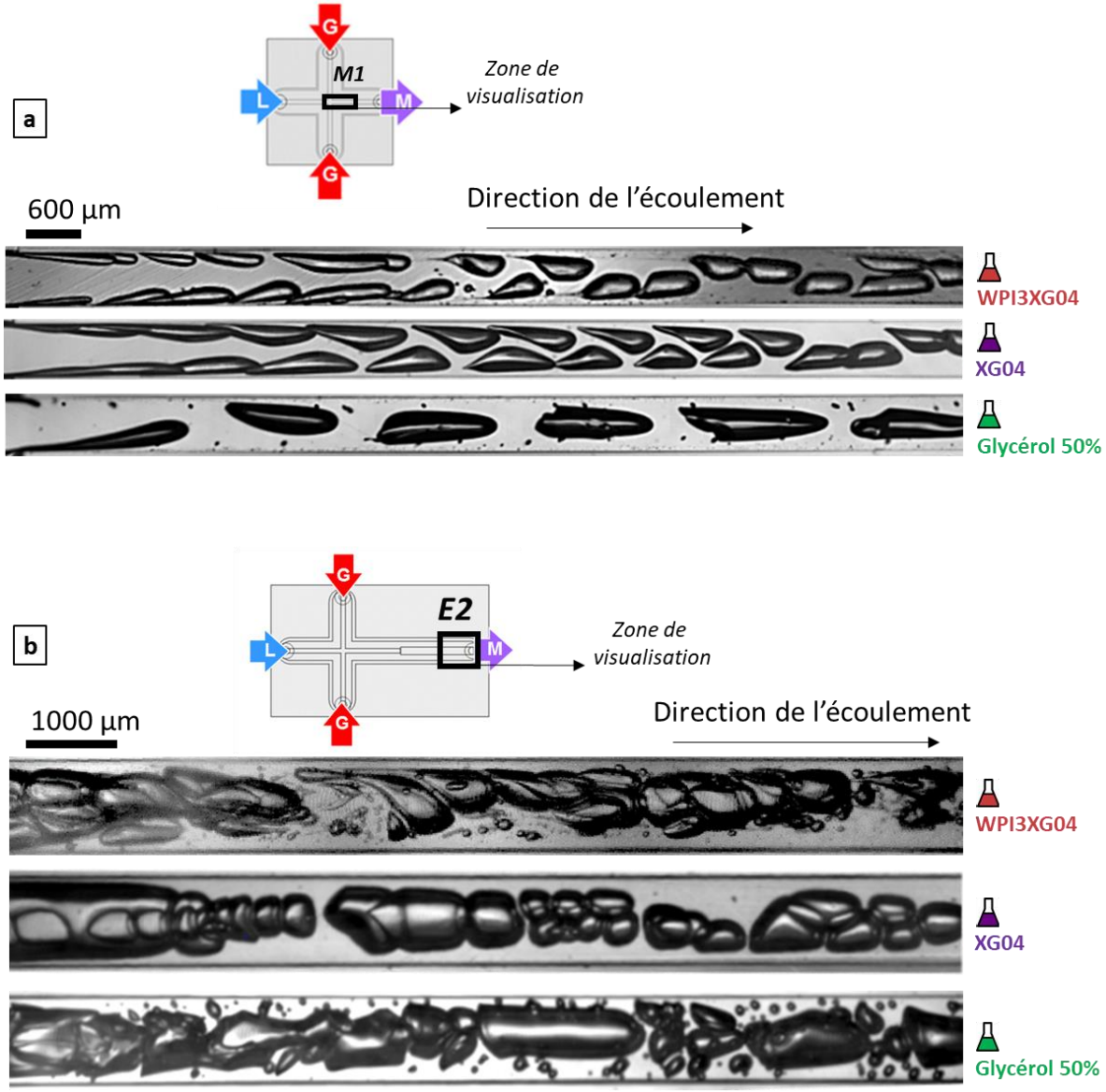


Figure 146. a) visualisation du train de bulles dans le **canal de mélange (zone M1) du dispositif CX600** pour $\boldsymbol{Q_{vL}}$ **= 11 L.h^{-1}-**Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} pour les solutions **WPI3XG04** (P_{inj} = 3,83 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1}), **XG04** (P_{inj} = 3,53 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 3,21 m.s^{-1}) et **glycérol à 50%** en masse (P_{inj} = 4,60 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,60 m.s^{-1}) **b)** visualisation du train de bulles dans **l'élargissement (zone E2) du dispositif CX-E-600** pour $\boldsymbol{Q_{vL}}$ **= 3 L.h^{-1}-**Q_{mG} = 5 g.h^{-1} pour les solutions **WPI3XG04** (P_{inj} = 2,32 bars, U_L = 0,78 m.s^{-1}, U_G = 0,36 m.s^{-1}), **XG04** (P_{inj} = 1,89 bars, U_L = 0,79 m.s^{-1}, U_G = 0,42 m.s^{-1}) et **glycérol à 50%** (P_{inj} = 2,45 bars, U_L = 0,82 m.s^{-1}, U_G = 0,35 m.s^{-1}). Dans les cas de l'élargissement, les pressions relatives d'injection (P_{inj}) correspondent aux pressions d'injections à l'entrée du dispositif. Les images ont été obtenues à des fréquences d'acquisition 5000 images par seconde.

Tableau 16. Propriétés hydrodynamiques de l'écoulement diphasique pour XG04, WPI3XG04 et glycérol dans le canal de mélange (M1) du dispositif CX600 à Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. Voir l'annexe C pour des tableaux élargis à plusieurs débits.

Solution	Q_{vL}	U_L	p_{inj}	Q_{vG}	U_G	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L	ΔP_1
-	L.h^{-1}	m.s^{-1}	bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	s^{-1}	Pa.s	-	-	-	bar
XG04	11,0	8,46	3,53	4,16	3,21	1,00E+05	2,14E-03	0,25	2379	598	1,58
WPI3XG04	11,0	8,46	3,83	3,85	2,97	1,00E+05	2,49E-03	0,46	1981	907	1,53
Glycérol 50%	11,0	8,46	4,60	3,37	2,60	1,00E+05	6,00E-03	0,75	950	709	2,25

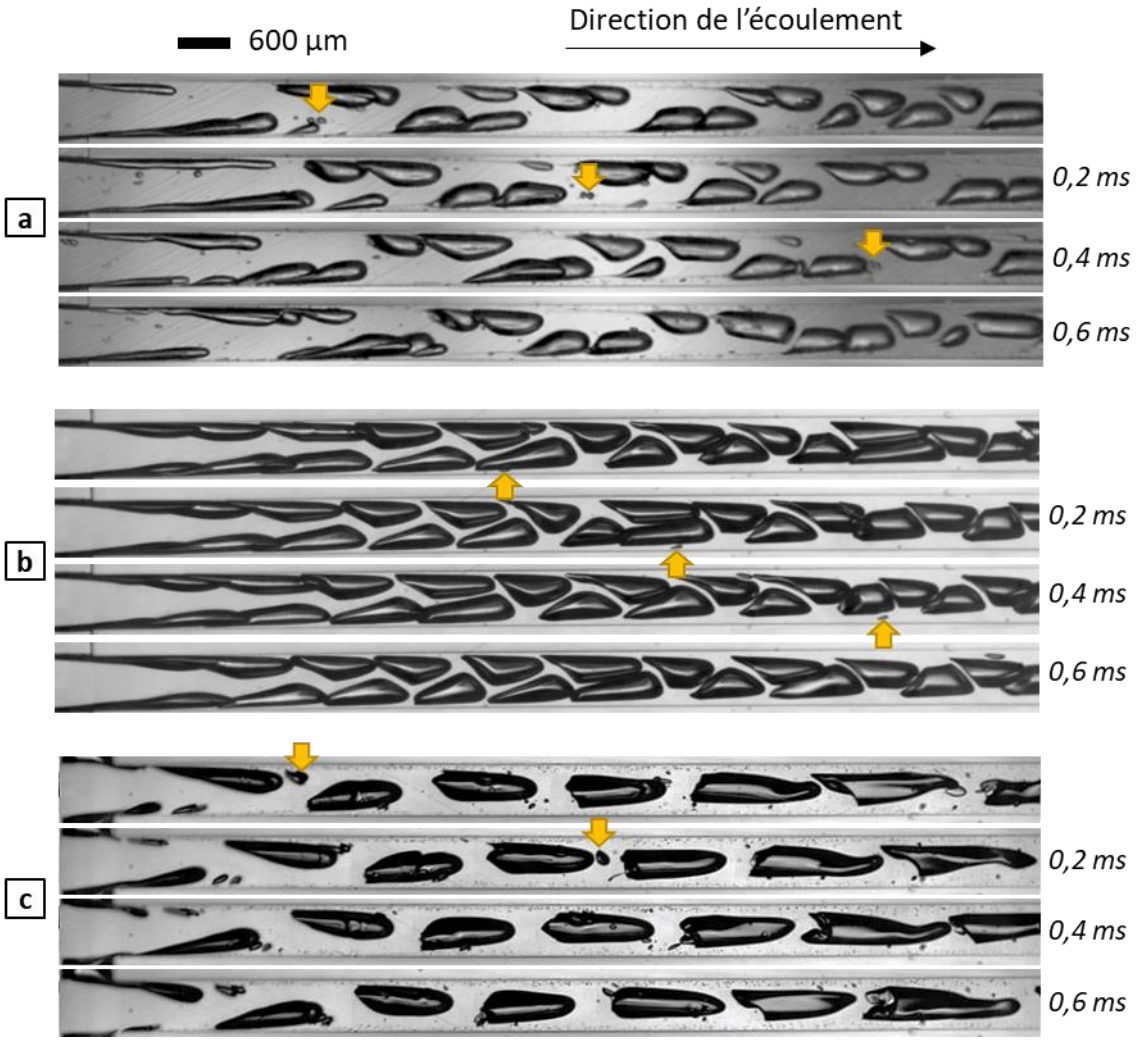


Figure 147. Séries d'images successives prises avec camera rapide pour l'écoulement diphasique dans le canal de mélange du **dispositif CX600, zone M1**. Débits utilisés : Q_{vL} **= 11 L.h^{-1}** et Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} **a) solution WPI3XG04**. P_{inj} = 3,83 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1} **b) solution XG04** P_{inj} = 3,53 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 3,21 m.s^{-1} **c) solution Glycérol 50%** P_{inj} = 4,60 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,60 m.s^{-1}. Pressions d'injection (P_{inj}) relatives. Fréquence d'acquisition de 5000 images par seconde et donc un temps entre deux photos (interframe) de 0,2 ms.

Les visualisations menées dans l'élargissement pour ces trois solutions (figure 146b) montrent que les nombres caractéristiques de l'écoulement par eux-mêmes ne suffisent pas pour prédire l'établissement de tel ou tel mécanisme de déformations des interfaces pour les solutions non-newtoniennes. En effet, quand on compare les solutions WPI3XG04 et XG04, on constate que si l'élargissement crée des écoulements secondaires dans les deux cas, seule la présence de molécules avec activité de surface conduira à des phénomènes d'étirement de l'interface gaz-liquide. Dans le cas du glycérol, des ruptures de bulles sont observées, mais les mécanismes seraient totalement différents de ceux caractéristiques des bulles traversant le fluide non-newtonien WPI3XG04 où des fortes élongations ont été remarquées.

La figure 148 présente des séries de 4 photos à des intervalles de 0,8 ms dans l'élargissement (région E2) pour les bulles traversant les solutions WPI3XG04, XG04 et glycérol 50%. Dans le cas du WPI3XG04 (figure 148a) on observe des bulles ayant des tailles très diverses et qui ne coalescent pas malgré la diminution de leur vitesse et leur rapprochement subséquent. Dans le cas de la solution XG04 (figure 148b) on observe déjà à ce niveau une coalescence importante malgré l'homogénéité remarquable de ces bulles lors de leur formation dans le canal de mélange. L'écoulement diphasique pour XG04 semble moins chaotique que celui du glycérol 50% (figure 148c) bien que les écoulements sont caractérisés par des nombres de Reynolds similaires (tableau 17). On peut en effet observer qu'avec la solution de glycérol des ridules se forment en surface des bulles sous l'effet des torsions que subissent ces dernières ; ce n'est pas le cas avec la solution XG04. Cela montre une fois de plus que les propriétés élastiques du xanthane se révèlent décisives, même à des viscosités apparentes très faibles, tendant vers celle du deuxième plateau newtonien.

Tableau 17 Propriétés hydrodynamiques de l'écoulement diphasique pour WPI3XG04, XG04 et glycérol 50% dans l'élargissement du dispositif CX-E-600 à Q_{vL} = 3 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1}.

Solution	Q_{vL}	U_L	Q_{vG}	U_G	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L
(-)	L.h^{-1}	m.s^{-1}	L.h^{-1}	m.s^{-1}	s^{-1}	Pa.s	-	-	-
XG04	3,0	0,80	1,508	0,42	5,66E+03	4,94E-03	0,05	162	9
WPI3XG04	3,0	0,78	12,873	0,36	5,55E+03	6,88E-03	0,12	110	13
Glycérol 50%	3,0	0,83	1,265	0,35	5,87E+03	6,00E-03	0,07	154	11

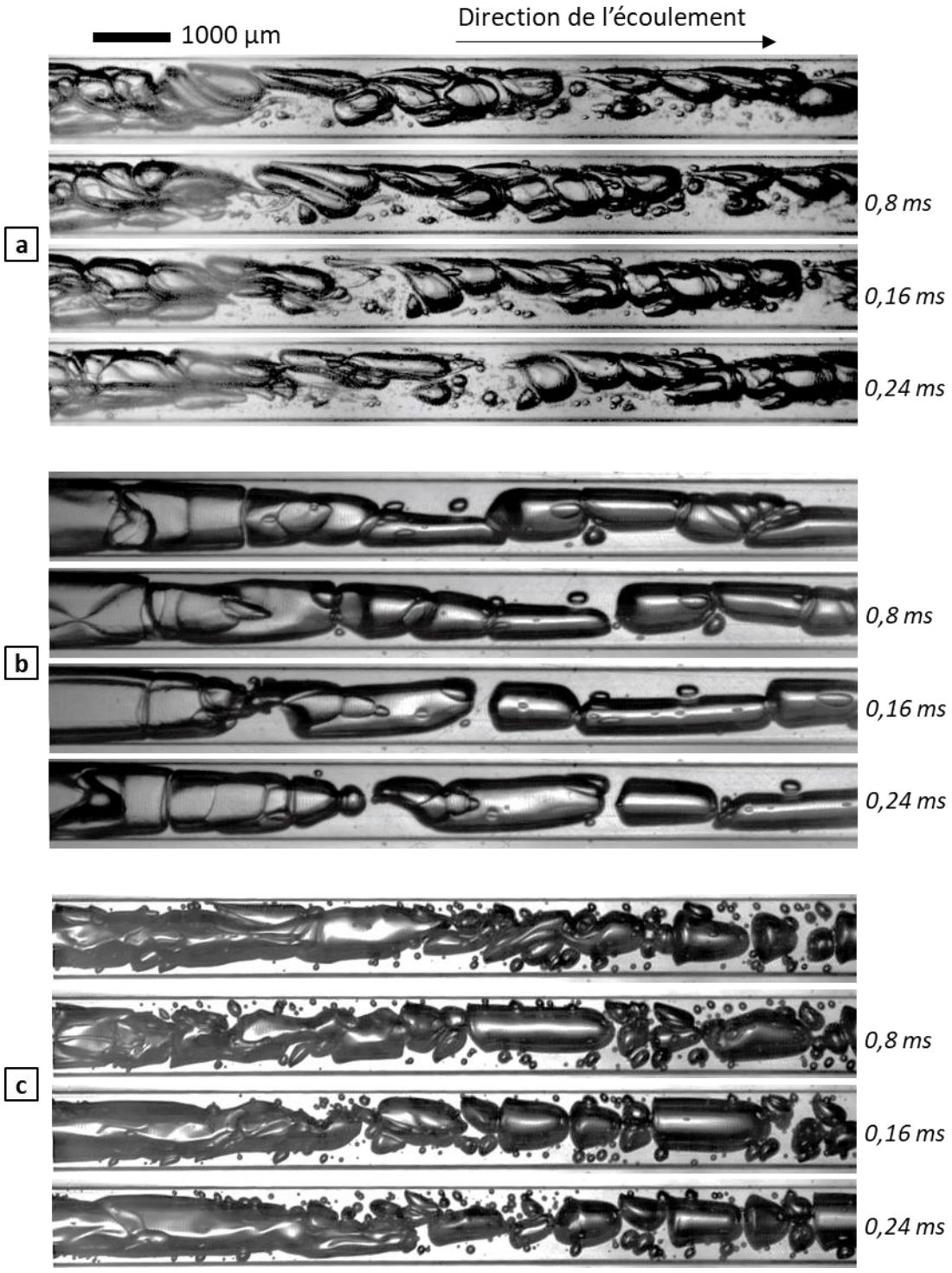


Figure 148. Séries d'images sélectionnées à intervalle de 0,8 ms des images prises avec camera rapide pour l'écoulement diphasique dans l'élargissement du **dispositif CX-E-600, zone E2**. Débits utilisés : Q_{vL} **= 3 L.h^{-1}** et Q_{mG} = 5 g.h^{-1} **a) solution WPI3XG04**. P_{inj} = 2,32 bars, U_L = 0,78 m.s^{-1}, U_G = 0,36 m.s^{-1} **b) solution XG04** P_{inj} = 1,89 bars, U_L = 0,79 m.s^{-1}, U_G = 0,42 m.s^{-1} **c) solution Glycérol 50%** P_{inj} = 2,45 bars, U_L = 0,82 m.s^{-1}, U_G = 0,35 m.s^{-1}. Pressions relatives d'injection (P_{inj}) correspondent aux pressions d'injections à l'entrée du dispositif utilisées pour estimations des paramètres hydrodynamiques dans l'élargissement. Fréquence d'acquisition de 5000 images par seconde et donc un temps entre deux photos (interframe) de 0,2 ms.

Une évaluation de la distribution de taille des bulles traversant le canal de mélange du dispositif CX600 est proposée dans la figure 149a. On constate d'abord une diminution de la taille des bulles formées avec une augmentation des nombres de Reynolds liquide calculés (tableau 16). Malgré les forts débits liquides mis en jeu, on constate qu'il est possible de former des populations de bulles plutôt monodispersées comme déjà avancé dans le paragraphe 2.5 des résultats pour le cas de la solution WPI3XG04. Le *span* vaut respectivement 0,37 pour WPI3XG04, 0,30 pour XG04 et 0,3 pour la solution de glycérol à 50%. La polydispersité supérieure de WPI3XG04 est liée à une viscosité plutôt élevée de la solution (figure 149b) qui au moment du pompage (taux de cisaillement de l'ordre de 10^2-10^3 s^{-1} pour l'opération de pompage) provoque des pulsations et donc une incorporation moins contrôlée du gaz à la matrice liquide. Par ailleurs, il convient de signaler qu'en raison des interfaces très étirées à l'arrière des bulles, la mesure de la taille des bulles par analyse d'images pourrait s'avérer moins précise pour WPI3XG04.

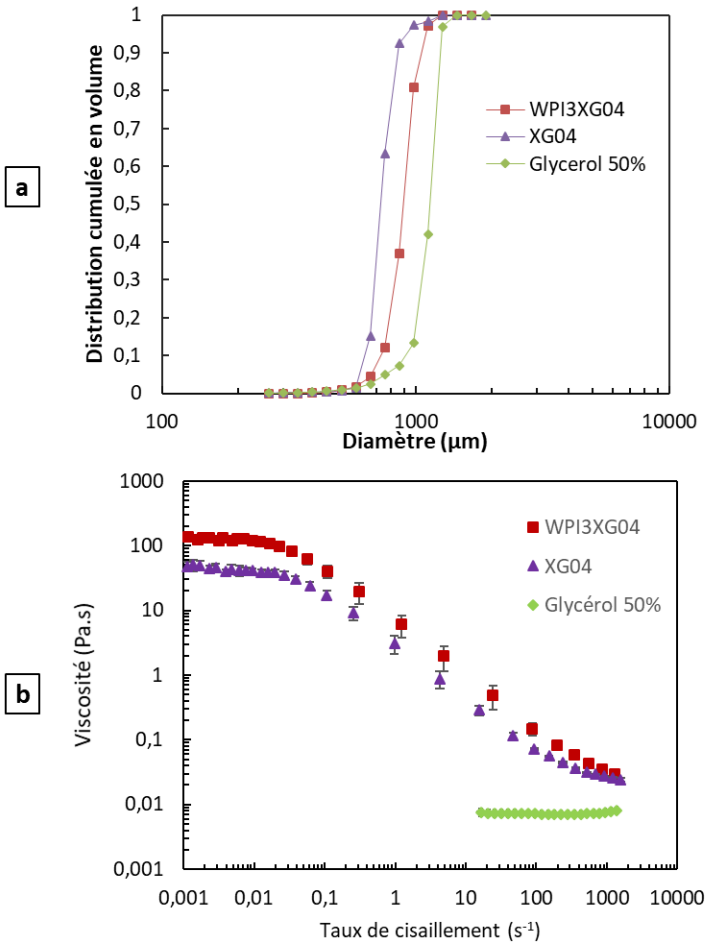


Figure 149. a) distribution de la taille des bulles dans le microcanal de mélange (zone M1) pour WPI3XG04, XG04 et glycérol pour la condition Q_{vL} = 11 $L.h^{-1}$-Q_{mG} = 21,6 $g.h^{-1}$. Les mesures des diamètres dans le microcanal ont été rapportées à la pression atmosphérique. **b)** tests d'écoulement des solutions WPI3XG04, XG04 et glycérol effectués à 20°C.

Un dernier aspect aussi très intéressant et issu de la comparaison de deux solutions non-newtoniennes concerne l'évaluation du produit en sortie. On constate dans la figure 150 que même si les bulles dans la solution XG04 montraient des distributions de taille assez resserrées, elles n'ont pas vraiment conduit à la formation d'une mousse en sortie du procédé. La non-couverture des interfaces avec des agents ayant une activité de surface a plutôt favorisé la coalescence des bulles dans le procédé dans le cas de XG04. Ces constatations confirment que l'on ne peut pas se contenter d'étudier l'aptitude des microcananux à former des bulles et donc que l'on ne doit pas s'affranchir d'une caractérisation rigoureuse du produit final.

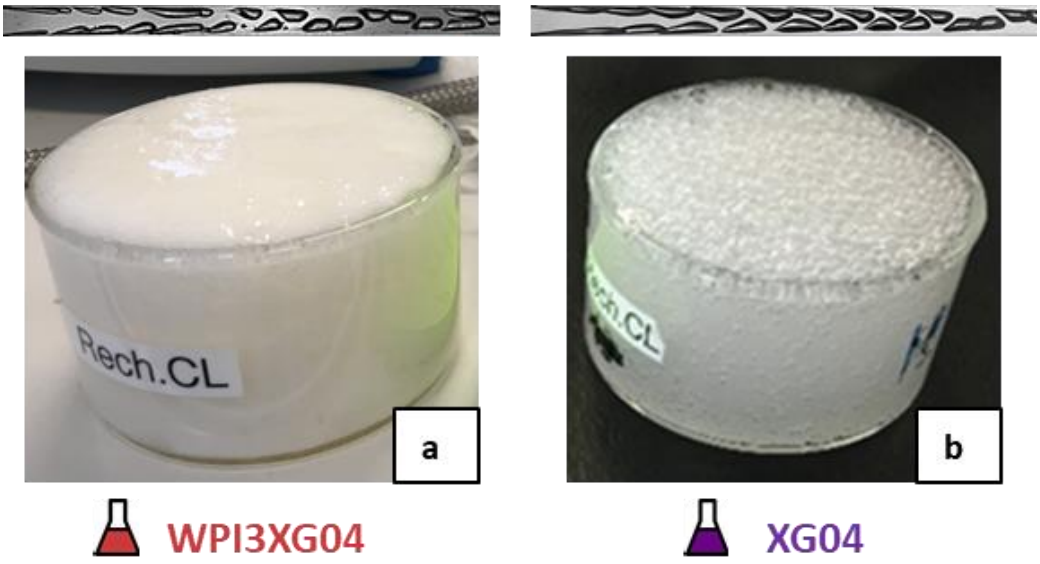


Figure 150. Produit obtenu en sortie du procédé pour la condition Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} **a)** solution WPI3XG04. **b)** solution XG04. Les cristallisoirs dans l'image ont un diamètre approximatif de 8 cm et une hauteur approximative de 5 cm.

4.3 Rôle de la gomme xanthane dans la typologie du train de bulles à l'intérieur du dispositif microfluidique

Afin de mieux appréhender le rôle des molécules de gomme xanthane dans les caractéristiques des bulles dans le canal de mélange (zone M1) deux autres solutions sont étudiées, WPI3 et WPI3XG02. La solution WPI3 contient seulement l'isolat des protéines sériques à concentration fixée de 3% tandis que la solution WPI3XG02 contient les isolats à la même concentration ainsi qu'une concentration de 0,2% en gomme xanthane. La figure 151a présente les visualisations pour ces deux solutions ainsi que pour l'eau au débit liquide

de 11 L.h^{-1} à l'intérieur du canal de mélange du dispositif CX600. De façon similaire, des séries de 4 photos successives de l'écoulement dans le canal de mélange du dispositif CX600 sont proposées pour ces trois solutions dans la figure 152.

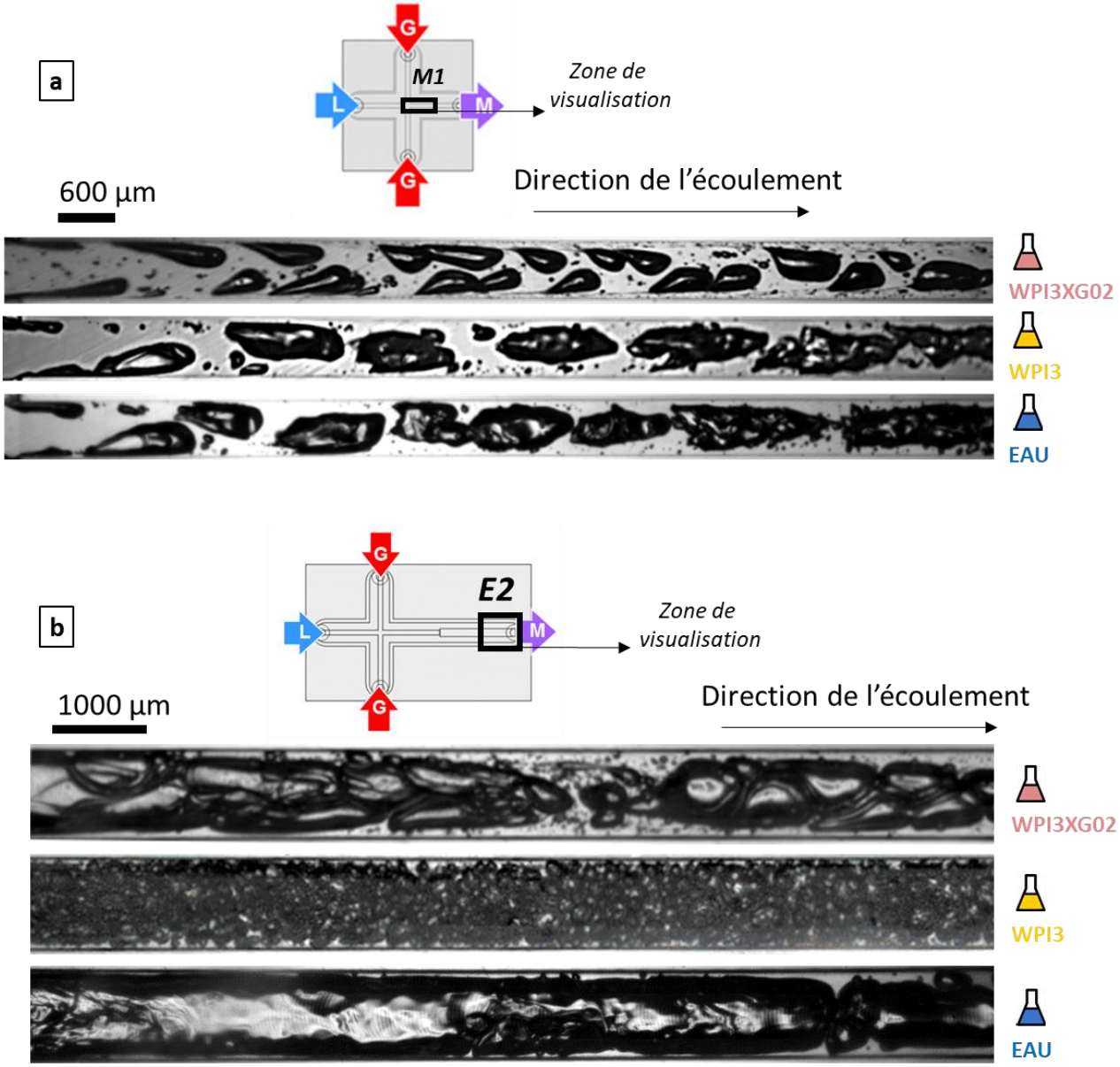


Figure 151. a) visualisation du train de bulles dans le **canal de mélange (zone M1) du dispositif CX600** pour Q_{vL} **= 11 L.h^{-1}**-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} pour les solutions **WPI3XG02** (P_{inj} = 3,08 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 3,56 m.s^{-1}), **WPI3** (P_{inj} = 3,34 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 3,33 m.s^{-1}) et l'**eau distillée** (P_{inj} = 2,49 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 4,13 m.s^{-1}) **b)** visualisation du train de bulles dans **l'élargissement (zone E2) du dispositif CX-E-600** pour Q_{vL} **= 3 L.h^{-1}**-Q_{mG} = 5 g.h^{-1} pour les solutions **WPI3XG02** (P_{inj} = 1,83 bars, U_L = 0,78 m.s^{-1}, U_G = 0,43 m.s^{-1}), **WPI3** (P_{inj} = 1,40 bars, U_L = 0,77 m.s^{-1}, U_G = 0,50 m.s^{-1}) et l'**eau distillée** (P_{inj} = 1,11 bars, U_L = 0,83 m.s^{-1}, U_G = 0,57 m.s^{-1}). Dans les cas de l'élargissement, les pressions relatives d'injection (P_{inj}) correspondent aux pressions d'injection à l'entrée du dispositif. Les images ont été obtenues à des fréquences d'acquisition 5000 images par seconde.

Dans le microcanal de mélange (Figure 151a), à première vue, des différences notables existent entre les solutions respectivement avec et sans xanthane. Les bulles dans la solution

WPI3 acquièrent plutôt une configuration d'obus et elles vont s'organiser rapidement dans l'axe du canal contrairement aux formes de larmes et une distribution en forme d'épi pour les bulles dans nos solutions viscoélastiques. Également, on perçoit une déformation de la surface des bulles en raison des forces inertielles importantes mises en jeu, Re ~ 3548 (tableau 18). A la fin de la zone de visualisation les forces agissant sur les bulles sont si considérables que les bulles commencent à subir des torsions et de gros morceaux semblent être arrachés. Malgré une concentration en excès de WPI, le train de bulles WPI3 se rapproche beaucoup de celui de l'eau. Sous nos conditions expérimentales, l'excès de concentration de WPI n'a donc présenté aucun effet visuellement perceptible par rapport aux bulles formées dans l'eau dans le canal de mélange du dispositif CX600.

Il convient aussi d'observer que dans le cas de l'écoulement diphasique avec WPI3XG02, les bulles ne présentent pas ces altérations et rugosités dans la surface des bulles WPI3 malgré des nombres de Reynolds proches, Re ~ 3214 (tableau 18). La présence de molécules de xanthane, même à une concentration relativement faible de 0.2% (normalement appartenant au régime dilué), semble donc bien induire une stabilisation des lignes d'écoulement dans le liquide et donc une moindre perturbation des bulles au sein même du microcanal, par un effet de réduction des frottements. On sait en effet que les molécules de polymères de haut poids moléculaires tel que le xanthane, se réarrangent en s'alignant dans le sens principal d'écoulement, à fort cisaillement.

Tableau 18. Propriétés hydrodynamiques de l'écoulement diphasique pour WPI3XG02, WPI3 et l'eau dans le canal de mélange du dispositif CX600 à Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. Voir l'annexe C pour des tableaux élargis à plusieurs débits.

Solution	Q_{vL}	U_L	p_{inj}	Q_{vG}	U_G	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L	ΔP_1
-	L.h^{-1}	m.s^{-1}	bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	s^{-1}	Pa.s	-	-	-	bar
WPI3	11,0	8,46	3,34	4,31	3,33	1,00E+05	1,44E-03	0,30	3548	1079	1,46
WPI3XG02	11,0	8,46	3,08	4,61	3,56	1,00E+05	1,52E-03	0,29	3214	945	13,46
EAU	11,0	8,46	2,49	5,35	4,13	1,00E+05	1,00E-03	0,12	5076	596	1,46

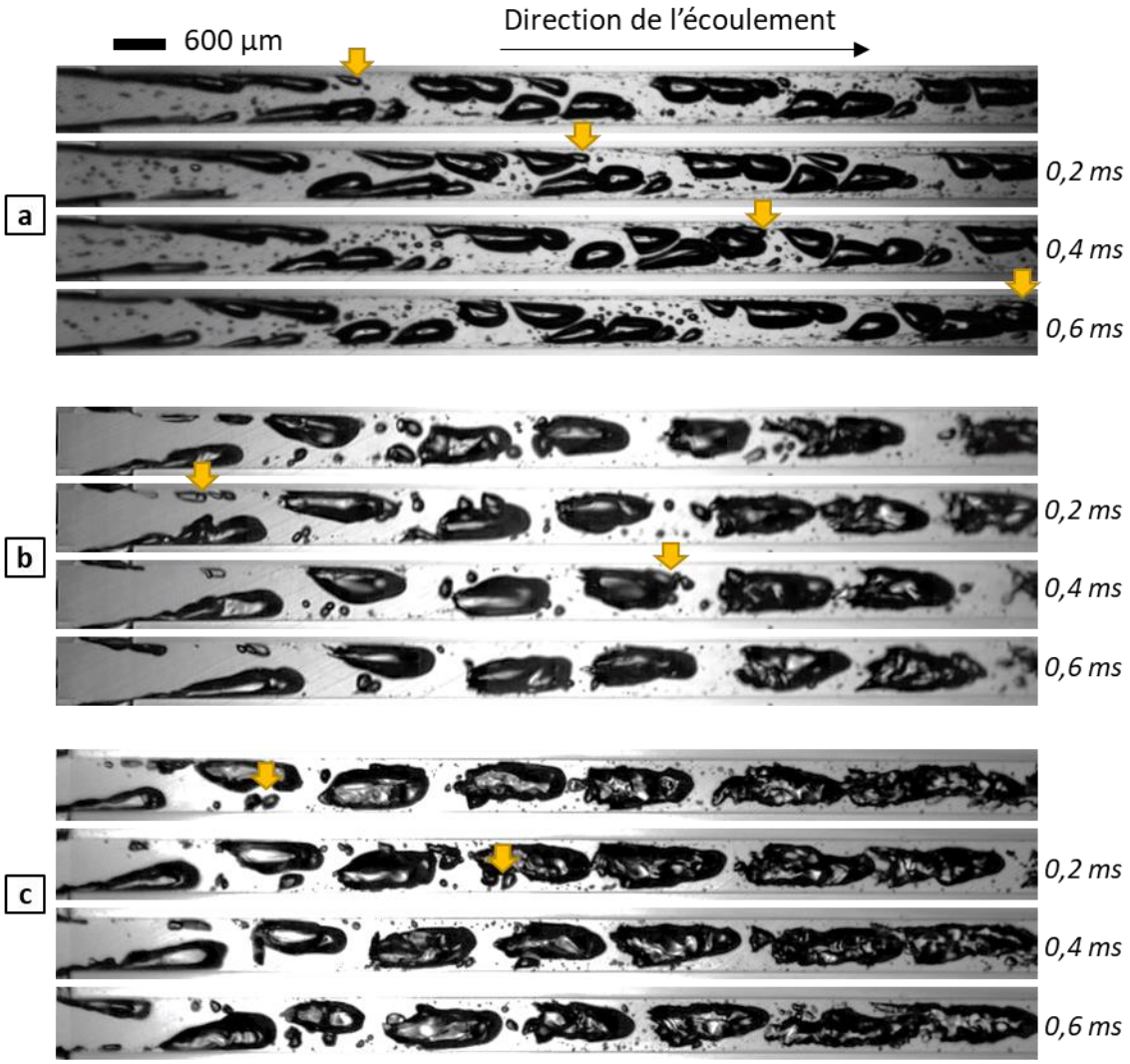


Figure 152. Séries d'images successives prises avec camera rapide pour l'écoulement diphasique dans le canal de mélange du **dispositif CX600, zone M1**. Débits utilisés : Q_{vL} **= 11 L.h^{-1}** et Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} **a) solution WPI3XG02**. P_{inj} = 3,08 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 3,56 m.s^{-1} **b) solution WPI3** P_{inj} = 3,34 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 3,33 m.s^{-1} **c) solution Eau distillée** P_{inj} = 2,49 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 4,13 m.s^{-1}. Pressions d'injection (P_{inj}) relatives. Fréquence d'acquisition de 5000 images par seconde et donc un temps entre deux photos (interframe) de 0,2 ms.

L'analyse de l'écoulement au niveau de l'élargissement à un débit plus faible de 3 L.h^{-1} (figure 151b et 153) a conduit à l'identification de phénomènes remarquables. On constate uniquement dans le cas de la solution contenant à la fois des WPI et du xanthane que les bulles présentent des déformations significatives de l'interface (développement de longs filaments). Les solutions à base de WPI n'ont pas conduit à ce type d'étirements de l'interface lors du passage dans l'élargissement (ni les solutions à base seulement de xanthane – voir figure 146b). Il semble donc exister un lien fort entre la formulation utilisée, la géométrie des microcanaux et le type de mécanisme établi de déformation de l'interface. Un deuxième aspect intéressant est constaté en analysant les bulles dans WPI3 au sein de

l'élargissement. Ces bulles (figure 153b) sont considérablement plus fractionnées que celles de la solution WPI3XG02 (figure 153a) ; dans ces conditions d'écoulement et cette partie du procédé, les WPI jouent en tant qu'agent tensioactif pleinement leur rôle. Il est vrai que les forces inertielles pour WPI3 sont légèrement supérieures Re_L ~ 536 contre Re_L ~ 201 pour WPI3XG02 (tableau 19). Cependant, mise à part la stabilisation de la forme des bulles, on peut déduire de ces observations que le xanthane agit aussi comme une forme de barrière au fractionnement et ce malgré la diminution de la tension interfaciale (WPI3 et WPI3XG02 ont des tensions interfaciales très proches – voir tableau 2). Finalement, même si l'élargissement semble avoir pour effet de fractionner beaucoup plus intensément les bulles dans WPI3, les mousses obtenues en sortie du procédé pour cette base liquide auraient une stabilité compromise en raison d'une viscosité au repos de la phase continue très faible ce qui accélérerait la déstructuration par drainage.

Tableau 19 Propriétés hydrodynamiques de l'écoulement diphasique pour WPI3XG02, WPI3 et l'eau dans l'élargissement du dispositif CX-E-600 à Q_{vL} = 3 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1}.

Solution	Q_{vL}	U_L	Q_{vG}	U_G	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L
(-)	L.h^{-1}	m.s^{-1}	L.h^{-1}	m.s^{-1}	s^{-1}	Pa.s	-	-	-
WPI3	3,0	0,77	1,800	0,50	5,45E+03	1,44E-03	0,03	536	15
WPI3XG02	3,0	0,78	1,540	0,43	5,55E+03	3,73E-03	0,07	201	13
Eau	3,0	0,83	2,042	0,57	5,93E+03	1,00E-03	0,01	833	10

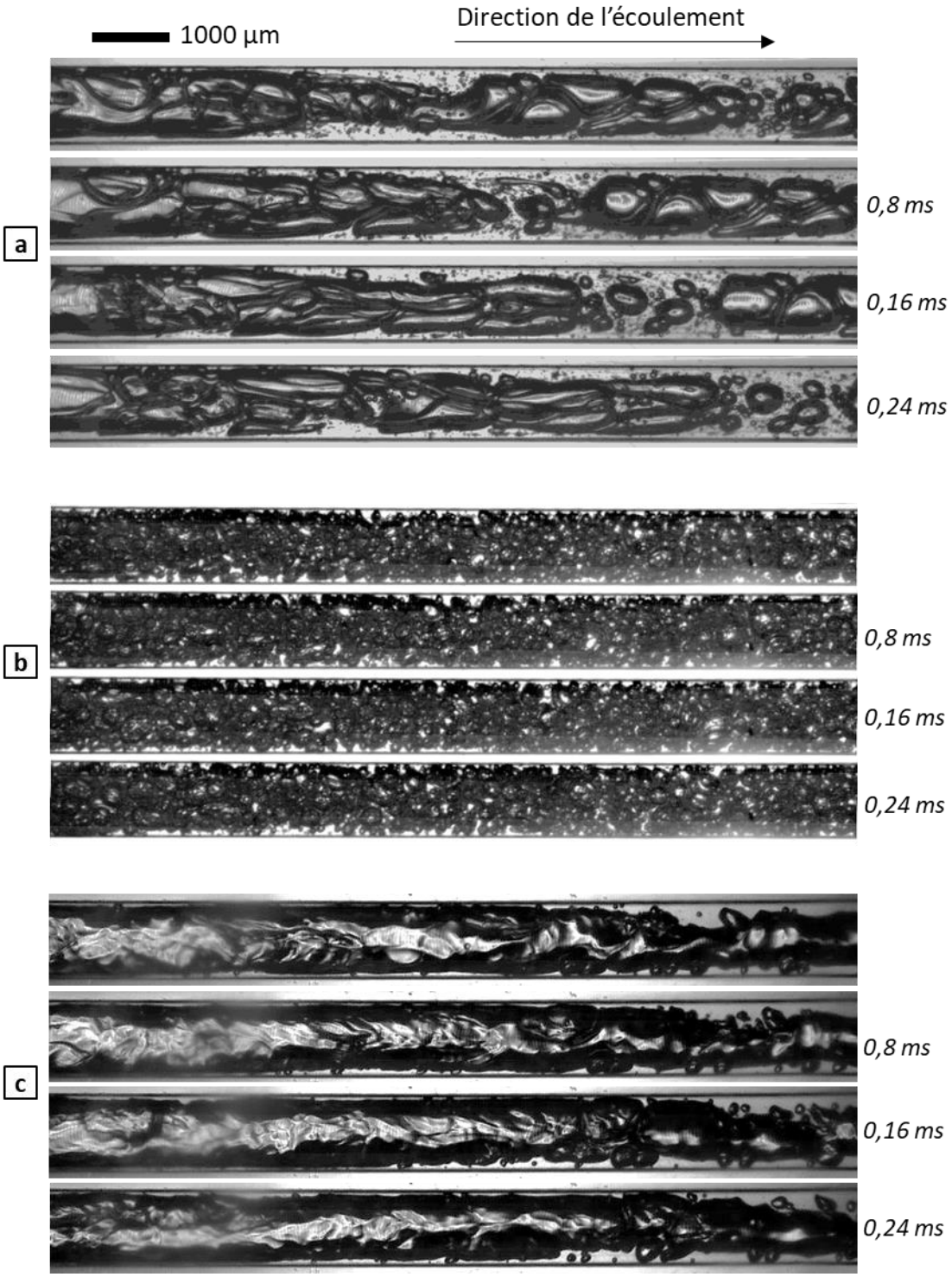


Figure 153. Séries d'images sélectionnées à intervalle de 0,8 ms des images prises avec camera rapide pour l'écoulement diphasique dans l'élargissement du **dispositif CX-E-600, zone E2**. Débits utilisés : $\boldsymbol{Q_{vL}}$ **= 3 L.h^{-1}** et Q_{mG} = 5 g.h^{-1} **a) solution WPI3XG02**. P_{inj} = 1,83 bars, U_L = 0,78 m.s^{-1}, U_G = 0,43 m.s^{-1} **b) solution WPI3** P_{inj} = 1,40 bars, U_L = 0,77 m.s^{-1}, U_G = 0,50 m.s^{-1} **c) eau distillée** P_{inj} = 1,11 bars, U_L = 0,83 m.s^{-1}, U_G = 0,57 m.s^{-1}. Pressions relatives d'injection (P_{inj}) correspondent aux pressions d'injections à l'entrée du dispositif utilisées pour estimations des paramètres hydrodynamiques dans l'élargissement. Fréquence d'acquisition de 5000 images par seconde et donc un temps entre deux photos (interframe) de 0,2 ms.

Une analyse de la taille des bulles menée au sein du canal de mélange du dispositif CX600 à débit liquide de 11 L.h^{-1} est présentée dans la figure 154. En raison de l'écoulement chaotique pour l'eau et WPI3, leur granulométrie est construite en analysant seulement les bulles venant d'être formées dans la jonction des fluides et non sur l'ensemble du train de bulles de la photo. Comme attendu, des tailles et des polydispersités supérieures ont été obtenues pour l'eau et le WPI3 (*span* de 0,34 pour WPI3XG02, 0,45 pour WPI3 et 0,57 pour l'eau). Entre l'eau et le WPI3, c'est l'eau qui a donné une présence plus importante de petites bulles dans la granulométrie probablement liée à un écoulement plus turbulent qui pouvait en définitive entraîner une rupture sévère des bulles dès leur formation. On constate donc comment le rôle stabilisant du xanthane dans une mousse au repos peut aussi permettre un certain degré de contrôle sur la taille des bulles et la polydispersité lors de l'utilisation des technologies microfluidiques pour des applications de foisonnement.

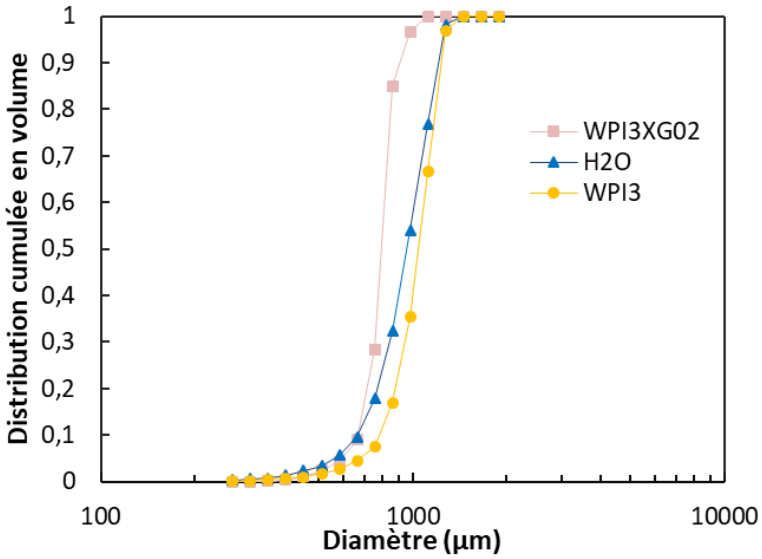


Figure 154. Distribution de taille des bulles dans le microcanal de mélange (zone M1) pour WPI3XG02, WPI3 et l'eau pour la condition Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}. Les mesures des diamètres dans le microcanal ont été rapportées à la pression atmosphérique.

4.4 Effet des protéines et de la force ionique sur la typologie du train des bulles à l'intérieur du dispositif microfluidique.

La figure 155 présente les visualisations du train de bulles pour 3 solutions : la solution à base d'isolats de protéines sériques 3% et de gomme xanthane 0,4% (WPI3XG04), une solution à base de caséinates de sodium à même concentration de 3% pour les protéines et 0,4% de xanthane (CAS3XG04) et finalement, la même solution WPI3XG04 mais avec 1,2% en masse (~ 0,20 M) de chlorure de sodium NaCl. Cette concentration du NaCl se trouve

dans la gamme de concentrations (0,05 à 1,0 M) favorisant la solubilité des constituants d'un mélange gomme xanthane et isolats de protéines sériques (Mott *et al.*, 1999). Les figures 156 et 160 viennent compléter ces visualisations dans le canal de mélange du CX600 et l'élargissement du CX-E-600 respectivement avec des séries de 4 photos successives pour ces trois solutions à débit liquide de 11 $L.h^{-1}$ dans le cas du canal de mélange et 3 $L.h^{-1}$ dans le cas de l'élargissement.

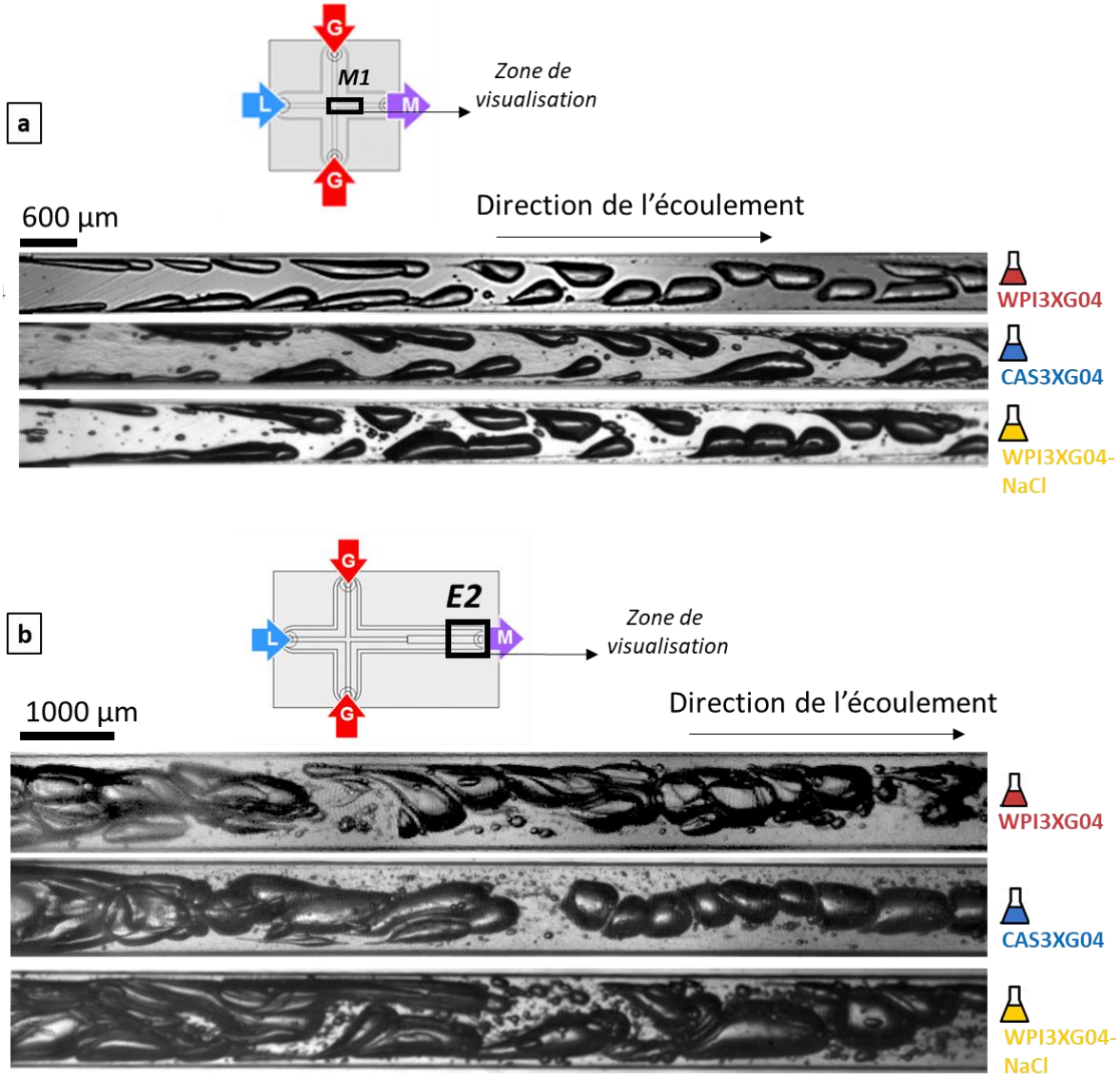


Figure 155. a) visualisation du train de bulles dans le **canal de mélange (zone M1) du dispositif CX600** pour Q_{vL} **= 11 L.h^{-1}**-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} pour les solutions **WPI3XG04** (P_{inj} = 3,83 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1}) et **WPI3XG04-NaCl** (P_{inj} = 3,84 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1}). Q_{vL} **= 10,6 L.h^{-1}**-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} pour **CAS3XG04** (P_{inj} = 4,54 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,61 m.s^{-1}) **b)** visualisation du train de bulles dans **l'élargissement (zone E2) du dispositif CX-E-600** pour Q_{vL} **= 3 L.h^{-1}**-Q_{mG} = 5 g.h^{-1} pour les solutions **WPI3XG04** (P_{inj} = 2,32 bars, U_L = 0,78 m.s^{-1}, U_G = 0,36 m.s^{-1}), et **WPI3XG04-NaCl** (P_{inj} = 2,3 bars, U_L = 0,78 m.s^{-1}, U_G = 0,36 m.s^{-1}). Q_{vL} **= 2,6 L.h^{-1}**-Q_{mG} = 5 g.h^{-1} pour **CAS3XG04** (P_{inj} = 2,87 bars, U_L = 0,70 m.s^{-1}, U_G = 0,31 m.s^{-1}). Dans les cas de l'élargissement, les pressions relatives d'injection (P_{inj}) correspondent aux pressions d'injections à l'entrée du dispositif. Les images ont été obtenues à des fréquences d'acquisition 5000 images par seconde.

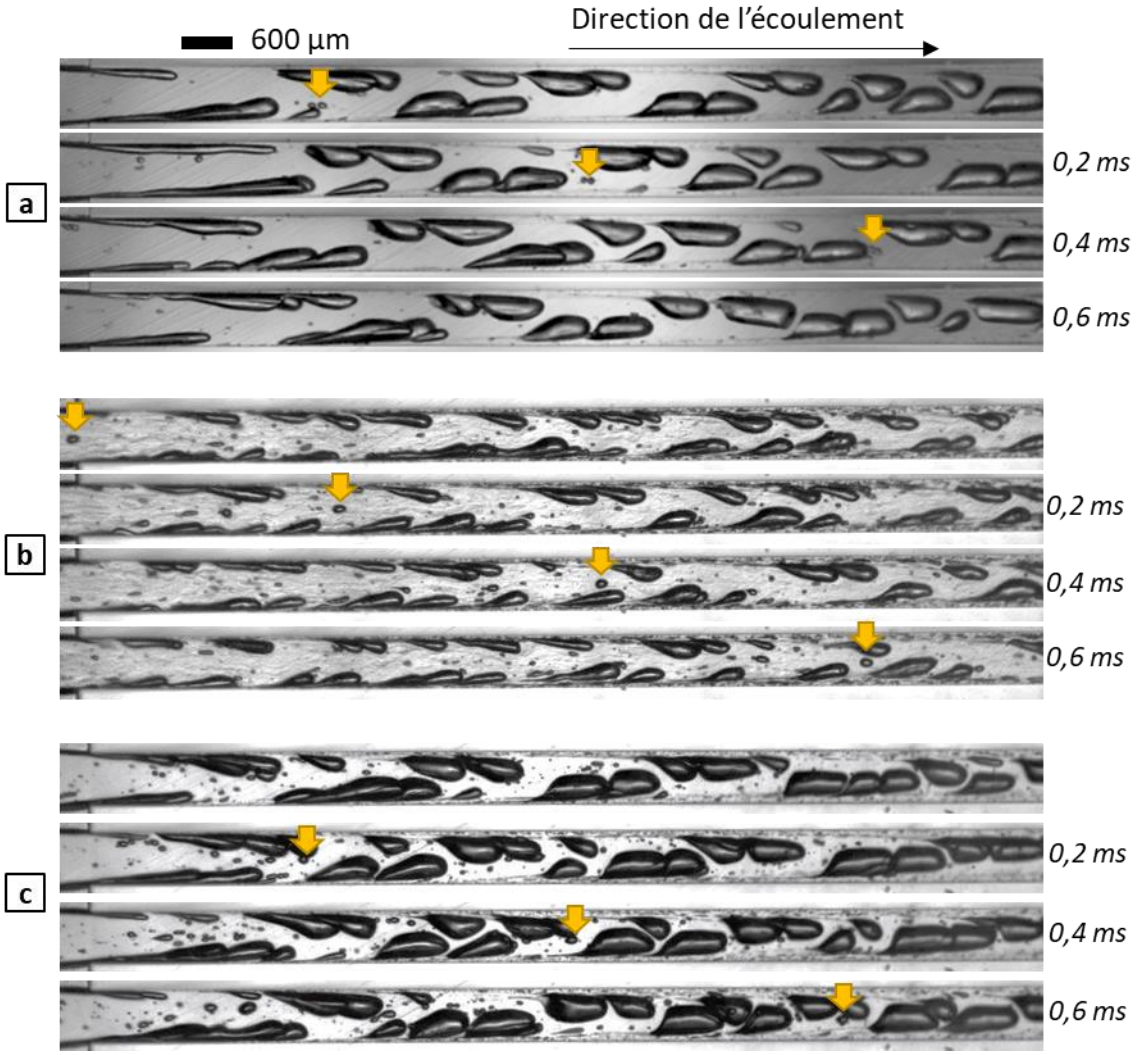


Figure 156. Séries d'images successives prises avec camera rapide pour l'écoulement diphasique dans le canal de mélange du **dispositif CX600, zone M1**. Débits utilisés : $\boldsymbol{Q_{vL}}$ **= 11 L.h^{-1}** et Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} **pour WPI3XG04 et WPI3XG04-NaCl** et $\boldsymbol{Q_{vL}}$ **= 10,6 L.h^{-1}** et Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} **pour CAS3XG04 a) solution WPI3XG04**. P_{inj} = 3,83 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1} **b) solution CAS3XG04** P_{inj} = 4,54 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,61 m.s^{-1} **c) solution WPI3XG04-NaCl** P_{inj} = 3,84 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1}. Pressions d'injection (P_{inj}) relatives. Fréquence d'acquisition de 5000 images par seconde et donc un temps entre deux photos (interframe) de 0,2 ms.

L'objectif d'étudier une solution à base de caséinates à place des WPI tournait autour de l'hypothèse qu'en changeant une protéine de structure globulaire (WPI) pour une de structure plus ouverte (caséinates), la cinétique d'adsorption et le déploiement des molécules à l'interface serait plus rapide et pourrait donner des mécanismes de déformation différents dans les conditions d'écoulement de la zone M1. En analysant ces deux cas dans la figure 155a on se rend compte que les filaments développés à l'arrière des bulles dans le cas de CAS3XG04 semblent plus épais que ceux de WPI3XG04. La figure 157 montre clairement cette situation en présentant un grossissement sur une bulle pour CAS3XG04 et WPI3XG04.

Le fractionnement des filaments des bulles dans la figure 157 est présenté dans les séries d'images de la figure 158 ; les conditions hydrodynamiques de ces visualisations peuvent être également retrouvées dans le tableau 20. Même si les filaments formés en arrière des bulles ont une plus grosse épaisseur dans le cas de la solution CAS3XG04, la présence du tip streaming n'est pas écartée pour cette solution. Dans le cas de la solution CAS3XG04, les images dans la figure 158 montrent en effet qu'à certains moments le développement d'un filament plus fin conduit au détachement de petites bulles satellites caractéristiques du tip streaming. Il serait nécessaire d'utiliser des techniques plus pointues de visualisation pour accéder à des échelles plus petites et étudier les différences de fractionnement des bulles dans le canal de mélange lors de l'utilisation des solutions à base de caséinates et de protéines sériques.

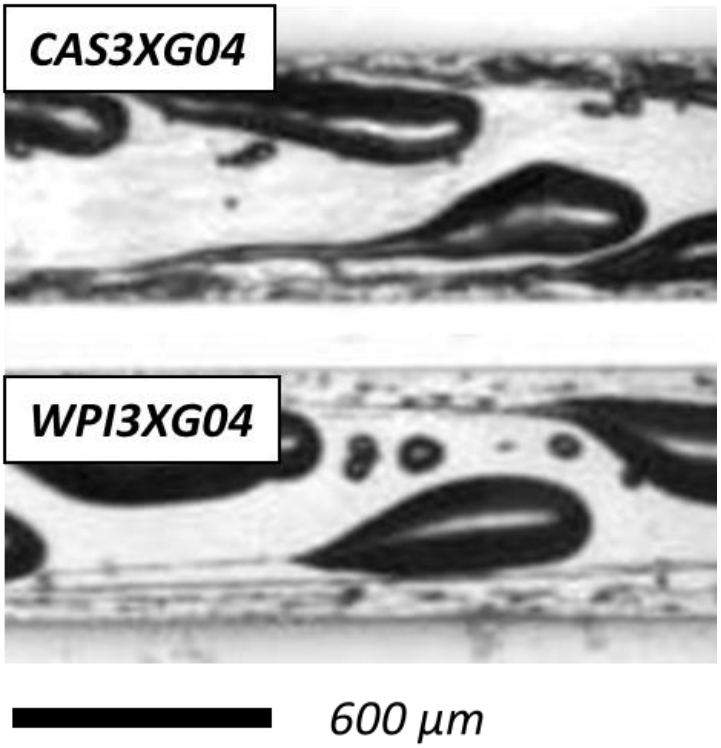


Figure 157. Vue agrandie d'une bulle traversant la solution CAS3XG04 (Q_{vL} = 10,6 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}) et WPI3XG04 (Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}) dans le canal de mélange (M1) du dispositif CX600.

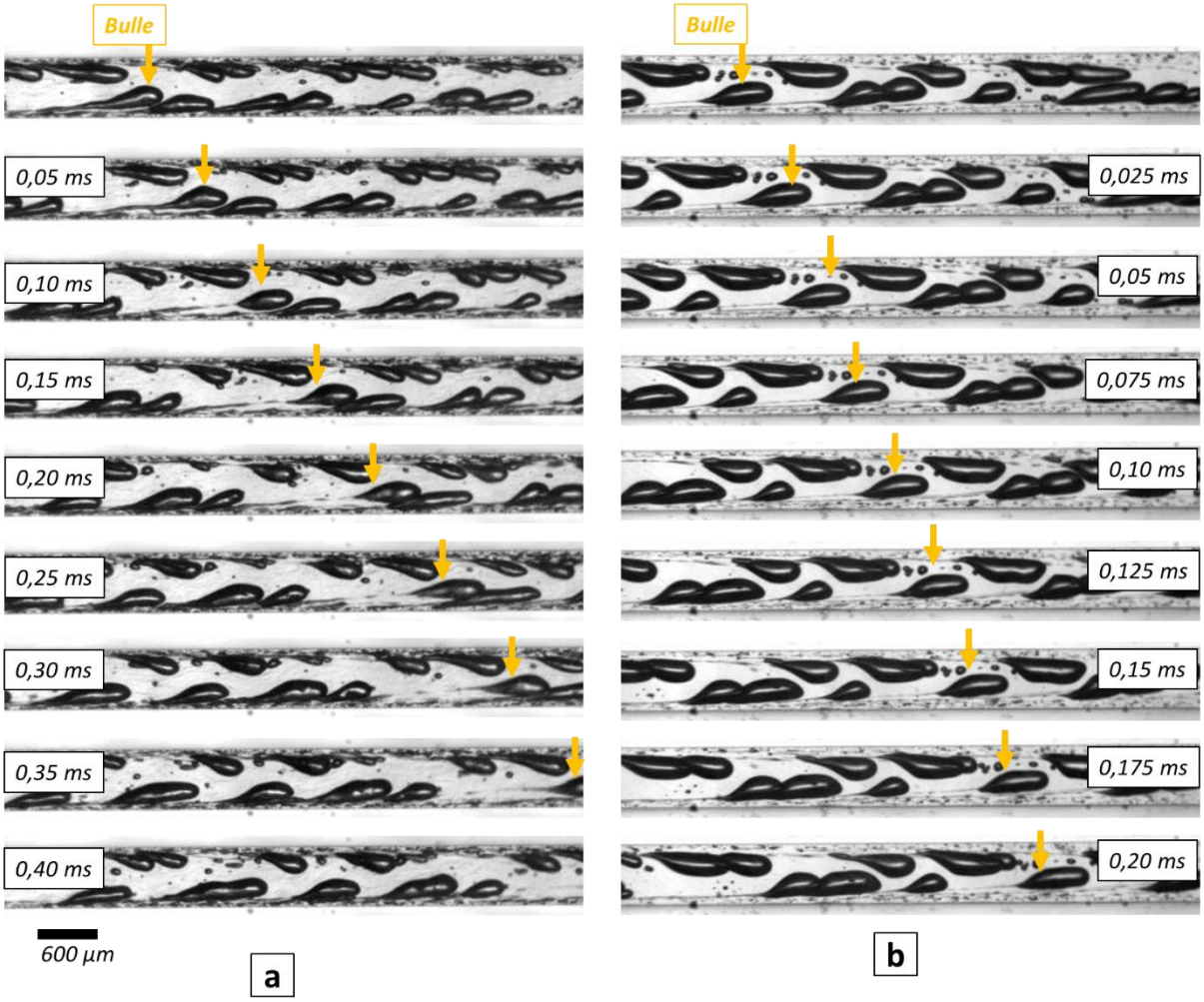


Figure 158. a) évolution du fractionnement du filament formé à l'arrière de la bulle pour **CAS3XG04** dans le **canal de mélange du dispositif CX600 à Q_{vL} = 10,6 L.h^{-1}-Q_{mG}** = 21,6 g.h^{-1} avec une fréquence d'acquisition d'images de 20000 images par seconde b) évolution du fractionnement du filament formé à l'arrière de la bulle pour **WPI3XG04** dans le **canal de mélange du dispositif CX600 à Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG}** = 21,6 g.h^{-1} avec une fréquence d'acquisition d'images de 40000 images par seconde.

Tableau 20. Propriétés hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans le canal de mélange du dispositif CX600 à Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} pour WPI3XG04 et WPI3XG04-NaCl et Q_{vL}=10,6 L.h^{-1}-Q_{mG} =21,6 g.h^{-1} pour CAS3XG04

Solution	Q_{vL}	U_L	p_{inj}	Q_{vG}	U_G	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L	ΔP_1
-	L.h^{-1}	m.s^{-1}	bar	L.h^{-1}	ms^{-1}	s^{-1}	Pa.s	-	-	-	bar
WPI3XG04	11,0	8,46	3,83	3,85	2,97	1,00E+05	2,49E-03	0,46	1981	907	1,53
CAS3XG04	10,6	8,15	4,54	3,38	2,61	9,67E+04	2,55E-03	0,51	1856	939	1,89
WPI3XG04-NaCl	11,0	8,46	3,84	3,85	2,97	1,36E+05	2,43E-03	0,45	2048	914	1,51

L'incorporation du sel a des effets bien connus sur les solutions à base de biopolymères. Ce changement de la force ionique peut ainsi impacter les différentes étapes de diffusion, adsorption et réorganisation des protéines dans l'interface (Laporte, 2014), mais aussi la viscosité des solutions à base de xanthane. D'après Sworn (2009) et Wyatt (2011) l'ajout du sel à des solutions à base de xanthane en régime concentré (concentrations de xanthane supérieur à 0,25%) provoque une augmentation de la viscosité.

Etant donné le régime concentré pour nos solutions (concentration 0,4%), dans le cas de la solution WPI3XG04-NaCl on s'attend plutôt à une augmentation de la viscosité de la phase continue. Cependant, des analyses de la viscosité des solutions figure 159a n'ont montré aucun effet sur la viscosité de la solution WPI3XG04 en ajoutant du NaCl. Une possible explication de ceci serait liée au fait que nous n'avions pas que du xanthane dans nos solutions. En effet, la présence de WPI, en concentration très élevée (3% en masse), pourrait changer les tendances identifiées par Wyatt (2011) à propos de l'effet du NaCl sur la viscosité des solutions à base de xanthane. L'ajout du NaCl à une solution WPI3XG04 n'a pas donné des différences sur la déformation des interfaces dans le canal de mélange comme présenté dans les figures 155a et 156. Cependant, le changement de la force ionique de la solution a conduit à la formation de bulles plus petites mais aussi à une distribution plus polydisperse (figure 159b).

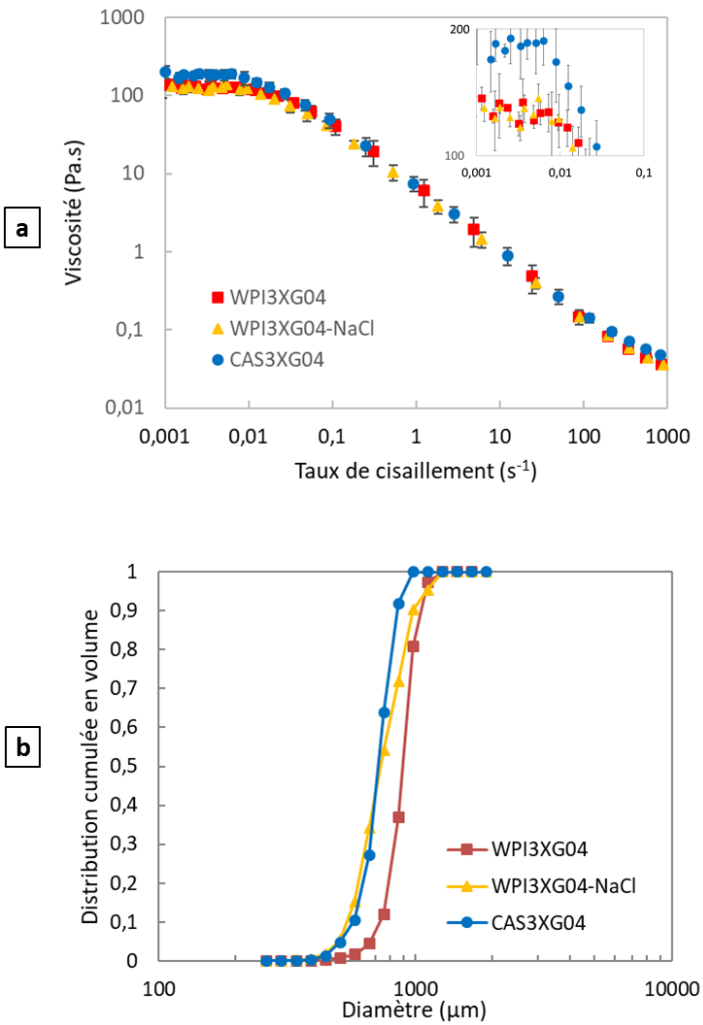


Figure 159. a) tests d'écoulement en contrainte imposée à 20°C pour les solutions WPI3XG04 (carrés), WPI3XG04-NaCl (triangles) et CAS3XG04 (cercles) **b)** distribution de taille des bulles dans le microcanal de mélange (zone M1) pour WPI3XG04, WPI3XG04-NaCl et CAS3XG04. Les mesures des diamètres dans le microcanal ont été rapportées à la pression atmosphérique. Conditions pour solutions à base de WPI Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} et pour une solution à base de caséinates Q_{vL} = 10,6 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}.

Finalement, des visualisations sont réalisées dans l'élargissement et présentées dans la figure 155b ; elles sont complétées par des séries de 4 photos choisies à des intervalles de 0,8 ms (figure 160). Ces photos montrent qu'il n'existerait pas un effet significatif du changement de la force ionique de nos solutions modèles (à la concentration utilisée du NaCl) sur les caractéristiques visuelles de l'écoulement (figures 160a et 160c). Dans le cas de caséinates (figure 160b), un écoulement moins perturbé a été remarqué même si les nombres sans dimensions caractéristiques de cet écoulement ne s'écartent pas notablement de ceux siégeant en présence de WPI. Les bulles prennent en effet rapidement une forme plus sphérique et s'alignent au centre du canal, ce qui n'est pas observé avec les solutions contenant des WPI. Cependant, étant donné le caractère exploratoire de ces premières

visualisations, d'autres essais menés sous des conditions plus contrôlées (poudres de caséinates récentes et bien caractérisées) sont nécessaires pour confirmer ces observations

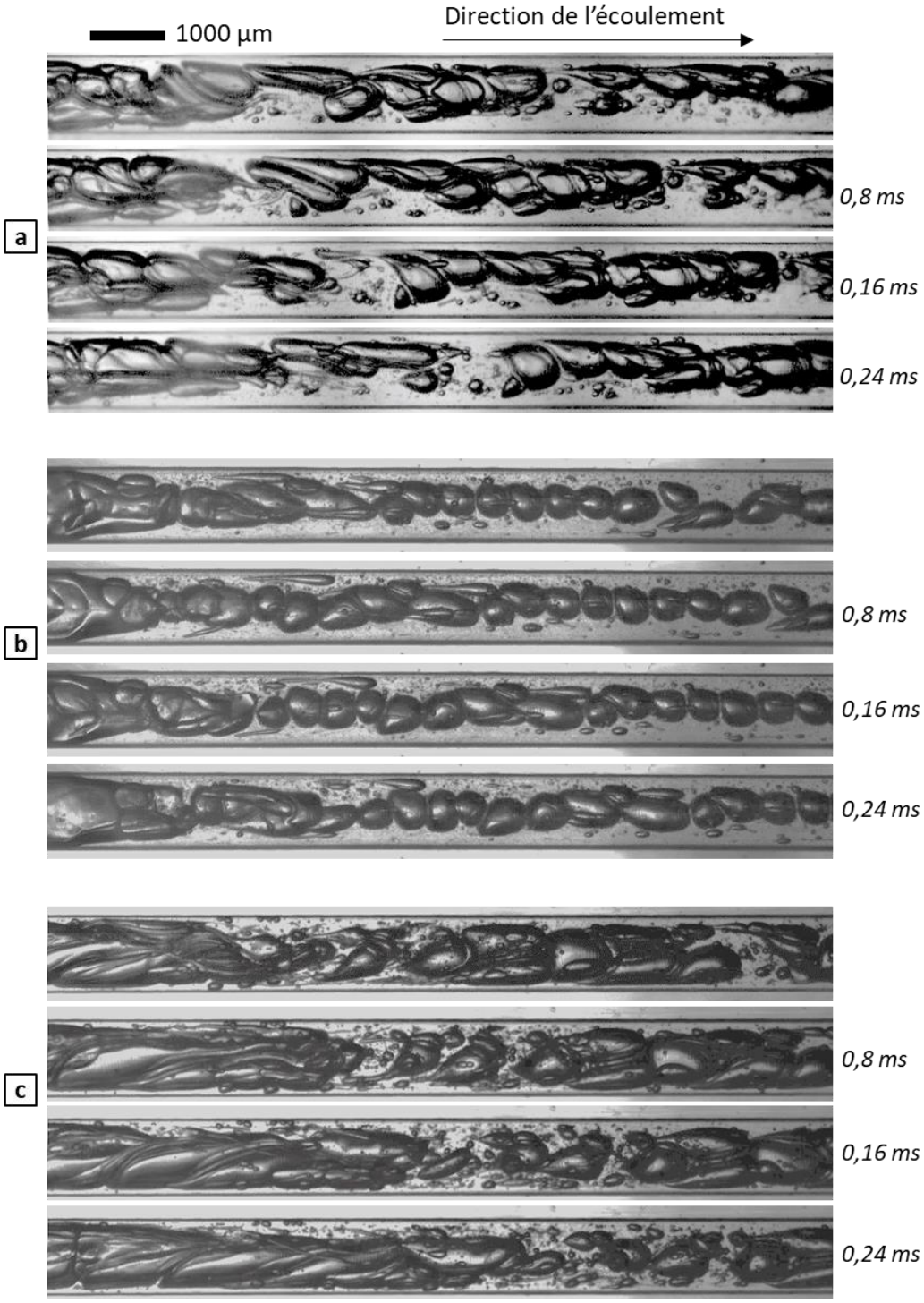


Figure 160. Séries d'images sélectionnées à intervalle de 0,8 ms des images prises avec camera rapide pour l'écoulement diphasique dans l'élargissement du **dispositif CX-E-600, zone E2**. Débits utilisés : $\boldsymbol{Q_{vL}}$ **= 3 L.h^{-1}** et Q_{mG} = 5 g.h^{-1} **pour les solutions à base de WPI** et $\boldsymbol{Q_{vL}}$ **= 2,6 L.h^{-1}** et Q_{mG} = 5 g.h^{-1} **pour la solution à base de caséinates a) solution WPI3XG04**. P_{inj} = 2,32 bars, U_L = 0,78 m.s^{-1}, U_G = 0,36 m.s^{-1} **b) solution CAS3XG04** P_{inj} = 2,87 bars, U_L = 0,70 m.s^{-1}, U_G = 0,31 m.s^{-1} **c) solution WPI3XG04-NaCl** P_{inj} = 2,3 bars, U_L = 0,78 m.s^{-1}, U_G = 0,36 m.s^{-1}. Pressions relatives d'injection (P_{inj}) correspondent aux pressions d'injections à l'entrée du dispositif utilisées pour estimations des paramètres hydrodynamiques dans l'élargissement. Fréquence d'acquisition de 5000 images par seconde et donc un temps entre deux photos (interframe) de 0,2 ms.

Tableau 21 Propriétés hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans l'élargissement du dispositif CX-E-600 à Q_{vL} = 3 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1} pour WPI3XG04 et WPI3XG04-NaCl et Q_{vL} = 2,6 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1} pour CAS3XG04

Solution	Q_{vL}	U_L	Q_{vG}	U_G	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L
(-)	L.h^{-1}	m.s^{-1}	L.h^{-1}	m.s^{-1}	s^{-1}	Pa.s	-	-	-
WPI3XG04	3,0	0,78	12,873	0,36	5,55E+03	6,88E-03	0,12	110	13
CAS3XG04	2,6	0,69	1,120	0,31	4,94E+03	7,64E-03	0,13	88	11
WPI3XG04-NaCl	3,0	0,78	1,306	0,36	5,55E+03	6,84E-03	0,12	112	13

4.5 Déformation et fractionnement des interfaces gaz-liquides

On s'était basé précédemment dans la partie 3 des résultats sur l'utilisation de la courbe de Grace (Grace, 1982) pour comparer et essayer de prévoir le fractionnement des interfaces observées avec nos visualisations pour le cas des bulles dans la solution WPI3XG04. A présent, nous proposons une analyse similaire qui implique donc la superposition sur la courbe de Grace des mesures effectuées pour quelques formulations étudiées dans cette 4ème partie des résultats. L'objectif sera ainsi de déterminer l'adéquation de cet outil lors de l'utilisation d'autres phases continues pour le foisonnement avec les microcanaux. La figure 161 présente les mesures du nombre capillaire de la bulle et du rapport de viscosité effectuées pour quelques bulles produites et les formulations proposées en utilisant un débit Q_{vL} = 11 L.h^{-1}. Il est important de préciser que la figure n'incorpore pas cette fois la courbe limite de fractionnement pour l'écoulement élongationnel étant donné que les cas évalués ici correspondent seulement aux bulles dans la zone de mélange M1 du dispositif CX600 où il existe uniquement un écoulement de cisaillement.

Les résultats pour la solution WPI3XG04 correspondent à ceux déjà analysés dans la partie 3 des résultats. Dans ce cas on avait déjà remarqué que la courbe de Grace décrivait bien la présence des phénomènes du tip streaming visualisés pour la solution WPI3XG04. Dans le cas de la solution WPI3XG02 la courbe semble aussi en accord avec les observations, à savoir la présence de tip streaming (points au-dessus de la ligne en tirets) et pas de fractionnement important (dislocation) des bulles (au-dessous de la ligne solide). Dans le cas des solutions contenant seulement les isolats WPI3, la courbe semble bien décrire les ruptures importantes que subiraient les bulles le long du canal de mélange. De façon similaire, les points pour le glycérol se trouvent au-dessus de la ligne solide ce qui se traduit par des fractionnements de ces bulles selon la courbe de Grace. Dans nos visualisations on a pu constater des torsions importantes pour ces bulles (figure 147c) conduisant

vraisemblablement à un fractionnement ou des arrachements des parties de la bulle, plus en aval dans le canal de mélange, mais cela resterait à vérifier. Dans le cas du XG04, les bulles n'ont pas subi de fractionnements dans la zone M1et cette situation est bien représentée ; nos points étant au-dessous de la ligne solide. On a inclu le cas de l'eau qui n'est pas d'ailleurs bien représenté car il existait du fractionnement, au moins par arrachement ; nos points se trouvent en effet au-dessous de la courbe de fractionnement (ligne solide). Cependant, l'écoulement était très turbulent et donc on était très éloigné des conditions contrôlées de développement de la courbe de Grace.

En effet, la courbe de Grâce, comme déjà avancé dans la partie 3, est un outil développé en assurant des écoulements homogènes et en augmentant de façon très contrôlée les débits. Dans nos expériences, l'écoulement même s'il est très organisé dans certains cas, n'était pas vraiment homogène en raison des effets collectifs liés à la présence de plusieurs bulles. Dans certains cas comme ceux du WPI3 et de l'eau, l'écoulement était même très turbulent. Selon cette première approche proposée dans notre étude, la courbe de Grace ne semblerait pas être un outil suffisamment précis ni suffisamment complet pour évaluer la déformation des interfaces à l'intérieur des microcanaux, au moins à haut débit d'injection.

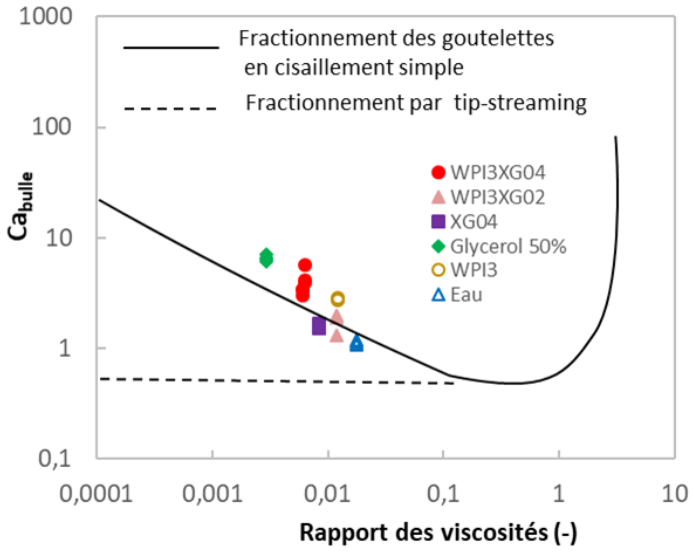


Figure 161. Superposition sur la courbe de Grace de mesures pour quelques bulles étudiées dans le microcanal de mélange (zone M1) du dispositif CX600 en utilisant les solutions WPI3XG04, WPI3XG02, XG04, WPI3, glycérol et l'eau à Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}.

4.6 Caractéristiques complémentaires concernant l'effet de la formulation sur les bulles dans le canal de mélange

Mis à part les discussions déjà abordées sur les distributions de taille des trains de bulles et les phénomènes de déformations des interfaces, d'autres caractérisations sont proposées. D'abord, la vitesse relative dans la figure 162 montre que c'est au niveau du dispositif microfluidique que les vitesses relatives sont plus importantes et c'est donc là que les déformations sont plus à même d'être significatives. En conséquence, dans notre type d'installation c'est à ce niveau qu'il faudra centrer les efforts pour intensifier les phénomènes de fractionnement des bulles. Un autre aspect à remarquer dans cette figure concerne le rôle de la formulation sur la vitesse relative au niveau du dispositif. Pour des conditions similaires de débit, les écarts de vitesses relatives au niveau du dispositif pouvaient aller jusqu'à environ 2 $m.s^{-1}$. Cependant, aucun effet sur la vitesse relative n'a été constaté avec un changement de protéines (caséinates vs protéines sériques) ni pour un changement de la force ionique (ajout de 1,2% de NaCl à WPI3XG04).

La vitesse relative est un paramètre important pour l'analyse de la déformation des bulles, mais il ne serait pas suffisant pour prédire le fractionnement comme on peut constater en analysant le cas des bulles dans l'eau. En effet les bulles dans l'eau ont présenté des fractionnements importants dans le canal de mélange et néanmoins on a obtenu la vitesse relative la plus faible pour ce cas. Le tableau 22 compile les vitesses relatives pour les différentes solutions à 11 $L.h^{-1}$.

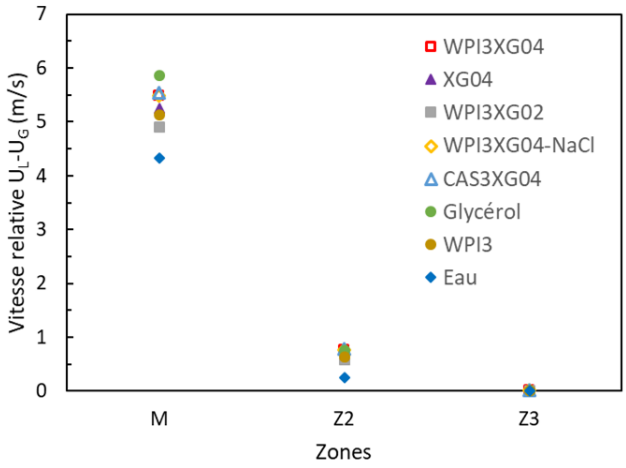


Figure 162. Vitesse relative pour les différentes formulations. Conditions Q_{vL} = 11 $L.h^{-1}$-Q_{mG} = 21,6 $g.h^{-1}$ sauf CAS3XG04 (Q_{vL} = 10,6 $L.h^{-1}$-Q_{mG} = 21,6 $g.h^{-1}$). Dispositif utilisé : CX600.

Tableau 22 Vitesses superficielles du gaz et du liquide dans l'installation en utilisant le dispositif CX600 à Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} sauf CAS3XG04 (Q_{vL} = 10,6 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1})

Solution	*Canal mélange (M)*			*Zone 2 (Z2)*		*Zone 3 (Z3)*	
	p_{inj}	U_G	U_L	U_G	U_L	U_G	U_L
(-)	*(bar)*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*	*(m s^{-1})*
WPI3XG04	3,83	2,97	8,46	0,80	1,56	0,0288	0,0388
XG04	3,53	3,21	8,46	0,91	1,56	0,0309	0,0388
WPI3XG02	3,08	3,56	8,46	0,98	1,56	0,0312	0,0388
WPI3XG04-NaCl	3,84	2,97	8,46	0,80	1,56	0,0286	0,0388
CAS3XG04	4,54	2,61	8,15	0,73	1,51	0,0253	0,0374
Glycérol	4,60	2,60	8,46	0,80	1,56	0,0295	0,0388
WPI3	3,34	3,33	8,46	0,93	1,56	0,0258	0,0388
Eau	2,49	4,13	8,46	1,30	1,56	0,0372	0,0388

La figure 163 présente d'autres caractérisations complémentaires pour des mêmes conditions de débit liquide et du gaz (Q_{vL} = 11 L.h^{-1} et Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}). D'abord, dans la figure 163a on peut constater qu'en général, les solutions avec ajout du xanthane ont présenté des diamètres de Sauter plus petits. En effet, en analysant les cas de WPI3XG02, WPI3 et l'eau qui avaient des viscosités similaires dans le procédé (Tableau 18), ce sont les bulles du WPI3XG02 qui ont des tailles inférieures. Dans la figure 163b on constate qu'une diminution de la concentration de gomme xanthane (WPI3XG02 contre WPI3XG04) se traduit par des bulles ayant une circularité supérieure. En général, les solutions moins visqueuses (WPI3XG02, WPI3 et l'eau) ont donné des bulles avec des formes moins allongées au moment de leur formation dans le microcanal.

Une étude de la vitesse moyenne de bulles ainsi que de la fréquence de bullage est proposée dans les figures 163c et 163d. Dans le cas des vitesses de bulles (figure 163c) on met en évidence que les solutions sans ajout de protéines, XG04 et glycérol, ont présenté les vitesses plus élevées. Ceci pourrait indiquer que les élongations des interfaces observées en présence de tensioactifs ou protéines vont perturber davantage l'écoulement provoquant des changements locaux importants. L'eau était aussi l'un des fluides sans ajout de protéines, mais son cas n'a pas été considéré pour cette discussion car les énormes forces inertielles (Re ~ 5000) peuvent occasionner des mouvements chaotiques dans toutes les directions, ce qui peut fausser les mesures de vitesses axiales moyennes. Une comparaison entre les solutions contenant des protéines n'a montré aucune tendance. En général, ces solutions ont

des vitesses moyennes de bulle de l'ordre de 15 $m.s^{-1}$ et les légères variations sont probablement dues à la précision de la mesure.

Finalement, en analysant la figure 163d, on observe une différence entre les solutions qui n'ont pas de protéines dans leur formulation et celles qui en ont. En effet, les solutions sans protéines (XG04, glycérol et l'eau) ont présenté des fréquences de bullage plus faibles. Ces valeurs inferieures sont le résultat de tensions interfaciales plus élevées qui contrecarrent dans une certaine mesure, les effets inertiels au moment du détachement des bulles. En effet, ce sont ces solutions qui ont des nombres de Weber calculés plus petits, 598 pour XG04, 709 pour glycérol et 596 pour l'eau (tableaux 16 et 18) par rapport aux valeurs situées entre 900 et 1000 pour les autres solutions. Une comparaison entre les solutions ayant dans leur composition les protéines et la gomme xanthane semble indiquer une fréquence de bullage supérieure pour la solution avec la plus faible concentration en xanthane (WPI3XG02). Ceci serait le résultat des forces inertielles plus importantes pour cette solution ; Re ~ 3214 pour WPI3XG02 et Re ~ 1800 à 2000 pour WPI3XG04, WPI3XG04-NaCl et CAS3XG04 (tableaux 18 et 20).

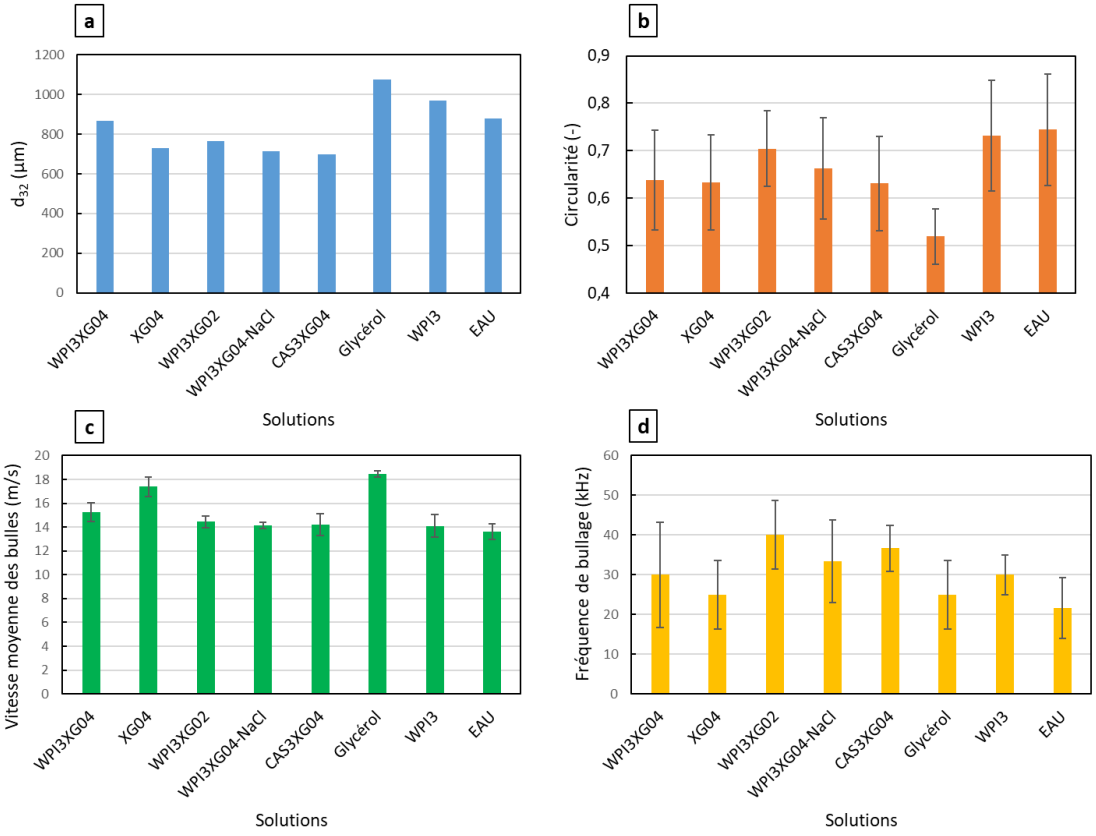


Figure 163. a) caractérisation du diamètre de Sauter**. b)** circularité des bulles **c)** vitesse moyenne des bulles **d)** fréquence de bullage. Solutions dans le microcanal de mélange (zone M1) du dispositif CX600 à Q_{vL} = 11 $L.h^{-1}$-Q_{mG} = 21,6 $g.h^{-1}$sauf CAS3XG04 (Q_{vL} = 10,6 $L.h^{-1}$-Q_{mG} = 21,6 $g.h^{-1}$).

Le tableau 23 présente une compilation qualitative des effets principaux évalués dans cette quatrième partie du manuscrit. La solution modèle WPI3XG04 utilisée comme référence dans la plupart de caractérisations menées pour ce rapport de thèse est donc choisie aussi comme référence pour ce tableau. On va donner une valeur de base égale à 0 pour les différentes caractéristiques de référence et on ajoute des signes + ou – en fonction des valeurs supérieures ou inferieures par rapport à la référence. Seules, les colonnes tip streaming et écoulements élongationnels sont renseignées par « oui » ou « non » selon s'il y a ou non présence de ces phénomènes.

Tableau 23. Caractérisation qualitative des effets de la formulation sur l'écoulement diphasique dans le canal de mélange du dispositif CX600. Référence WPI3XG04. Les signes + ou – représentent des valeurs supérieures ou inferieures à la référence. Oui et Non dans les deux dernières colonnes font référence à la présence ou non de ces phénomènes. Seule la colonne « écoulements élongationnels » fait référence à l'élargissement du dispositif CX-E-600.

Solutions	*Polydis-persité*	*Taille des bulles*	*Circula-rité*	*fréquence de bullage*	*Vitesse moyenne des bulles*	*Tip streaming*	*Ecoulements élongationnels*
WPI3XG04	0	0	0	0	0	Oui	Oui
WPI3XG02	-	-	++	++	0	Oui	Oui
XG04	-	-	0	-	+	Non	Non
WPI3	+	+	++	0	0	Non	Non
Glycérol 50%	-	++	-	-	+	Non	Non
Eau	++	+	++	-	-	Non	Non
CAS3XG04	0	--	0	+	0	Probable	Oui
WPI3XG04-NaCl	++	-	+	+	0	Oui	Oui

4.7 Conclusion

L'étude menée dans cette quatrième partie a conduit principalement à l'identification des rôles clés joués par les WPI ainsi que la gomme xanthane dans les caractéristiques de l'écoulement diphasique pour nos solutions modèles à base de ces deux biopolymères. D'abord, l'analyse de l'écoulement diphasique pour la solution XG04 a mis en évidence le rôle majeur des protéines dans l'établissement du mécanisme tip streaming (figure 164) observé dans le microcanal de mélange. En absence de protéines, les bulles traversant la solution viscoélastique XG04 ont présenté la même forme de larmes que celles observées dans la solution WPI3XG04, mais, malgré les forts cisaillements, elles n'ont jamais présenté

le détachement systématique de petites bulles satellites caractéristiques de ce mécanisme de fractionnement.

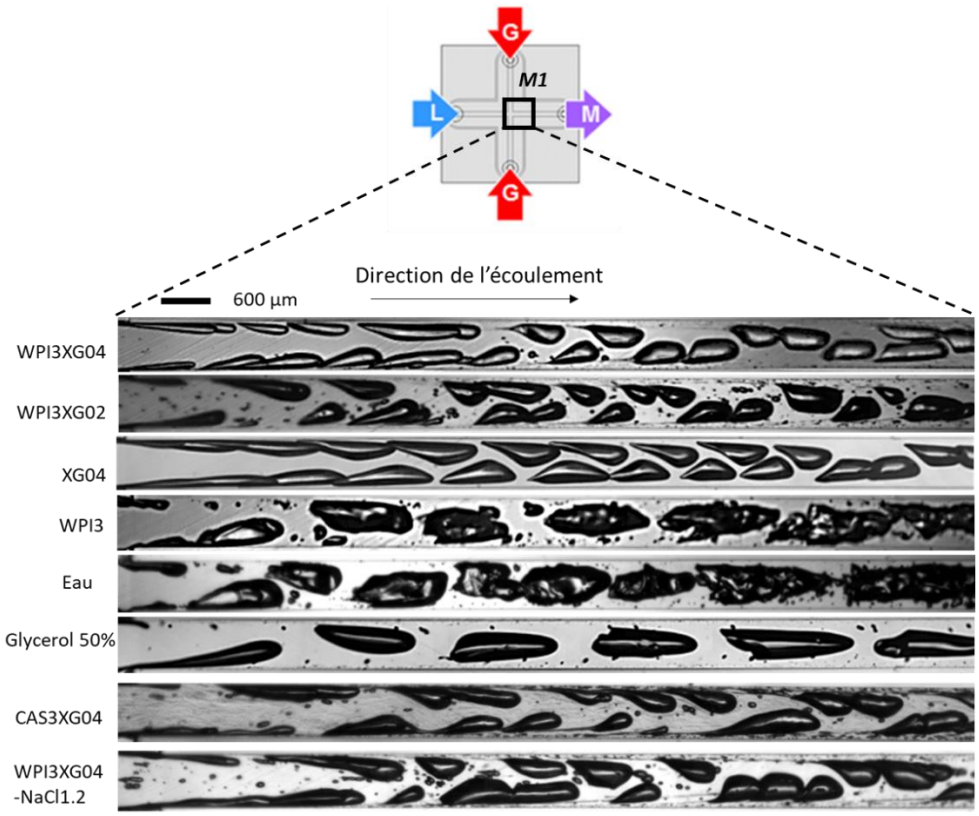


Figure 164. Compilation des visualisations du train de bulles dans le microcanal de mélange (zone M1) du dispositif CX600 à Q_{vL} = 11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1} sauf CAS3XG04 (Q_{vL} = 10,6 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}).

De façon similaire, la comparaison de la solution WPI3 avec la solution modèle WPI3XG02 a mis en évidence la stabilisation de la forme des bulles par la présence du xanthane (figure 164). Les bulles traversant la solution WPI3XG02 n'ont jamais été très déformées au sein du microcanal de mélange (à part le petit filament observé à l'arrière) malgré des forces inertielles significatives et des nombres de Reynolds de l'ordre de 3000. En revanche, les bulles dans la solution WPI3 en présence de nombres de Reynolds similaires ont été radicalement déformées. Ce résultat est d'autant plus significatif qu'aux conditions étudiées, le taux de cisaillement apparent dans le canal de mélange est de l'ordre de 10^5 s^{-1}. A ce taux de cisaillement, la viscosité de la solution WPI3XG02 (1,5 mPa.s) est très proche de celle de de la solution WPI3 (1,4 mPa.s) et c'est donc le caractère élastique des solutions à base de xanthane qui est révélé, même lorsque la viscosité de WPI3XG02 tend vers celle du deuxième plateau newtonien.

L'analyse des bulles dans l'élargissement pour les solutions WPI3 et XG04 a montré aussi une situation particulièrement intéressante (figure 165). En effet, dans l'élargissement les bulles circulant au sein des solutions XG04 et WPI3, n'ont jamais subi les fortes élongations observées dans le cas des bulles au sein des solutions contenant ces deux biopolymères (WPI3XG04 et WPI3XG02). Cela indique qu'un changement de géométrie par lui-même ne serait pas suffisant pour renforcer le fractionnement dans ce type de singularité et que le fractionnement intensifié observé dans l'élargissement résulte en fait de l'interaction de deux paramètres, la formulation de la solution moussante et la géométrie du dispositif.

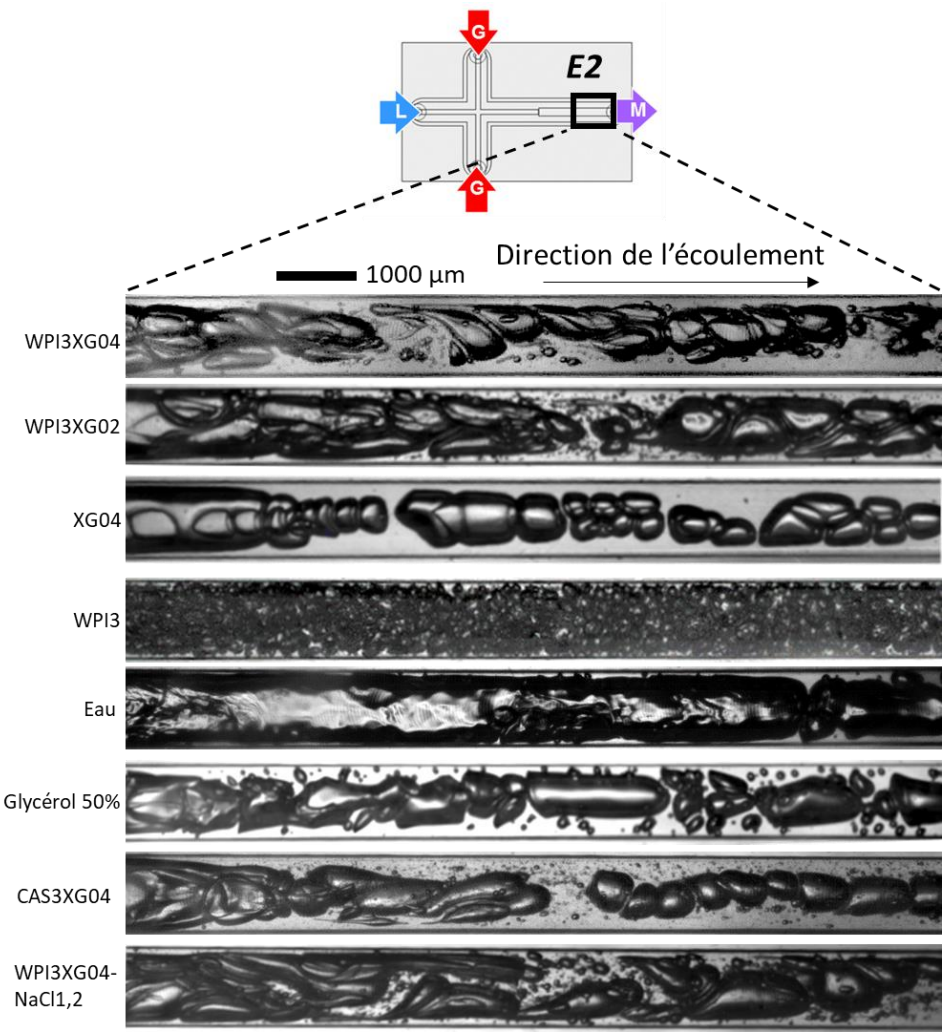


Figure 165. Compilé des visualisations du train de bulles dans l'élargissement (zone E2) du dispositif CX-E-600 pour toutes les solutions à Q_{vL} = 3 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1} sauf CAS3XG04 (Q_{vL} = 2,6 L.h^{-1}-Q_{mG} = 5 g.h^{-1}).

Conclusions et Perspectives

Dans cette étude nous nous sommes intéressés à l'utilisation des microcanaux pour une opération de foisonnement de solutions modèles à des débits liquides et fractions de vide s'approchant des conditions propres des applications agroalimentaires. Nous nous sommes basés sur les connaissances développées lors d'une étude précédente (Laporte, 2014), menée au sein du laboratoire GEPEA, et portant entre autres sur l'utilisation des technologies microfluidiques pour la production de mousses alimentaires.

En vue d'améliorer le dimensionnement de microsystèmes permettant le foisonnement, nous nous sommes concentrés sur l'apport de connaissances nouvelles sur la caractérisation de la typologie de l'écoulement diphasique et sur la mise en évidence des mécanismes de déformation et fractionnement des interfaces gaz-liquides siégeant à l'intérieur de différentes géométries de microcanaux. Cet aspect a été traité, d'un point de vue méthodologique, en se basant sur l'observation de l'écoulement dans les microcanaux, à l'aide d'une caméra rapide. Une grande partie des observations a été reliée avec les caractéristiques de la mousse issue du procédé. Nous nous sommes donc intéressés aux interactions procédés/formulation sur des propriétés, principalement rhéologiques et parfois de stabilité des mousses obtenues.

Pour nos expériences, quatre géométries différentes de microcanaux ont été utilisées. Parmi ces géométries, une géométrie de référence, configuration la plus simple, consistait dans un arrangement en croix des canaux carrés ayant un diamètre hydraulique de 600 µm (CX600). Les autres géométries possèdent toutes la même géométrie de base en croix, avec des microcanaux carrés ayant des diamètres hydrauliques de 600 µm, mais à laquelle une ou plusieurs singularités géométriques ont été ajoutées dans le canal de sortie du train de bulles. Nous avons intégré dans l'une des géométries un simple élargissement ayant un diamètre hydraulique de 1000 µm (CX-E-600). Un second microsystème comporte deux coudes en plus de l'élargissement (CX-C-600) et un troisième microsystème comporte une déformation sinusoïdale avec un rayon de courbure de 1 cm dans un canal de diamètre hydraulique 600 µm (CX-S-600).

Cette étude avait pour but de confirmer et de mieux comprendre la diminution progressive de la taille des bulles générées dans la croix, au cours de leur traversée du procédé complet ; phénomène observé précédemment par Laporte (2014) mais qui resté non élucidé. Même si ce même auteur avait émis l'hypothèse que certaines singularités géométriques rencontrées par le train des bulles le long du procédé, contribuent à ce

fractionnement. D'où l'importance du présent travail pour tester ces différentes configurations géométriques. L'un des designs a été imaginé précisément afin de pouvoir visualiser l'effet du port de sortie des microsystèmes, présentant un coude à angle droit couplé à un élargissement.

Quant aux solutions modèles utilisées dans cette étude, elles étaient principalement préparées à partir d'isolats de protéines sériques (WPI) et de la gomme xanthane (XG). Cependant, d'autres solutions ont également été testées afin d'évaluer l'effet de la formulation sur la typologie de l'écoulement ; elles contenaient uniquement du xanthane, ou des isolats de protéines sériques, du glycérol, ou encore du caséinate de sodium avec du xanthane et enfin des isolats de protéines sériques avec du xanthane et NaCl.

Grâce à l'implémentation des capteurs de pression, nous avons pu déterminer avec une bonne précision les transitions entre les limites des régimes d'écoulement dispersé et à poches pour les mousses en sortie, mais nous avons aussi pu proposer de représentations de ces limites au niveau des microcanaux. Ceci permet d'avoir une référence sur les fractions de vide et donc l'état de la « mousse » au niveau de dispositifs microfluidiques. Les effets de certains paramètres sur la position de ces courbes limites ont également été évalués. Nous avons notamment pu vérifier que l'augmentation de la viscosité d'une solution décale la transition entre les régimes vers des fractions de vide plus petites, phénomène déjà décrit par Laporte (2014). Ceci est important au regard des applications visées, car une augmentation de la viscosité va permettre d'améliorer d'un côté la stabilité des mousses, mais limitera au même temps les fractions de vide maximales atteignables. Nous avons également montré l'effet d'un rétrécissement du diamètre hydraulique sur ces courbes limites. Une diminution du diamètre hydraulique du microcanal a entrainé principalement une difficulté d'incorporation correcte du gaz dans la phase continue. Enfin, nous avons proposé un modèle empirique permettant de prévoir la fraction maximale atteignable aussi bien au sein des microcanaux qu'en sortie, pour les deux dispositifs testés avec des diamètres hydrauliques différents (CX600 et CX500).

En vue d'analyser la typologie de l'écoulement diphasique dans notre procédé, nous avons optimisé l'installation, mais aussi les conditions d'acquisition rapide des images dans les microcanaux. Nous avons également utilisé un autre système d'acquisition d'image afin de visualiser et caractériser les bulles dans les mousses en sortie. La mise en place des

protocoles d'acquisition et de traitement d'images dans les différentes parties du procédé a permis d'en tirer des informations sur l'évolution des caractéristiques des bulles et sur l'identification de plusieurs phénomènes de fractionnement de ces bulles. La figure 166 montre un exemple des visualisations de l'écoulement diphasique effectuées à différents endroits de l'installation en utilisant un de nos dispositifs (CX-E-600).

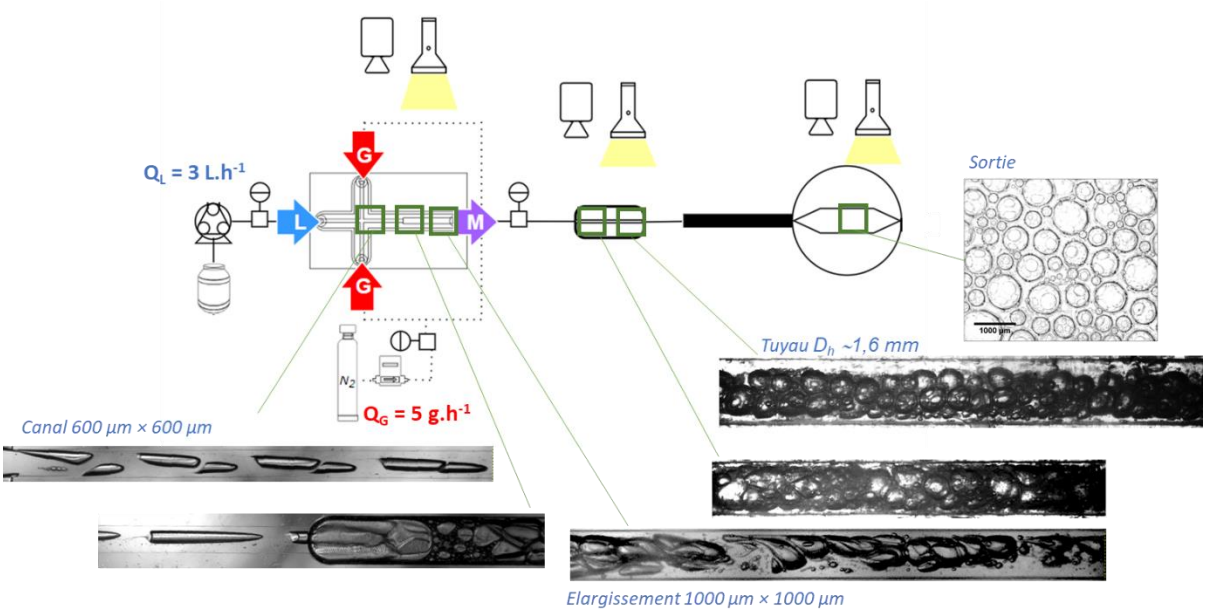


Figure 166. Visualisations de l'écoulement diphasique gaz-liquide à différents endroits du procédé. Dispositif microfluidique employé, CX-E-600.

L'étude de l'écoulement dans le microcanal de mélange du dispositif CX600 a permis de mettre en évidence l'effet d'une augmentation du débit sur la taille et la polydispersité des bulles, mais aussi sur le régime de formation de ces bulles. En particulier, on a pu atteindre un régime de formation de bulles de type *jetting*, ce qui finalement, conduit à des bulles plus petites mais aussi plus polydisperses comme signalé par Utada *et al.*, (2008) et Muijlwijk *et al.* (2016a).

La déformation des interfaces a également été étudiée dans ce microcanal de mélange. Nous avons pu concrètement montrer qu'il existe un mécanisme d'érosion des bulles de type *tip streaming*. L'établissement de ce mécanisme de fractionnement dans nos conditions expérimentales serait lié à la formation de gradients de concentrations de protéines dans l'interface, eux mêmes inhérents à une échelle de temps de formation de l'interface trop faible vis-à-vis des échelles de temps de l'adsorption des protéines. Les forts cisaillements que subissent les bulles près des parois du microcanal sont aussi susceptibles de favoriser ce mécanisme.

Les essais d'imagerie rapide au sein des différentes singularités géométriques des dispositifs CX-E-600, CX-C-600 et CX-S-600, avec les solutions modèles à base de WPI et XG, ont permis de mettre en évidence plusieurs phénomènes intéressants. Malgré de fortes déformations dues aux forces centrifuges, les bulles traversant le canal sinusoïdal du dispositif CX-S-600 n'ont jamais subi de fractionnement. Concernant la présence des coudes couplés à l'élargissement du canal (CX-C-600), nous avons pu constater que la présence d'un premier coude contribue au fractionnement, surtout à de forts débits par plaquage et déformation des bulles contre la paroi du canal. Cependant, la présence d'un deuxième coude favorise plutôt la coalescence des bulles, ce qui impacte négativement les propriétés de la mousse en sortie. L'étude de l'effet du passage des bulles par un premier coude a permis de donner du sens à l'hypothèse avancée par Laporte (2014) sur le fait que le changement de direction à 90° du port de sortie du dispositif de base (figure 167), aurait un impact sur le fractionnement des bulles.

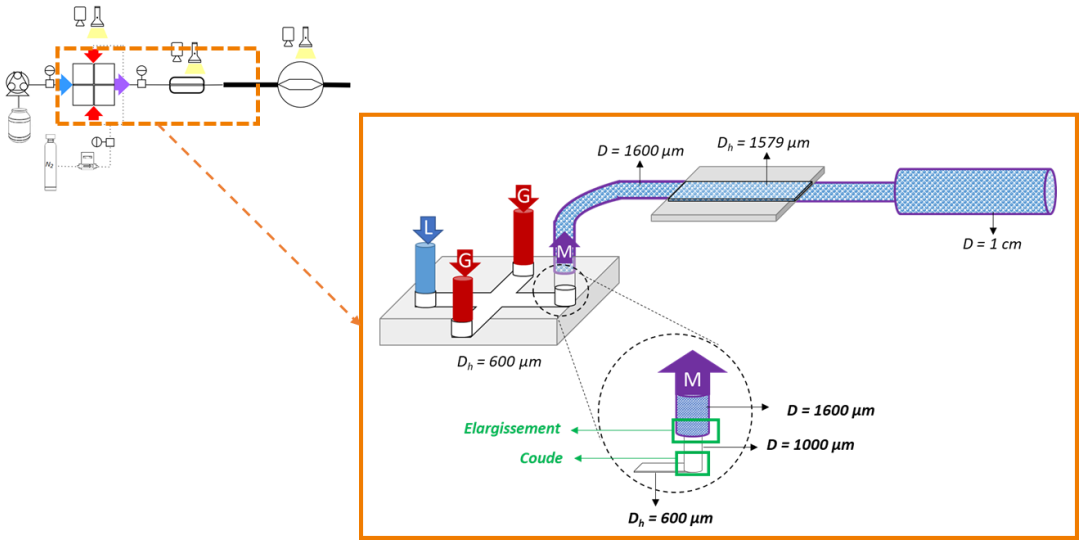


Figure 167. Schéma sur les caractéristiques géométriques du port de sortie des dispositifs microfluidiques.

En ce qui concerne la présence d'un élargissement simple, une étude plus approfondie sur cette singularité a révélé la présence de plusieurs phénomènes remarquables. Nous avons ainsi pu observer de fortes déformations et des fractionnements de type binaire dans l'élargissement ; mécanismes bien différents du phénomène *tip streaming* visualisé dans le canal de mélange de la croix. Ces fortes déformations et fractionnements de type binaire sont le résultat d'écoulements secondaires locaux, provoqués par l'élargissement, comme décrit

pour les macro et les microconduits (Çengel & Cimbala, 2014 ; Rocha *et al.*, 2007 ; Peixinho & Besnard, 2013).

Dans notre cas, l'élargissement s'accompagne d'une marche, c'est-à-dire que le côté supérieur du canal de mélange dans la croix est aligné au côté supérieur de l'élargissement. Les marches génèrent habituellement des recirculations importantes et donc des écoulements aux composantes davantage tridimensionnelles. D'autre part, dans le canal élargi la vitesse moyenne est plus faible et le temps de séjour est donc plus long que dans le canal de mélange. Les protéines ont ainsi plus de temps pour couvrir les interfaces. En conséquence, au moment de l'apparition de ces écoulements secondaires, les interfaces seraient plus saturées et la tension de surface plus faible conduisant à un type de fractionnement différent du *tip streaming*.

Ce fractionnement intensifié dans le dispositif CX-E-600 a permis d'obtenir des mousses en sortie avec des bulles plus petites et des textures plus fermes comparativement à celles obtenues avec les autres dispositifs. Ce résultat pourrait s'avérer être intéressant pour des applications industrielles visant à renforcer certaines caractéristiques texturales. L'ensemble des mécanismes de fractionnements identifiés pour nos solutions modèles sont résumés dans la figure 168.

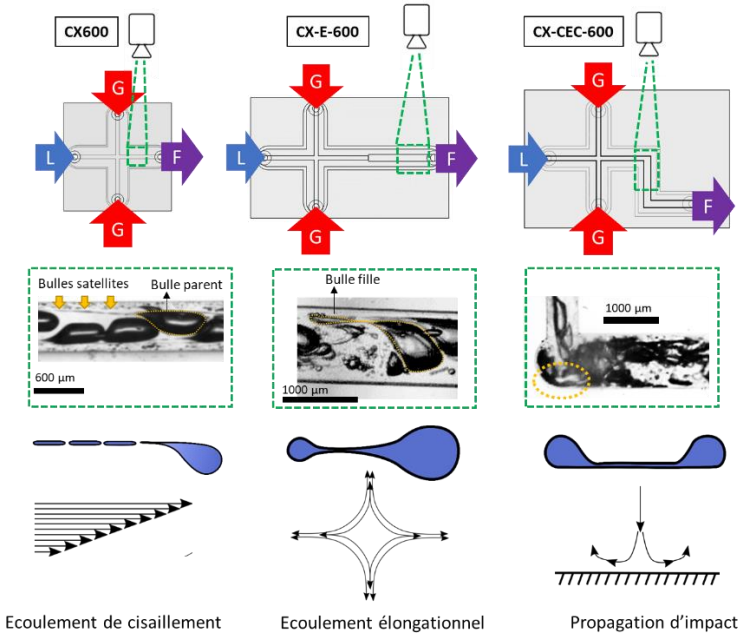


Figure 168. Mécanismes de fractionnement identifiés dans nos dispositifs microfluidiques en utilisant des solutions à basse d'isolats de protéines sériques (WPI) et de la gomme xanthane (XG) à des débits dans la gamme 3 à 20 $L.h^{-1}$.

Nous avons aussi proposé dans cette étude, une analyse de la déformation des interfaces en utilisant la courbe de Grace (Grace, 1982), représentation largement utilisée dans l'étude des systèmes dispersés. Cette analyse a cependant mis en évidence que les particularités de notre étude, notamment les effets collectifs (présence de plusieurs bulles) nous rapprochent plus des conclusions de Janssen et Meijer (1993) et Stegeman *et al.* (2008) sur le fait que cette courbe de Grace ne s'appliquerait pas adéquatement aux conditions rencontrées dans des procédés industriels. Finalement, en se basant sur l'ensemble des résultats obtenus avec les dispositifs CX600 et CX-E-600, nous avons proposé une équation empirique pour la description de la taille des bulles à l'intérieur du canal de mélange.

L'étude de l'effet de la formulation sur l'écoulement diphasique a d'abord permis de préciser le rôle crucial des biomolécules choisies comme tensioactif et épaississant. L'évaluation du train de bulles d'une solution contenant seulement du XG, et donc sans protéines, a démontré le rôle essentiel de celles-ci dans l'apparition du mécanisme de fractionnement *tip streaming*. En effet, les bulles formées dans la solution sans protéines, n'ont pas présenté ce phénomène de fractionnement même si les caractéristiques de l'écoulement (fort cisaillement) ont contribué à la déformation des interfaces.

A son tour, l'écoulement en présence d'une solution contenant seulement le WPI, et donc sans xanthane, a révélé le rôle stabilisant du xanthane dès la formation des bulles. Ce résultat est assez surprenant compte tenu du comportement quasi newtonien des solutions de xanthane aux taux de cisaillements caractéristiques dans le microcanal de mélange ($\sim 10^5\ s^{-1}$). Ceci implique qu'il existerait, en dépit de ce comportement newtonien, des effets élastiques significatifs qui se sont avérés être essentiels pour la stabilisation de la forme des bulles en présence de forces inertielles importantes. Il faudrait pour approfondir cette problématique s'intéresser à la détermination des champs locaux de vitesse afin d'évaluer plus finement, la viscosité apparente. En effet, dans cette étude, on s'est contenté d'une évaluation très moyennée et donc grossière du gradient de vitesse.

Finalement, le fait d'avoir modifié notre formulation en remplaçant des protéines globulaires (WPI) par des protéines à structure plus ouverte (caséinates de sodium) semblait montrer que des mécanismes différents de fractionnement des interfaces siégeraient dans ce cas au sein du canal de mélange. En effet, la structure plus ouverte de caséinates permettrait

de réduire les temps d'adsorption vers l'interface. Les gradients de concentration seraient par la suite plus faibles et des mécanismes de fractionnement différents du *tip streaming* se mettraient en place ; quoi qu'à ce stade, l'existence de tip streaming ne soit pas exclu en tant que mécanisme complémentaire. Il existerait donc différents mécanismes de fractionnement selon la structure ou les propriétés des tensioactifs mis en œuvre. Cependant, ce sont des constatations préliminaires qui nécessitent des vérifications complémentaires.

Plusieurs pistes intéressantes ont émergé au cours de cette étude. D'abord, comme indiqué dans le paragraphe précédent, une étude plus systématique et approfondie de l'effet des différentes molécules tensioactives permettrait d'identifier le rôle de leurs propriétés spécifiques sur la déformation des interfaces à hauts débits dans les microcanaux. D'autres modifications de la formulation intéressantes à évaluer seraient par exemple l'utilisation de sirop de glucose ou d'autres polysaccharides comme la gomme guar et la pectine, communément utilisés pour des applications de foisonnement alimentaires (Narchi *et al.*, 2007 ; Narchi *et al.*, 2009) mais présentant un comportement rhéologique différent du xanthane.

Etant donnée la viscosité très élevée des solutions à base d'hydrocolloïdes, il serait intéressant d'effectuer une modification de la méthodologie afin de diminuer les pulsations. Dans nos expériences, une pompe à trois pistons a été utilisée pour l'injection des solutions à base de gomme xanthane qui avaient des viscosités significativement élevées au repos, ce qui a donné lieu à l'apparition de pulsations lors du pompage. En effet les pompes à pistons sont des pompes de type volumétrique à fonctionnement alternatif lesquelles ont le désavantage de pouvoir présenter des pulsations (Tackett *et al.*, 2008). L'objectif serait donc, soit d'utiliser un réservoir pressurisé pour l'injection du liquide soit, si possible, de sélectionner une pompe plus appropriée pour la manipulation de ces solutions.

D'autres pistes intéressantes concernent idéalement l'exploitation de systèmes de visualisation ayant un meilleur couple résolution/vitesse ainsi qu'une optimisation du système optique périphérique (objectifs, bagues allonges et adaptateurs). Cette démarche permettrait non seulement d'améliorer la qualité des images, mais aussi éventuellement de pouvoir observer des bulles de taille inférieure à 40 µm ce qui représentait à peu près notre limite. Ceci est d'autant plus important que les bulles satellites détachées par *tip streaming* ont souvent des tailles inferieures à quelques dizaines de micromètres voire même de l'ordre de

200 nm (Jeong *et al.*, 2012 ; Moyle *et al.*, 2012). L'acquisition des images pourrait aussi bénéficier de nouveaux équipements de rétroéclairages comme l'*EFFI-Spot* de la société *Effilux* qu'on a eu l'occasion de tester et qui permettait un éclairage plus homogène et donc l'obtention d'images plus appropriées pour un traitement automatique en utilisant des scripts.

Un autre aspect des visualisations sur lequel il serait avantageux de continuer à travailler serait l'optimisation de la fréquence d'acquisition des images avec la caméra rapide. Nous avons utilisé pour la plupart de notre étude une fréquence d'acquisition de 5000 images par seconde, ce qui permettait d'avoir un aperçu général du train des bulles. Cependant, on n'arrivait pas à suivre des bulles sur plus de deux ou trois photos successives en raison des hautes vitesses de celles-ci. Des visualisations complémentaires menées à la fin de cette étude en utilisant des fréquences de 20 000 et 40 000 images par seconde, ont permis de suivre les comportements individuels de bulles sur plusieurs photos successives. Grâce à cela nous avons pu valider finalement la présence de *tip streaming* et vérifier les ordres de grandeur de la fréquence de bullage et des vitesses de bulles préalablement mesurées. Il serait donc convenable d'approfondir nos travaux en utilisant des fréquences élevées de 40 000 (ou plus) images par seconde. Avec notre système actuel, cette augmentation implique une perte en résolution mais permet en même temps de ralentir artificiellement la vitesse des bulles et ainsi mieux observer leurs mouvements. L'ideal serait d'installer une caméra plus rapide et plus résolue mais cela nécessitera de trouver les financements correspondant à un tel équipement.

Diminuer artificiellement la vitesse des bulles en augmentant la fréquence d'acquisition permettrait d'envisager l'utilisation d'algorithmes PIV (Particle Image Velocity). En effet, Les algorithmes PIV nécessitent que les bulles ne bougent pas de plus de 10 à 30 pixels entre deux images. L'utilisation de ces algorithmes conduirait à une automatisation des mesures des champs de vitesse des bulles dans le canal de mélange. Grace à cette augmentation de la fréquence d'acquisition, on pourrait aussi envisager une description plus précise de la cinétique de formations des bulles dans la jonction des fluides, en tirer une modélisation et la comparer avec des études effectuées dans le cadre de la microfluidique traditionnelle. Ces études modélisent souvent la taille des bulles formées en fonction des dimensions des canaux, du rapport des débits et de l'évolution de l'étranglement qui relie la bulle en formation au fil gazeux duquel elle se détache finalement.

Enfin, bien que l'aptitude des microcanaux à produire des mousses soit démontrée, il existe encore une appréhension par rapport à son utilisation dans les milieux de l'industrie agro-alimentaire en raison principalement de rendements relativement faibles obtenus avec un seul dispositif. Il est donc conseillé de mener des études approfondies envisageant l'utilisation de plusieurs dispositifs en parallèle pour pouvoir offrir des débits de production qui susciteraient un plus grand intérêt de la part des industriels.

Annexes

Annexe A

Tableaux des mesures hydrodynamiques pour les conditions présentées dans la partie 2 des résultats. Les pressions sont des pressions relatives à exception des pressions en sortie (p_{atm}, $p_{s\ exp}$, $p_{s\ théo}$) lesquelles sont présentées en valeur absolue.

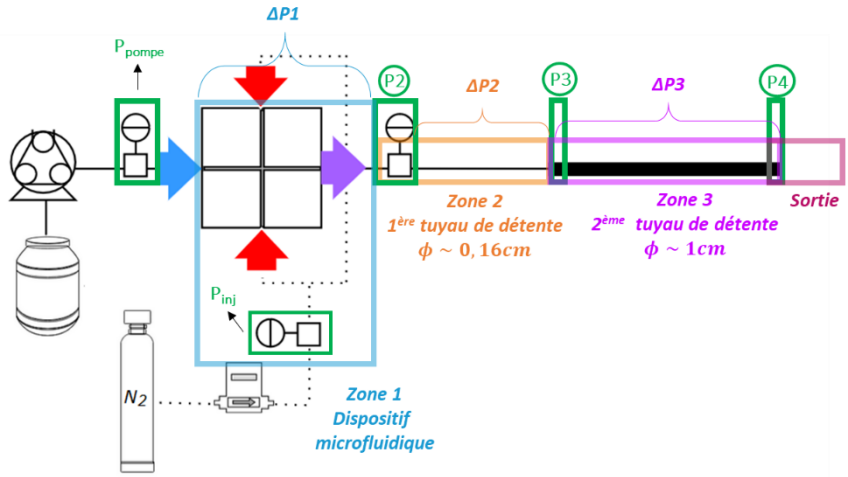


Figure 169. Pressions et chutes de pressions en configuration d'écoulement diphasique.

Tableau A1 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 1 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG04

P_{pompe} bar	Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	Q_{mG} g.h^{-1}	p_{inj} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_1 bar
2,05	3,0	2,17	5,00	1,53	1,70	1,31	0,377	2,57E+04	3,38E-03	0,16	373	60	0,48
3,89	6,9	5,32	13,00	2,70	3,02	2,33	0,305	6,30E+04	2,69E-03	0,31	1153	358	1,00
6,37	11,0	8,46	21,60	3,83	3,85	2,97	0,260	1,00E+05	2,49E-03	0,46	1981	907	1,53
7,78	13,7	10,56	26,50	4,65	4,04	3,12	0,228	1,25E+05	2,42E-03	0,56	2545	1413	1,97
9,22	16,4	12,66	31,00	5,52	4,09	3,16	0,200	1,50E+05	2,37E-03	0,65	3113	2030	2,34
11,81	19,1	14,75	36,40	6,45	4,21	3,25	0,180	1,75E+05	2,34E-03	0,75	3684	2759	2,90

Tableau A2 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 2 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_2 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_2 bar
3,0	0,40	1,05	2,091	0,30	0,43	2,04E+03	1,33E-02	0,12	46	5	0,59
6,9	0,98	1,70	4,134	0,59	0,38	4,99E+03	7,34E-03	0,16	205	32	0,79
11,0	1,56	2,30	5,626	0,80	0,34	7,94E+03	5,62E-03	0,19	426	81	0,96
13,7	1,95	2,68	6,192	0,88	0,31	9,91E+03	5,01E-03	0,21	596	127	1,07
16,4	2,34	3,18	6,379	0,91	0,28	1,19E+04	4,59E-03	0,23	779	182	1,18
19,1	2,73	3,55	6,883	0,98	0,26	1,39E+04	4,29E-03	0,25	974	247	1,28

Tableau A3 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 3 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_3 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_3 bar
3,0	0,01	0,46	2,933	0,01	0,51	7,95	1,26	0,27	0,08	0,02	0,25
6,9	0,02	0,88	5,921	0,02	0,46	19,49	0,59	0,31	0,40	0,13	0,29
11,0	0,04	1,27	8,157	0,03	0,43	31,02	0,40	0,33	0,95	0,32	0,31
13,7	0,05	1,52	9,045	0,03	0,40	38,71	0,33	0,35	1,43	0,49	0,32
16,4	0,06	1,88	9,245	0,03	0,36	46,41	0,28	0,36	2,00	0,71	0,33
19,1	0,07	2,11	10,056	0,04	0,34	54,10	0,25	0,36	2,65	0,97	0,34

Tableau A4 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique en sortie pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_{atm} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	α_{exp} -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -
3,0	0,01	1,01	4,258	0,02	0,57±0,02	7,95	1,26	0,27	0,08	0,02
6,9	0,02	1,01	11,071	0,04		19,49	0,59	0,31	0,40	0,13
11,0	0,04	1,01	18,395	0,07		31,02	0,40	0,33	0,95	0,32
13,7	0,05	1,01	22,568	0,08		38,71	0,33	0,35	1,43	0,49
16,4	0,06	1,01	26,400	0,09		46,41	0,28	0,36	2,00	0,71
19,1	0,07	1,01	30,999	0,11		54,10	0,25	0,36	2,65	0,97

Tableau A5 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 1 pour le dispositif CX500 et la solution WPI3XG04

P_{pompe} bar	Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	Q_{mG} g.h^{-1}	p_{inj} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_1 bar
10,12	11,0	12,18	21,60	5,15	3,00	3,33	0,215	1,73E+05	2,34E-03	0,62	2533	1568	2,80
12,36	13,7	15,20	26,50	6,33	3,09	3,43	0,184	2,16E+05	2,29E-03	0,76	3221	2442	3,53
16,13	16,4	18,22	31,00	7,47	3,13	3,47	0,160	2,59E+05	2,26E-03	0,90	3914	3508	4,32
20,01	19,1	21,24	36,40	8,70	3,20	3,56	0,144	3,02E+05	2,24E-03	1,03	4608	4768	5,15

Tableau A6 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 2 pour le dispositif CX500 et la solution WPI3XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_2 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_2 bar
11,0	1,56	2,35	5,492	0,78	0,33	7,94E+03	5,62E-03	0,19	426	81	0,96
13,7	1,95	2,80	5,943	0,85	0,30	9,91E+03	5,01E-03	0,21	596	127	1,07
16,4	2,34	3,15	6,368	0,91	0,28	1,19E+04	4,59E-03	0,23	779	182	1,18
19,1	2,73	3,55	6,822	0,97	0,26	1,39E+04	4,29E-03	0,25	973	247	1,28

Tableau A7 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 3 pour le dispositif CX500 et la solution WPI3XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_3 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_3 bar
11,0	0,04	1,32	7,907	0,03	0,42	31,02	0,40	0,33	0,95	0,32	0,31
13,7	0,05	1,64	8,550	0,03	0,38	38,71	0,33	0,35	1,43	0,49	0,32
16,4	0,06	1,85	9,257	0,03	0,36	46,41	0,28	0,36	2,00	0,71	0,33
19,1	0,07	2,11	9,964	0,04	0,34	54,10	0,25	0,36	2,65	0,97	0,34

Tableau A8 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique en sortie pour le dispositif CX500 et la solution WPI3XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_{atm} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	α_{exp} -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -
11,0	0,04	1,01	18,231	0,06	0,57±0,02	31,02	0,40	0,33	0,95	0,32
13,7	0,05	1,01	22,366	0,08		38,71	0,33	0,35	1,43	0,49
16,4	0,06	1,01	26,164	0,09		46,41	0,28	0,36	2,00	0,71
19,1	0,07	1,01	30,722	0,11		54,10	0,25	0,36	2,65	0,97

Tableau A9 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 1 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG02

P_{pompe} bar	Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	Q_{mG} g.h^{-1}	p_{inj} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_1 bar
4,79	11,0	8,46	21,60	3,08	4,61	3,56	0,296	1,00E+05	1,52E-03	0,29	3214	945	13,46
6,21	13,7	10,56	26,50	3,93	4,69	3,62	0,255	1,25E+05	1,48E-03	0,36	4122	1472	17,20
8,27	16,4	12,66	31,00	4,71	4,74	3,66	0,224	1,50E+05	1,45E-03	0,42	5039	2115	22,13
10,17	19,1	14,75	36,40	5,60	4,82	3,72	0,201	1,75E+05	1,43E-03	0,48	5961	2874	26,84

Tableau A10 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 2 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG02

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_2 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_2 bar
11,0	1,56	1,74	6,871	0,98	0,39	7,94E+03	3,13E-03	0,11	757	85	0,54
13,7	1,95	2,21	7,194	1,03	0,34	9,91E+03	2,83E-03	0,13	1044	132	0,61
16,4	2,34	2,50	7,726	1,10	0,32	1,19E+04	2,62E-03	0,14	1350	190	0,67
19,1	2,73	2,91	8,109	1,16	0,30	1,39E+04	2,47E-03	0,15	1672	258	0,74

Tableau A11 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 3 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG02

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_3 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_3 bar
11,0	0,04	1,13	8,829	0,03	0,45	31,02	0,14	0,13	2,62	0,33	0,11
13,7	0,05	1,50	9,216	0,03	0,40	38,71	0,12	0,13	3,88	0,52	0,12
16,4	0,06	1,69	10,036	0,04	0,38	46,41	0,10	0,14	5,35	0,74	0,12
19,1	0,07	2,00	10,557	0,04	0,36	54,10	0,09	0,14	7,01	1,01	0,13

Tableau A12 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique en sortie pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG02

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_{atm} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	α_{exp} -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -
11,0	0,04	1,01	18,642	0,07	0,57±0,02	31,02	0,40	0,33	0,94	0,31
13,7	0,05	1,01	22,871	0,08		38,71	0,33	0,35	1,42	0,49
16,4	0,06	1,01	26,754	0,09		46,41	0,28	0,36	1,98	0,70
19,1	0,07	1,01	31,415	0,11		54,10	0,25	0,36	2,62	0,96

Tableau A13 résumé des pressions et chutes de pressions pour l'écoulement diphasique dans le dispositif CX600 avec la solution WPI3XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	P_{pompe} bar	p_{inj} bar	ΔP_1 bar	p_2 bar	ΔP_2 bar	p_3 bar	ΔP_3 bar	$P_{S\ exp}$ bar	$P_{S\ théo}$ bar
3,0	2,05	1,53	0,48	1,05	0,59	0,46	0,25	1,22	1,01325
6,9	3,89	2,70	1,00	1,70	0,79	0,88	0,29	1,60	1,01325
11,0	6,37	3,83	1,53	2,30	0,96	1,27	0,31	1,97	1,01325
13,7	7,78	4,65	1,97	2,68	1,07	1,52	0,32	2,21	1,01325
16,4	9,22	5,52	2,34	3,18	1,18	1,88	0,33	2,56	1,01325
19,1	11,81	6,45	2,90	3,55	1,28	2,11	0,34	2,78	1,01325

Tableau A14 résumé des pressions et chutes de pressions pour l'écoulement diphasique dans le dispositif CX500 avec la solution WPI3XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	P_{pompe} bar	p_{inj} bar	ΔP_1 bar	p_2 bar	ΔP_2 bar	p_3 bar	ΔP_3 bar	$P_{S\ exp}$ bar	$P_{S\ théo}$ bar
11,0	10,12	5,15	2,80	2,35	0,96	1,32	0,31	2,02	1,01325
13,7	12,36	6,33	3,53	2,80	1,07	1,64	0,32	2,33	1,01325
16,4	16,13	7,47	4,32	3,15	1,18	1,85	0,33	2,53	1,01325
19,1	20,01	8,70	5,15	3,55	1,28	2,11	0,34	2,78	1,01325

Tableau A15 résumé des pressions et chutes de pressions pour l'écoulement diphasique dans le dispositif CX600 avec la solution WPI3XG02

Q_{vL} L.h^{-1}	P_{pompe} bar	p_{inj} bar	ΔP_1 bar	p_2 bar	ΔP_2 bar	p_3 bar	ΔP_3 bar	$P_{S\,exp}$ bar	$P_{S\,théo}$ bar
11,0	4,79	3,08	13,46	1,74	0,54	1,13	0,11	2,03	1,01325
13,7	6,21	3,93	17,20	2,21	0,61	1,50	0,12	2,40	1,01325
16,4	8,27	4,71	22,13	2,50	0,67	1,69	0,12	2,58	1,01325
19,1	10,17	5,60	26,84	2,91	0,74	2,00	0,13	2,89	1,01325

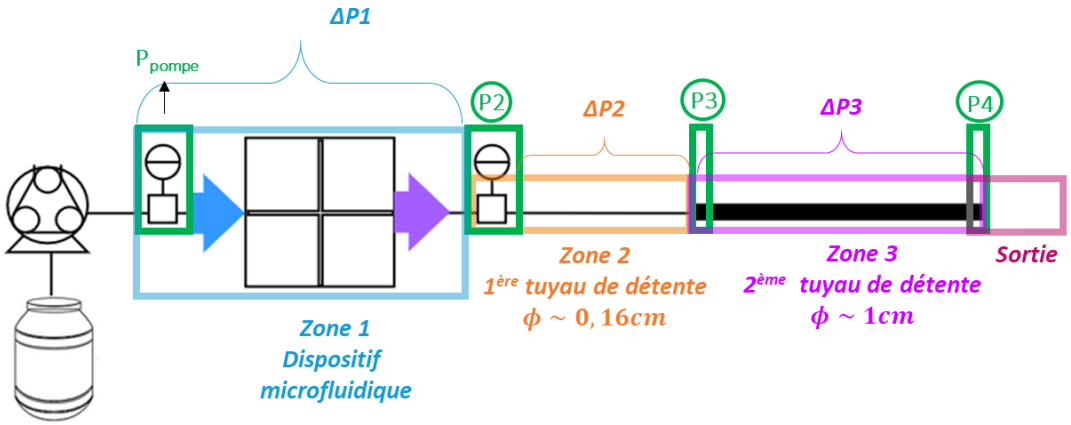


Figure 170 Pressions et chutes de pressions en configuration d'écoulement monophasique.

Tableau A16 résumé des pressions et chutes de pressions pour l'écoulement monophasique dans le dispositif CX600 avec la solution WPI3XG04. Seulement $P_{s\text{-}exp}$ et $P_{s\text{-}thèo}$ sont des pressions absolues.

Q_{vL} L.h^{-1}	P_{pompe} bar	ΔP_1 bar	p_2 bar	ΔP_2 bar	p_3 bar	ΔP_3 bar	$P_{S\,exp}$ bar	$P_{S\,théo}$ bar
3,0	1,76	1,04	0,72	0,59	0,13	0,25	0,89	1,01325
11,0	4,78	3,39	1,40	0,96	0,40	0,31	1,10	1,01325
13,7	6,33	4,60	1,73	1,07	0,61	0,32	1,30	1,01325
16,4	8,14	6,01	2,13	1,18	0,89	0,33	1,57	1,01325
19,1	10,36	7,80	2,56	1,28	1,19	0,34	1,87	1,01325

Tableau A17 résumé des pressions et chutes de pressions pour l'écoulement monophasique dans le dispositif CX500 avec la solution WPI3XG04. Seulement $P_{s\text{-}exp}$ et $P_{s\text{-}thèo}$ sont des pressions absolues.

Q_{vL} L.h^{-1}	P_{pompe} bar	ΔP_1 bar	p_2 bar	ΔP_2 bar	p_3 bar	ΔP_3 bar	$P_{S\,exp}$ bar	$P_{S\,théo}$ bar
3,0	2,45	1,73	0,72	0,59	0,13	0,25	0,89	1,01325
11,0	8,28	6,76	1,52	0,96	0,52	0,31	1,22	1,01325
13,7	10,44	8,78	1,66	1,07	0,54	0,32	1,24	1,01325
16,4	13,99	11,98	2,00	1,18	0,76	0,33	1,44	1,01325
19,1	18,18	15,98	2,20	1,28	0,84	0,34	1,51	1,01325

Annexe B

Tableaux des mesures hydrodynamiques pour les conditions présentées dans la partie 3 des résultats. Les pressions sont des pressions relatives à exception des pressions en sortie (p_{atm}, $p_{s\ exp}$, $p_{s\ théo}$) lesquelles sont présentées en valeur absolue.

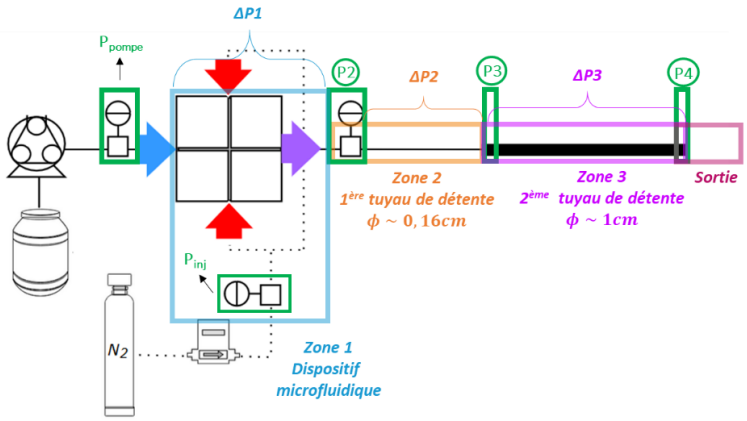


Tableau B1 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 1 pour le dispositif CX-E-600 et la solution WPI3XG04

P_{pompe} bar	Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	Q_{mG} g.h^{-1}	p_{inj} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_1 bar
3,74	3,0	2,17	5,00	2,32	1,29	0,99	0,314	2,57E+04	3,38E-03	0,16	373	60	1,12
7,86	6,9	5,32	12,00	4,18	1,98	1,53	0,223	6,30E+04	2,69E-03	0,31	1153	358	2,38
12,62	11,0	8,46	21,60	6,32	2,53	1,95	0,187	1,00E+05	2,49E-03	0,46	1981	907	3,82
16,57	13,7	10,56	23,00	7,49	2,32	1,79	0,145	1,25E+05	2,42E-03	0,56	2545	1413	4,49
20,48	16,4	12,66	31,00	9,16	2,61	2,02	0,138	1,50E+05	2,37E-03	0,65	3113	2030	5,52

Tableau B2 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans l'élargissement pour le dispositif CX-E-600 et la solution WPI3XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -
3,0	0,78	12,873	0,36	0,31	5,55E+03	6,88E-03	0,12	110	13
6,9	1,91	19,829	0,55	0,22	1,36E+04	4,32E-03	0,18	431	77
11,0	3,05	25,277	0,70	0,19	2,17E+04	3,59E-03	0,24	825	196
13,7	3,80	23,212	0,64	0,15	2,70E+04	3,33E-03	0,28	1109	305
16,4	4,56	26,150	0,73	0,14	3,24E+04	3,15E-03	0,31	1405	439

Tableau B3 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 2 pour le dispositif CX-E-600 et la solution WPI3XG04

Q_{vL}	U_L	p_2	Q_{vG}	U_G	$\alpha\ (p)$	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L	ΔP_2
L.h^{-1}	m.s^{-1}	bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	-	s^{-1}	Pa.s	-	-	-	bar
3,0	0,40	1,20	1,939	0,28	0,41	2,04E+03	1,33E-02	0,12	46	5	0,59
6,9	0,98	1,80	3,660	0,52	0,35	4,99E+03	7,34E-03	0,16	205	32	0,79
11,0	1,56	2,50	5,276	0,75	0,32	7,94E+03	5,62E-03	0,19	426	81	0,96
13,7	1,95	3,00	4,918	0,70	0,26	9,91E+03	5,01E-03	0,21	596	127	1,07
16,4	2,34	3,64	5,717	0,82	0,26	1,19E+04	4,59E-03	0,23	779	182	1,18

Tableau B4 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 3 pour le dispositif CX-E-600 et la solution WPI3XG04

Q_{vL}	U_L	p_3	Q_{vG}	U_G	$\alpha\ (p)$	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L	ΔP_3
L.h^{-1}	m.s^{-1}	bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	-	s^{-1}	Pa.s	-	-	-	bar
3,0	0,01	0,61	2,646	0,01	0,49	7,95	1,26	0,27	0,08	0,02	0,25
6,9	0,02	0,98	5,157	0,02	0,43	19,49	0,59	0,31	0,40	0,13	0,29
11,0	0,04	1,47	7,451	0,03	0,40	31,02	0,40	0,33	0,95	0,32	0,31
13,7	0,05	1,85	6,902	0,02	0,34	38,71	0,33	0,35	1,43	0,49	0,32
16,4	0,06	2,35	7,916	0,03	0,33	46,41	0,28	0,36	2,00	0,71	0,33

Tableau B5 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique en sortie pour le dispositif CX-E-600 et la solution WPI3XG04

Q_{vL}	U_L	p_{atm}	Q_{vG}	U_G	α_{exp}	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L
L.h^{-1}	m.s^{-1}	bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	-	s^{-1}	Pa.s	-	-	-
3,0	0,01	1,01	4,235	0,01		7,95	1,26	0,27	0,08	0,02
6,9	0,02	1,01	10,163	0,04		19,49	0,59	0,31	0,40	0,13
11,0	0,04	1,01	18,294	0,06	0,57±0,02	31,02	0,40	0,33	0,95	0,32
13,7	0,05	1,01	19,480	0,07		38,71	0,33	0,35	1,43	0,49
16,4	0,06	1,01	26,255	0,09		46,41	0,28	0,36	2,00	0,71

Tableau B6 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 1 pour le dispositif CX-E-600 et la solution WPI3XG02

P_{pompe}	Q_{vL}	U_L	Q_{mG}	p_{inj}	Q_{vG}	U_G	$\alpha\ (p)$	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L	ΔP_1
bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	g.h^{-1}	bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	-	s^{-1}	Pa.s	-	-	-	bar
2,72	3,0	2,17	5,00	1,83	1,54	1,19	0,354	2,57E+04	2,01E-03	0,10	623	62	1,00
12,21	11,0	8,46	21,60	5,78	2,78	2,15	0,202	1,00E+05	1,52E-03	0,29	3214	945	3,72
15,10	13,7	10,56	23,00	6,51	2,67	2,06	0,163	1,25E+05	1,48E-03	0,36	4122	1472	4,10
19,66	16,4	12,66	31,00	8,19	2,94	2,27	0,152	1,50E+05	1,45E-03	0,42	5039	2115	5,16
24,78	19,1	14,75	36,40	9,06	3,16	2,44	0,142	1,75E+05	1,43E-03	0,48	5961	2874	5,65

Tableau B7 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans l'élargissement pour le dispositif CX-E-600 et la solution WPI3XG02

Q_{vL}	U_L	Q_{vG}	U_G	$\alpha\ (p)$	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L
L.h^{-1}	m.s^{-1}	L.h^{-1}	m.s^{-1}	-	s^{-1}	Pa.s	-	-	-
3,0	0,78	1,540	0,43	0,35	5,55E+03	3,73E-03	0,07	201	13
11,0	3,05	2,781	0,77	0,20	2,17E+04	2,11E-03	0,15	1386	204
13,7	3,80	2,674	0,74	0,16	2,70E+04	1,98E-03	0,17	1847	318
16,4	4,56	2,944	0,82	0,15	3,24E+04	1,88E-03	0,20	2326	457
19,1	5,31	3,159	0,88	0,14	3,78E+04	1,81E-03	0,22	2816	621

Tableau B8 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 2 pour le dispositif CX-E-600 et la solution WPI3XG02

Q_{vL}	U_L	p_2	Q_{vG}	U_G	$\alpha\ (p)$	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L	ΔP_2
L.h^{-1}	m.s^{-1}	bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	-	s^{-1}	Pa.s	-	-	-	bar
3,0	0,40	0,83	2,376	0,34	0,46	2,04E+03	6,66E-03	0,06	91	6	0,29
11,0	1,56	2,06	6,148	0,88	0,36	7,94E+03	3,13E-03	0,11	757	85	0,54
13,7	1,95	2,41	5,882	0,84	0,30	9,91E+03	2,83E-03	0,13	1044	132	0,61
16,4	2,34	3,04	6,692	0,95	0,29	1,19E+04	2,62E-03	0,14	1350	190	0,67
19,1	2,73	3,41	7,200	1,03	0,27	1,39E+04	2,47E-03	0,15	1672	258	0,74

Tableau B9 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 3 pour le dispositif CX-E-600 et la solution WPI3XG02

Q_{vL}	U_L	p_3	Q_{vG}	U_G	α_{exp}	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L	ΔP_3
L.h^{-1}	m.s^{-1}	bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	-	s^{-1}	Pa.s	-	-	-	bar
3,0	0,01	0,53	2,837	0,01	0,50	7,95	0,41	0,09	0,23	0,02	0,08
11,0	0,04	1,45	7,653	0,03	0,41	31,02	0,14	0,13	2,62	0,33	0,11
13,7	0,05	1,71	7,381	0,03	0,35	38,71	0,12	0,13	3,88	0,52	0,12
16,4	0,06	2,24	8,330	0,03	0,34	46,41	0,10	0,14	5,35	0,74	0,12
19,1	0,07	2,51	9,037	0,03	0,32	54,10	0,09	0,14	7,01	1,01	0,13

Tableau B10 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique en sortie pour le dispositif CX-E-600 et la solution WPI3XG02

Q_{vL}	U_L	p_{atm}	Q_{vG}	U_G	$\alpha\ (p)$	$\dot{\gamma}_{app}$	μ_L	Ca_L	Re_L	We_L
L.h^{-1}	m.s^{-1}	bar	L.h^{-1}	m.s^{-1}	-	s^{-1}	Pa.s	-	-	-
3,0	0,01	1,01	4,315	0,02		7,95	0,41	0,09	0,23	0,02
11,0	0,04	1,01	18,642	0,07		31,02	0,14	0,12	2,62	0,31
13,7	0,05	1,01	19,850	0,07	x	38,71	0,12	0,13	3,88	0,49
16,4	0,06	1,01	26,754	0,09		46,41	0,10	0,13	5,35	0,70
19,1	0,07	1,01	31,415	0,11		54,10	0,09	0,14	7,01	0,96

Tableau B11 résumé des pressions et chutes de pressions pour l'écoulement diphasique dans le dispositif CX-E-600 avec la solution WPI3XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	P_{pompe} bar	p_{inj} bar	ΔP_1 bar	p_2 bar	ΔP_2 bar	p_3 bar	ΔP_3 bar	$P_{S\,exp}$ bar	$P_{S\,théo}$ bar
3,0	3,74	2,32	1,12	1,20	0,59	0,61	0,25	1,37	1,01325
6,9	7,86	4,18	2,38	1,80	0,79	0,98	0,29	1,71	1,01325
11,0	12,62	6,32	3,82	2,50	0,96	1,47	0,31	2,18	1,01325
13,7	16,57	7,49	4,49	3,00	1,07	1,85	0,32	2,54	1,01325
16,4	20,48	9,16	5,52	3,64	1,18	2,35	0,33	3,03	1,01325

Tableau B12 résumé des pressions et chutes de pressions pour l'écoulement diphasique dans le dispositif CX-E-600 avec la solution WPI3XG02

Q_{vL} L.h^{-1}	P_{pompe} bar	p_{inj} bar	ΔP_1 bar	p_2 bar	ΔP_2 bar	p_3 bar	ΔP_3 bar	$P_{S\,exp}$ bar	$P_{S\,théo}$ bar
3,0	2,72	1,83	1,00	0,83	0,29	0,53	0,08	1,46	1,01325
11,0	12,21	5,78	3,72	2,06	0,54	1,45	0,11	2,36	1,01325
13,7	15,10	6,51	4,10	2,41	0,61	1,71	0,12	2,61	1,01325
16,4	19,66	8,19	5,16	3,04	0,67	2,24	0,12	3,13	1,01325
19,1	24,78	9,06	5,65	3,41	0,74	2,51	0,13	3,40	1,01325

Tableau B13 résumé des pressions et chutes de pressions pour l'écoulement diphasique dans le dispositif CX600 avec la solution WPI3XG04 (repris de tableau A13)

Q_{vL} L.h^{-1}	P_{pompe} bar	p_{inj} bar	ΔP_1 bar	p_2 bar	ΔP_2 bar	p_3 bar	ΔP_3 bar	$P_{S\,exp}$ bar	$P_{S\,théo}$ bar
3,0	2,05	1,53	0,48	1,05	0,59	0,46	0,25	1,22	1,01325
6,89	3,89	2,70	1,00	1,70	0,79	0,88	0,29	1,60	1,01325
10,96	6,37	3,83	1,53	2,30	0,96	1,27	0,31	1,97	1,01325
13,68	7,78	4,65	1,97	2,68	1,07	1,52	0,32	2,21	1,01325
16,40	9,22	5,52	2,34	3,18	1,18	1,88	0,33	2,56	1,01325
19,12	11,81	6,45	2,90	3,55	1,28	2,11	0,34	2,78	1,01325

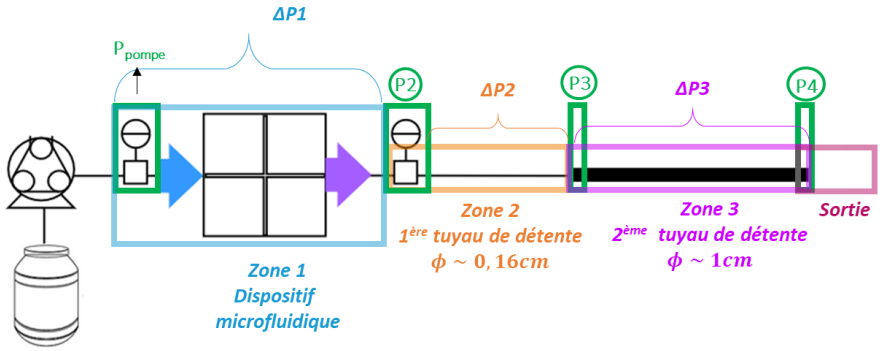


Tableau B14 résumé des pressions et chutes de pressions pour l'écoulement monophasique dans le dispositif CX-E-600 avec la solution WPI3XG04. Seulement $P_{s\text{-}exp}$ et $P_{s\text{-}thèo}$ sont des pressions absolues.

Q_{vL}	P_{pompe}	ΔP_1	p_2	ΔP_2	p_3	ΔP_3	$P_{S\ exp}$	$P_{S\ théo}$
L.h^{-1}	bar	bar	bar	bar	bar	bar	bar	bar
3,0	2,74	2,09	0,65	0,59	0,06	0,25	0,82	1,01325
11,0	10,26	8,86	1,40	0,96	0,41	0,31	1,11	1,01325
13,7	11,47	9,98	1,49	1,07	0,37	0,32	1,06	1,01325
16,4	16,89	14,98	1,91	1,18	0,66	0,33	1,34	1,01325
19,1	21,28	19,00	2,28	1,28	0,91	0,34	1,59	1,01325

Tableau B15 résumé des pressions et chutes de pressions pour l'écoulement monophasique dans le dispositif CX600 avec la solution WPI3XG04 (repris du tableau A16). Seulement $P_{s\text{-}exp}$ et $P_{s\text{-}thèo}$ sont des pressions absolues.

Q_{vL}	P_{pompe}	ΔP_1	p_2	ΔP_2	p_3	ΔP_3	$P_{S\ exp}$	$P_{S\ théo}$
L.h^{-1}	bar	bar	bar	bar	bar	bar	bar	bar
3,0	1,76	1,04	0,72	0,59	0,13	0,25	0,89	1,01325
11,0	4,78	3,39	1,40	0,96	0,40	0,31	1,10	1,01325
13,7	6,33	4,60	1,73	1,07	0,61	0,32	1,30	1,01325
16,4	8,14	6,01	2,13	1,18	0,89	0,33	1,57	1,01325
19,1	10,36	7,80	2,56	1,28	1,19	0,34	1,87	1,01325

Annexe C

Tableaux des mesures hydrodynamiques pour les conditions présentées dans la partie 4 des résultats. Les pressions sont des pressions relatives à exception des pressions en sortie (p_{atm}, $p_{s\ exp}$, $p_{s\ théo}$) lesquelles sont présentées en valeur absolue.

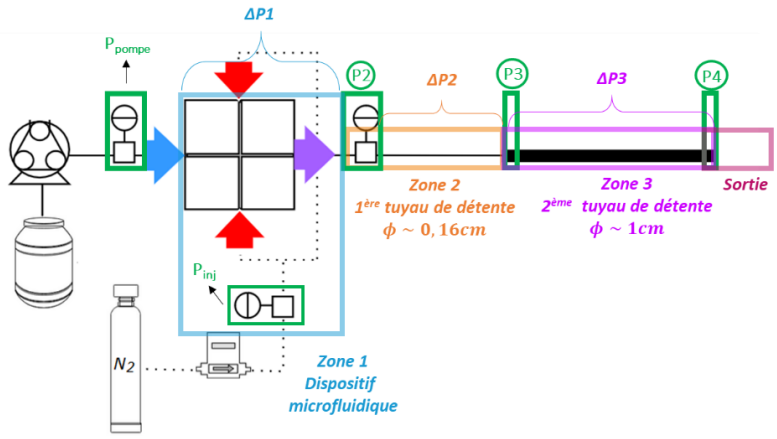


Tableau C1 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 1 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG04 (repris du tableau A1)

P_{pompe} bar	Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	Q_{mG} g.h^{-1}	p_{inj} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_1 bar
2,05	3,0	2,17	5,00	1,53	1,70	1,31	0,377	2,57E+04	3,38E-03	0,16	373	60	0,48
3,89	6,9	5,32	13,00	2,70	3,02	2,33	0,305	6,30E+04	2,69E-03	0,31	1153	358	1,00
6,37	11,0	8,46	21,60	3,83	3,85	2,97	0,260	1,00E+05	2,49E-03	0,46	1981	907	1,53
7,78	13,7	10,56	26,50	4,65	4,04	3,12	0,228	1,25E+05	2,42E-03	0,56	2545	1413	1,97
9,22	16,4	12,66	31,00	5,52	4,09	3,16	0,200	1,50E+05	2,37E-03	0,65	3113	2030	2,34
11,81	19,1	14,75	36,40	6,45	4,21	3,25	0,180	1,75E+05	2,34E-03	0,75	3684	2759	2,90

Tableau C2 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 2 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG04 (repris du tableau A2)

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_2 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_2 bar
3,0	0,40	1,05	2,091	0,30	0,43	2,04E+03	1,33E-02	0,12	46	5	0,59
6,9	0,98	1,70	4,134	0,59	0,38	4,99E+03	7,34E-03	0,16	205	32	0,79
11,0	1,56	2,30	5,626	0,80	0,34	7,94E+03	5,62E-03	0,19	426	81	0,96
13,7	1,95	2,68	6,192	0,88	0,31	9,91E+03	5,01E-03	0,21	596	127	1,07
16,4	2,34	3,18	6,379	0,91	0,28	1,19E+04	4,59E-03	0,23	779	182	1,18
19,1	2,73	3,55	6,883	0,98	0,26	1,39E+04	4,29E-03	0,25	974	247	1,28

Tableau C3 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 3 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG04 (repris du tableau A3)

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_3 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_3 bar
3,0	0,01	0,46	2,933	0,01	0,51	7,95	1,26	0,27	0,08	0,02	0,25
6,9	0,02	0,88	5,921	0,02	0,46	19,49	0,59	0,31	0,40	0,13	0,29
11,0	0,04	1,27	8,157	0,03	0,43	31,02	0,40	0,33	0,95	0,32	0,31
13,7	0,05	1,52	9,045	0,03	0,40	38,71	0,33	0,35	1,43	0,49	0,32
16,4	0,06	1,88	9,245	0,03	0,36	46,41	0,28	0,36	2,00	0,71	0,33
19,1	0,07	2,11	10,056	0,04	0,34	54,10	0,25	0,36	2,65	0,97	0,34

Tableau C4 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 1 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG02 (repris de tableau A9)

P_{pompe} bar	Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	Q_{mG} g.h^{-1}	p_{inj} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_1 bar
4,79	11,0	8,46	21,60	3,08	4,61	3,56	0,296	1,00E+05	1,52E-03	0,29	3214	945	13,46
6,21	13,7	10,56	26,50	3,93	4,69	3,62	0,255	1,25E+05	1,48E-03	0,36	4122	1472	17,20
8,27	16,4	12,66	31,00	4,71	4,74	3,66	0,224	1,50E+05	1,45E-03	0,42	5039	2115	22,13
10,17	19,1	14,75	36,40	5,60	4,82	3,72	0,201	1,75E+05	1,43E-03	0,48	5961	2874	26,84

Tableau C5 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 2 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG02 (repris de tableau A10)

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_2 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_2 bar
11,0	1,56	1,74	6,871	0,98	0,39	7,94E+03	3,13E-03	0,11	757	85	0,54
13,7	1,95	2,21	7,194	1,03	0,34	9,91E+03	2,83E-03	0,13	1044	132	0,61
16,4	2,34	2,50	7,726	1,10	0,32	1,19E+04	2,62E-03	0,14	1350	190	0,67
19,1	2,73	2,91	8,109	1,16	0,30	1,39E+04	2,47E-03	0,15	1672	258	0,74

Tableau C6 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 3 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG02 (repris de tableau A11)

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_3 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_3 bar
11,0	0,04	1,13	8,829	0,03	0,45	31,02	0,14	0,13	2,62	0,33	0,11
13,7	0,05	1,50	9,216	0,03	0,40	38,71	0,12	0,13	3,88	0,52	0,12
16,4	0,06	1,69	10,036	0,04	0,38	46,41	0,10	0,14	5,35	0,74	0,12
19,1	0,07	2,00	10,557	0,04	0,36	54,10	0,09	0,14	7,01	1,01	0,13

Tableau C7 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 1 pour le dispositif CX600 et la solution XG04

P_{pompe} bar	Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	Q_{mG} g.h^{-1}	p_{inj} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_1 bar
6,09	11,0	8,46	21,60	3,53	4,16	3,21	0,275	1,00E+05	2,14E-03	0,25	2379	598	1,58
8,60	13,7	10,56	26,50	4,32	4,35	3,35	0,241	1,25E+05	2,09E-03	0,31	3042	932	1,98
10,23	16,4	12,66	31,00	5,24	4,34	3,35	0,209	1,50E+05	2,05E-03	0,36	3710	1339	2,50
12,03	19,1	14,75	36,40	6,19	4,43	3,42	0,188	1,75E+05	2,03E-03	0,42	4382	1819	3,04

Tableau C8 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 2 pour le dispositif CX600 et la solution XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_2 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_2 bar
11,0	1,56	1,95	6,386	0,91	0,37	7,94E+03	4,20E-03	0,09	588	54	0,72
13,7	1,95	2,34	6,918	0,99	0,34	9,91E+03	3,82E-03	0,10	807	84	0,82
16,4	2,34	2,74	7,233	1,03	0,31	1,19E+04	3,55E-03	0,12	1040	120	0,91
19,1	2,73	3,15	7,660	1,09	0,29	1,39E+04	3,36E-03	0,13	1284	163	1,00

Tableau C9 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 3 pour le dispositif CX600 et la solution XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_3 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_3 bar
11,0	0,04	1,15	8,723	0,03	0,44	31,02	0,19	0,16	2,02	0,21	0,15
13,7	0,05	1,42	9,532	0,03	0,41	38,71	0,16	0,17	3,00	0,33	0,16
16,4	0,06	1,69	10,030	0,04	0,38	46,41	0,14	0,18	4,14	0,47	0,17
19,1	0,07	1,97	10,678	0,04	0,36	54,10	0,12	0,18	5,44	0,64	0,17

Tableau C10 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 1 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3

P_{pompe} bar	Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	Q_{mG} g.h^{-1}	p_{inj} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_1 bar
4,67	11,0	8,46	21,60	3,34	4,31	3,33	0,282	1,00E+05	1,44E-03	0,30	3548	1079	1,46
6,25	13,7	10,56	26,50	4,22	3,81	2,94	0,218	1,25E+05	1,44E-03	0,38	4427	1680	1,96
7,89	16,4	12,66	31,00	5,12	4,39	3,39	0,211	1,50E+05	1,44E-03	0,45	5307	2414	2,48
9,73	19,1	14,75	36,40	6,16	4,41	3,40	0,187	1,75E+05	1,44E-03	0,53	6186	3281	3,08

Tableau C11 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 2 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_2 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_2 bar
11,0	1,56	1,87	6,498	0,93	0,37	7,94E+03	1,44E-03	0,06	1721	97	0,25
13,7	1,95	2,27	6,093	0,87	0,31	9,91E+03	1,44E-03	0,07	2148	151	0,31
16,4	2,34	2,64	7,370	1,05	0,31	1,19E+04	1,44E-03	0,08	2574	216	0,37
19,1	2,73	3,08	7,733	1,10	0,29	1,39E+04	1,44E-03	0,10	3001	294	0,43

Tableau C12 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 3 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_3 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_3 bar
11,0	0,04	1,55	73,088	0,03	0,40	31,02	1,44E-03	0,00	271	0,38	0,00113
13,7	0,05	1,86	69,442	0,02	0,34	38,71	1,44E-03	0,00	338	0,59	0,00141
16,4	0,06	2,13	85,528	0,03	0,34	46,41	1,44E-03	0,00	405	0,85	0,00169
19,1	0,07	2,47	90,735	0,03	0,32	54,10	1,44E-03	0,00	473	1,15	0,00197

Tableau C13 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 1 pour le dispositif CX600 et la solution Glycérol 50%

P_{pompe} bar	Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	Q_{mG} g.h^{-1}	p_{inj} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_1 bar
1,75	3,0	2,29	5,00	1,32	1,88	1,45	0,387	2,72E+04	6,00E-03	0,20	257	52	0,57
7,44	11,0	8,46	21,60	4,60	3,37	2,60	0,235	1,00E+05	6,00E-03	0,75	950	709	2,25
9,56	13,7	10,56	26,50	5,74	3,44	2,65	0,201	1,25E+05	6,00E-03	0,93	1186	1104	2,83
12,04	16,4	12,66	31,00	7,04	3,37	2,60	0,171	1,50E+05	6,00E-03	1,12	1421	1587	3,47
14,66	19,1	14,75	36,40	8,38	3,40	2,62	0,151	1,75E+05	6,00E-03	1,30	1657	2156	4,16

Tableau C14 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 2 pour le dispositif CX600 et la solution Glycérol 50%

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_2 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_2 bar
3,0	0,42	0,75	2,487	0,35	0,46	2,15E+03	6,00E-03	0,04	125	5	0,28
11,0	1,56	2,36	5,615	0,80	0,34	7,94E+03	6,00E-03	0,14	461	64	1,03
13,7	1,95	2,91	5,917	0,84	0,30	9,91E+03	6,00E-03	0,17	575	99	1,28
16,4	2,34	3,57	5,922	0,84	0,27	1,19E+04	6,00E-03	0,21	689	142	1,54
19,1	2,73	4,21	6,101	0,87	0,24	1,39E+04	6,00E-03	0,24	804	193	1,79

Tableau C15 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 3 pour le dispositif CX600 et la solution Glycérol 50%

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_3 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	α (p) -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_3 bar
3,0	0,01	0,46	2,971	0,011	0,50	8,41	6,00E-03	0,001	20	0,02	0,0013
11,0	0,04	1,25	8,347	0,030	0,43	31,02	6,00E-03	0,003	73	0,25	0,0047
13,7	0,05	1,52	9,155	0,032	0,40	38,71	6,00E-03	0,004	91	0,39	0,0059
16,4	0,06	1,90	9,325	0,033	0,36	46,41	6,00E-03	0,005	109	0,56	0,0071
19,1	0,07	2,25	9,778	0,035	0,34	54,10	6,00E-03	0,006	127	0,76	0,0082

Tableau C16 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 1 pour le dispositif CX600 et la solution Eau distillée

P_{pompe} bar	Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	Q_{mG} g.h^{-1}	p_{inj} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	α (p) -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_1 bar
3,69	11,0	8,46	21,60	2,49	5,35	4,13	0,328	1,00E+05	1,00E-03	0,12	5076	596	1,46
5,26	13,7	10,56	26,50	3,49	5,11	3,94	0,272	1,25E+05	1,00E-03	0,15	6334	929	2,01
6,92	16,4	12,66	31,00	4,48	4,89	3,78	0,230	1,50E+05	1,00E-03	0,18	7593	1335	2,56
8,76	19,1	14,75	36,40	5,48	4,86	3,75	0,203	1,75E+05	1,00E-03	0,20	8851	1814	3,12

Tableau C17 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 2 pour le dispositif CX600 et la solution Eau distillée

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_2 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	α (p) -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_2 bar
11,0	1,56	1,03	9,149	1,30	0,45	7,94E+03	1,00E-03	0,022	2462	53	0,17
13,7	1,95	1,48	9,234	1,32	0,40	9,91E+03	1,00E-03	0,027	3073	83	0,21
16,4	2,34	1,92	9,175	1,31	0,36	1,19E+04	1,00E-03	0,032	3683	120	0,26
19,1	2,73	2,36	9,363	1,34	0,33	1,39E+04	1,00E-03	0,038	4294	163	0,30

Tableau C18 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 3 pour le dispositif CX600 et la solution Eau distillée

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_3 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	α (p) -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_3 bar
11,0	0,04	0,77	10,531	0,037	0,49	31,02	1,00E-03	0,0005	388	0,21	0,0008
13,7	0,05	1,13	10,696	0,038	0,44	38,71	1,00E-03	0,0007	484	0,33	0,0010
16,4	0,06	1,50	10,683	0,038	0,39	46,41	1,00E-03	0,0008	580	0,47	0,0012
19,1	0,07	1,86	10,970	0,039	0,36	54,10	1,00E-03	0,0009	676	0,64	0,0014

Tableau C19 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 1 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG04-NaCl

P_{pompe} bar	Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	Q_{mG} g.h^{-1}	p_{inj} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_1 bar
6,18	11,0	8,46	21,60	3,84	3,85	2,97	0,260	1,36E+05	2,43E-03	0,45	2048	914	1,51
8,00	13,7	10,56	26,50	4,57	4,11	3,17	0,231	1,63E+05	2,38E-03	0,55	2608	1424	2,02
9,58	16,4	12,66	31,00	5,33	4,23	3,26	0,205	1,89E+05	2,34E-03	0,64	3172	2046	2,33
11,09	19,1	14,75	36,40	6,21	4,36	3,37	0,186	2,15E+05	2,32E-03	0,74	3740	2780	2,77
15,25	24,6	18,95	45,00	8,06	4,29	3,31	0,149	2,64E+05	2,28E-03	0,94	4881	4585	3,68

Tableau C20 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 2 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG04-NaCl

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_2 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_2 bar
11,0	1,56	2,33	5,592	0,80	0,34	1,20E+04	4,61E-03	0,16	523	82	0,79
13,7	1,95	2,55	6,437	0,92	0,32	1,46E+04	4,24E-03	0,18	710	128	0,91
16,4	2,34	3,00	6,686	0,95	0,29	1,67E+04	4,01E-03	0,20	900	183	1,03
19,1	2,73	3,44	7,075	1,01	0,27	1,90E+04	3,82E-03	0,23	1101	249	1,14
24,6	3,50	4,38	7,222	1,03	0,23	2,30E+04	3,56E-03	0,27	1515	411	1,37

Tableau C21 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 3 pour le dispositif CX600 et la solution WPI3XG04-NaCl

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_3 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_3 bar
11,0	0,04	1,47	7,515	0,027	0,41	52,29	0,22	0,19	1,72	0,32	0,17
13,7	0,05	1,55	8,956	0,032	0,40	64,05	0,19	0,20	2,53	0,50	0,18
16,4	0,06	1,85	9,383	0,033	0,36	72,95	0,17	0,21	3,38	0,72	0,20
19,1	0,07	2,14	10,002	0,035	0,34	82,39	0,15	0,22	4,34	0,97	0,21
24,6	0,09	2,77	10,285	0,036	0,30	98,58	0,13	0,25	6,45	1,61	0,23

Tableau C22 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 1 pour le dispositif CX600 et la solution CAS3XG04

P_{pompe} bar	Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	Q_{mG} g.h^{-1}	p_{inj} bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_1 bar
7,81	10,6	8,15	21,60	4,54	3,38	2,61	0,243	9,67E+04	2,55E-03	0,51	1856	939	1,89
9,37	13,3	10,23	26,50	6,22	3,19	2,46	0,194	1,21E+05	2,47E-03	0,61	2405	1477	2,34
12,42	15,9	12,30	31,00	7,38	3,21	2,48	0,168	1,46E+05	2,41E-03	0,72	2959	2138	3,06

Tableau C23 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 2 pour le dispositif CX600 et la solution CAS3XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_2 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_2 bar
10,6	1,51	2,65	5,130	0,73	0,33	7,65E+03	5,94E-03	0,22	386	84	0,98
13,3	1,89	3,88	4,712	0,67	0,26	9,60E+03	5,28E-03	0,24	546	132	1,10
15,9	2,27	4,32	5,057	0,72	0,24	1,16E+04	4,83E-03	0,27	718	192	1,20

Tableau C24 Paramètres hydrodynamiques de l'écoulement diphasique dans la zone 3 pour le dispositif CX600 et la solution CAS3XG04

Q_{vL} L.h^{-1}	U_L m.s^{-1}	p_3 bar	Q_{vG} L.h^{-1}	U_G m.s^{-1}	$\alpha\ (p)$ -	$\dot{\gamma}_{app}$ s^{-1}	μ_L Pa.s	Ca_L -	Re_L -	We_L -	ΔP_3 bar
10,6	0,037	1,61	7,163	0,025	0,40	29,89	0,39	0,35	0,93	0,33	0,29
13,3	0,047	2,71	6,192	0,022	0,32	37,50	0,32	0,37	1,41	0,52	0,31
15,9	0,056	3,01	6,697	0,024	0,30	45,11	0,28	0,38	1,98	0,75	0,32

Annexe D

Visualisations dans le canal de mélange, zone M1 à plusieurs débits

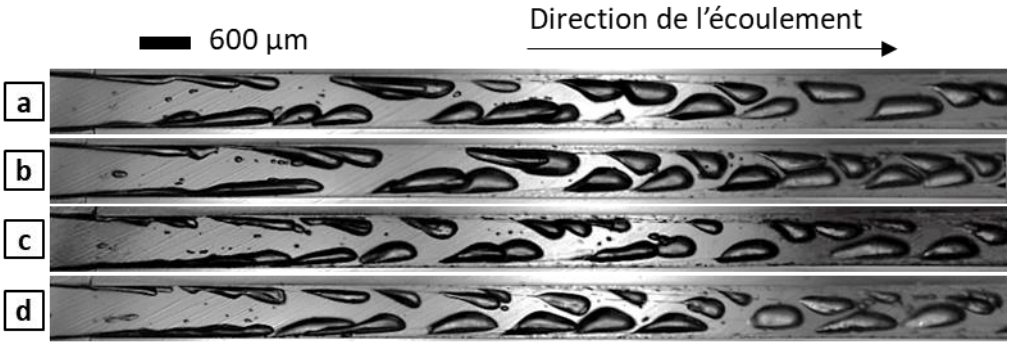


Figure 171. Photos de l'écoulement diphasique dans le **canal de mélange du dispositif CX600** pour la solution **WPI3XG04** à différents débits **a) Q_{vL} = 11 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,83 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1} **b) Q_{vL} = 13,7 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 26,5 g.h^{-1}, P_{inj} = 4,65 bars, U_L = 10,56 m.s^{-1}, U_G = 3,12 m.s^{-1} **c) Q_{vL} = 16,4 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1}, P_{inj} = 5,52 bars, U_L = 12,66 m.s^{-1}, U_G = 3,16 m.s^{-1} **d) Q_{vL} = 19 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 36,4 g.h^{-1}, P_{inj} = 6,45 bars, U_L = 14,75 m.s^{-1}, U_G = 3,25 m.s^{-1}. Fraction de vide expérimentale de mousse en sortie de l'installation 0,57. Voir tableaux C1, C2 et C3 pour d'autres paramètres mesurés dans l'installation pour ces conditions.

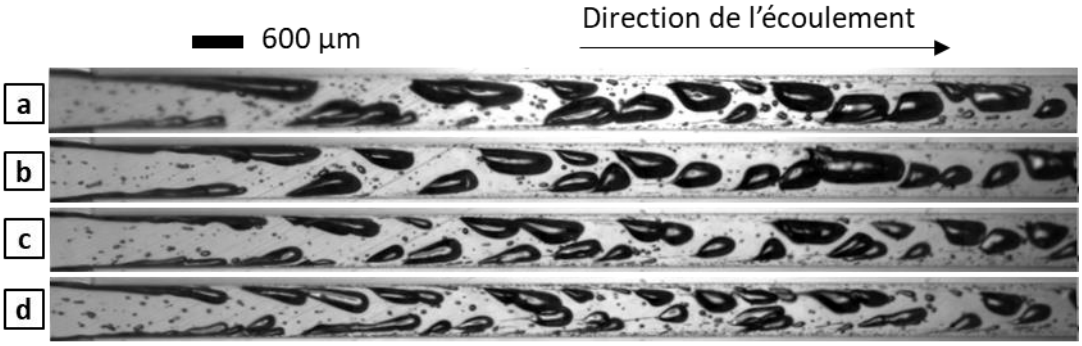


Figure 172. Photos de l'écoulement diphasique dans le **canal de mélange du dispositif CX600** pour la solution **WPI3XG02** à différents débits **a) Q_{vL} = 11 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,08 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 3,56 m.s^{-1} **b) Q_{vL} = 13,7 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 26,5 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,93 bars, U_L = 10,56 m.s^{-1}, U_G = 3,62 m.s^{-1} **c) Q_{vL} = 16,4 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1}, P_{inj} = 4,71 bars, U_L = 12,66 m.s^{-1}, U_G = 3,66 m.s^{-1} **d) Q_{vL} = 19 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 36,4 g.h^{-1}, P_{inj} = 5,60 bars, U_L = 14,75 m.s^{-1}, U_G = 3,72 m.s^{-1}. Fraction de vide expérimentale de mousse en sortie de l'installation 0,57. Voir tableaux C4, C5 et C6 pour d'autres paramètres mesurés dans l'installation pour ces conditions.

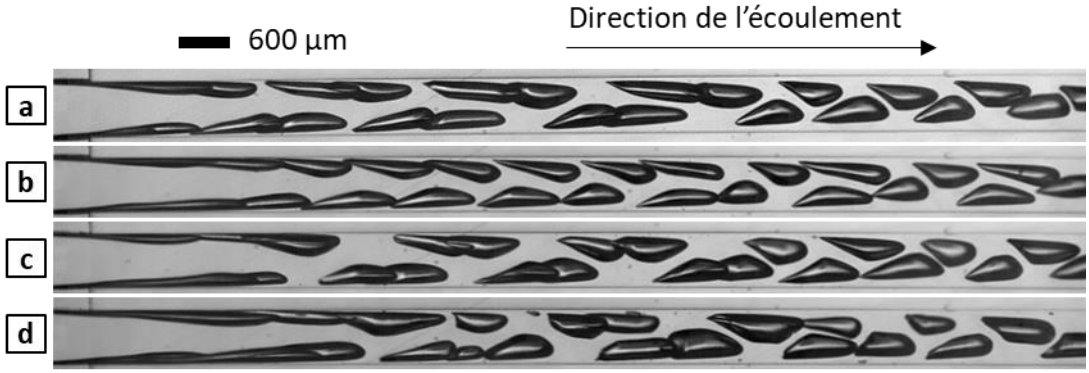


Figure 173. Photos de l'écoulement diphasique dans le **canal de mélange du dispositif CX600** pour la solution **XG04** à différents débits **a)** Q_{vL} **= 11 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,53 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 3,21 m.s^{-1} **b)** Q_{vL} **= 13,7 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 26,5 g.h^{-1}, P_{inj} = 4,32 bars, U_L = 10,56 m.s^{-1}, U_G = 3,35 m.s^{-1} **c)** Q_{vL} **= 16,4 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1}, P_{inj} = 5,24 bars, U_L = 12,66 m.s^{-1}, U_G = 3,35 m.s^{-1} **d)** Q_{vL} **= 19 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 36,4 g.h^{-1}, P_{inj} = 6,19 bars, U_L = 14,75 m.s^{-1}, U_G = 3,42 m.s^{-1}. Voir tableaux C7, C8 et C9 pour d'autres paramètres mesurés dans l'installation pour ces conditions.

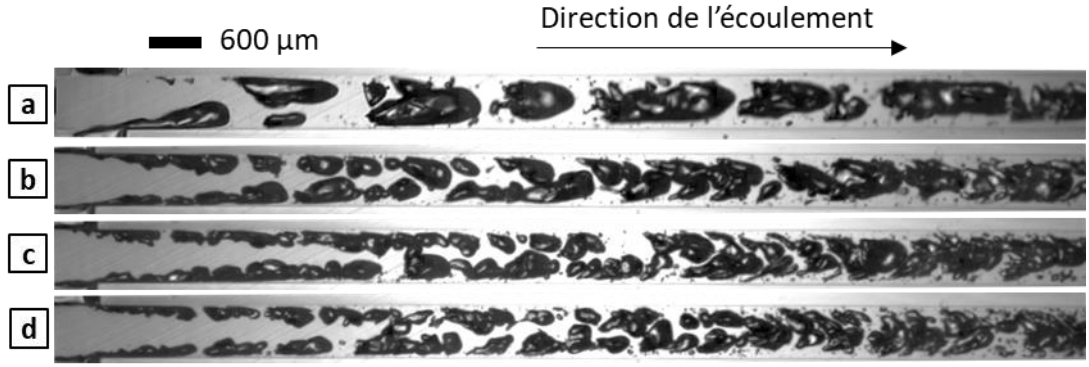


Figure 174. Photos de l'écoulement diphasique dans le **canal de mélange du dispositif CX600** pour la solution **WPI3** à différents débits **a)** Q_{vL} **= 11 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,34 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 3,33 m.s^{-1} **b)** Q_{vL} **= 13,7 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 26,5 g.h^{-1}, P_{inj} = 4,22 bars, U_L = 10,56 m.s^{-1}, U_G = 2,94 m.s^{-1} **c)** Q_{vL} **= 16,4 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1}, P_{inj} = 5,12 bars, U_L = 12,66 m.s^{-1}, U_G = 3,39 m.s^{-1} **d)** Q_{vL} **= 19 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 36,4 g.h^{-1}, P_{inj} = 6,16 bars, U_L = 14,75 m.s^{-1}, U_G = 3,40 m.s^{-1}. Voir tableaux C10, C11 et C12 pour d'autres paramètres mesurés dans l'installation pour ces conditions.

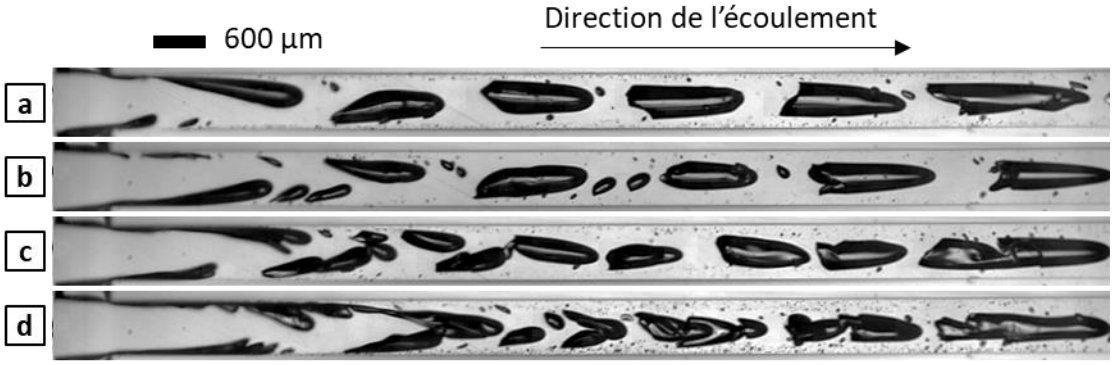


Figure 175. Photos de l'écoulement diphasique dans le **canal de mélange du dispositif CX600** pour la solution **glycérol 50%** à différents débits **a)** Q_{vL} **= 11 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 4,60 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,60 m.s^{-1} **b)** Q_{vL} **= 13,7 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 26,5 g.h^{-1}, P_{inj} = 5,74 bars, U_L = 10,56 m.s^{-1}, U_G = 2,65 m.s^{-1} **c)** Q_{vL} **= 16,4 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1}, P_{inj} = 7,04 bars, U_L = 12,66 m.s^{-1}, U_G = 2,60 m.s^{-1} **d)** Q_{vL} **= 19 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 36,4 g.h^{-1}, P_{inj} = 8,38 bars, U_L = 14,75 m.s^{-1}, U_G = 2,62 m.s^{-1}. Voir tableaux C13, C14 et C15 pour d'autres paramètres mesurés dans l'installation pour ces conditions.

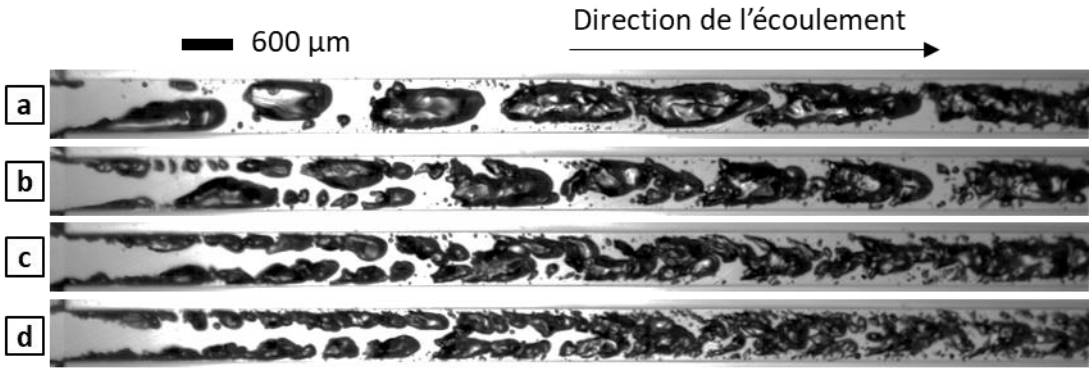


Figure 176. Photos de l'écoulement diphasique dans le **canal de mélange du dispositif CX600** pour l'**eau distillée** à différents débits **a) Q_{vL} = 11 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 2,49 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 4,13 m.s^{-1} **b) Q_{vL} = 13,7 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 26,5 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,49 bars, U_L = 10,56 m.s^{-1}, U_G = 3,94 m.s^{-1} **c) Q_{vL} = 16,4 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1}, P_{inj} = 4,48 bars, U_L = 12,66 m.s^{-1}, U_G = 3,78 m.s^{-1} **d) Q_{vL} = 19 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 36,4 g.h^{-1}, P_{inj} = 5,48 bars, U_L = 14,75 m.s^{-1}, U_G = 3,75 m.s^{-1}. Voir tableaux C16, C17 et C18 pour d'autres paramètres mesurés dans l'installation pour ces conditions.

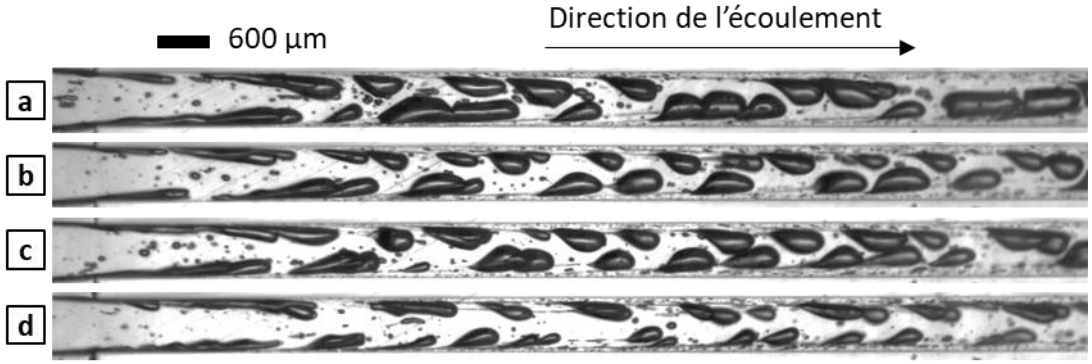


Figure 177. Photos de l'écoulement diphasique dans le **canal de mélange du dispositif CX600** pour la solution **WPI3XG04-NaCl** à différents débits **a) Q_{vL} = 11 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 3,85 bars, U_L = 8,46 m.s^{-1}, U_G = 2,97 m.s^{-1} **b) Q_{vL} = 13,7 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 26,5 g.h^{-1}, P_{inj} = 4,57 bars, U_L = 10,56 m.s^{-1}, U_G = 3,17 m.s^{-1} **c) Q_{vL} = 16,4 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1}, P_{inj} = 5,33 bars, U_L = 12,66 m.s^{-1}, U_G = 3,26 m.s^{-1} **d) Q_{vL} = 19 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 36,4 g.h^{-1}, P_{inj} = 6,21 bars, U_L = 14,75 m.s^{-1}, U_G = 3,37 m.s^{-1}. Fraction de vide expérimentale de mousse en sortie de l'installation 0,57. Voir tableaux C19, C20 et C21 pour d'autres paramètres mesurés dans l'installation pour ces conditions.

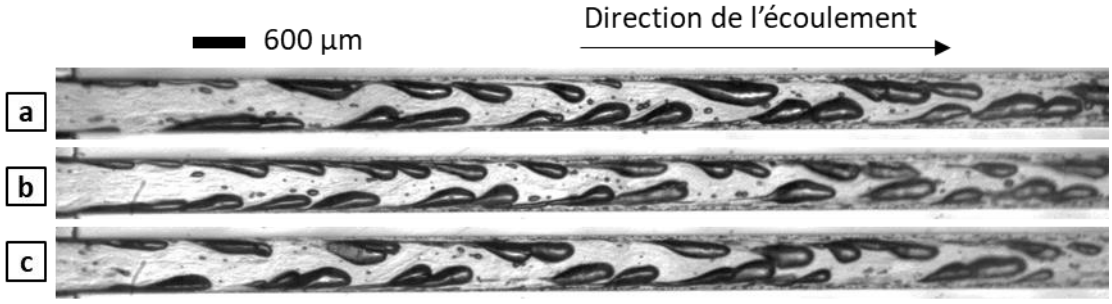


Figure 178. Photos de l'écoulement diphasique dans le **canal de mélange du dispositif CX600** pour la solution **CAS3XG04** à différents débits **a) Q_{vL} = 10,6 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, P_{inj} = 4,54 bars, U_L = 8,15 m.s^{-1}, U_G = 2,61 m.s^{-1} **b) Q_{vL} = 13,3 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 26,5 g.h^{-1}, P_{inj} = 6,22 bars, U_L = 10,23 m.s^{-1}, U_G = 2,46 m.s^{-1} **c) Q_{vL} = 15,9 L.h^{-1}**, Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1}, P_{inj} = 7,38 bars, U_L = 12,30 m.s^{-1}, U_G = 2,48 m.s^{-1}. Fraction de vide expérimentale de mousse en sortie de l'installation approximativement 0,49. Voir tableaux C22, C23 et C24 pour d'autres paramètres mesurés dans l'installation pour ces conditions.

Annexe E

Profil de pression en écoulement monophasique

Cette annexe a pour objectif de complémenter les aspects énergétiques du dispositif microfluidique de base en présentant principalement une analyse du profil de pression dans l'installation en écoulement monophasique. D'abord on présentera l'effet du débit pour le dispositif de référence CX600 et ensuite l'effet du rétrécissement du diamètre hydraulique, comparaison entre CX600 et CX500. Pour ces expériences, la solution de référence WPI3XG04 a été utilisée.

Effet du débit

La figure 179a présente un schéma des différentes zones de mesure de la pression en écoulement monophasique. En entrée et sortie de la zone 1, deux capteurs permettent d'identifier les pressions en tête *P1* et *P2*. Dans la zone 2 et zone 3 les chutes de pression sont calculées en utilisant la loi de Hagen-Poiseuille comme expliqué dans la partie « matériels et méthodes ». A cause d'une sous-estimation de la chute de pression dans le passage de la zone 2 à la zone 3, les pressions estimées en sortie (P4) sont légèrement supérieures à la pression atmosphérique (figure 179b).

Dans la figure 179b on constate aussi que des pressions allant jusqu'à 12 bars sont générées en tête des microsystèmes dans cette étude. Il est clair qu'une augmentation du débit entraîne des chutes de pressions plus élevées au niveau du dispositif. La figure 179b montre également l'évolution de la pression le long du procédé. La déperdition d'énergie la plus importante se situe logiquement dans le microsystème, lieu où le diamètre hydraulique est le plus faible. On constate également que plus les pressions sont importantes, moins précises sont les estimations de la pression en sortie P4. Les valeurs de la figure 179b sont réunies dans le tableau E1 (même tableau A16).

Tableau E1. Pressions relatives et chutes de pressions pour l'écoulement monophasique dans le dispositif CX600 avec la solution WPI3XG04. Seulement $P_{s\text{-}exp}$ et $P_{s\text{-}thèo}$ sont des pressions absolues.

Q_{vL}	P_{pompe}	ΔP_1	p_2	ΔP_2	p_3	ΔP_3	$P_{S\,exp}$	$P_{S\,théo}$
$L.h^{-1}$	bar	bar	bar	bar	bar	bar	bar	bar
3,0	1,76	1,04	0,72	0,59	0,13	0,25	0,89	1,01325
11,0	4,78	3,39	1,40	0,96	0,40	0,31	1,10	1,01325
13,7	6,33	4,60	1,73	1,07	0,61	0,32	1,30	1,01325
16,4	8,14	6,01	2,13	1,18	0,89	0,33	1,57	1,01325
19,1	10,36	7,80	2,56	1,28	1,19	0,34	1,87	1,01325

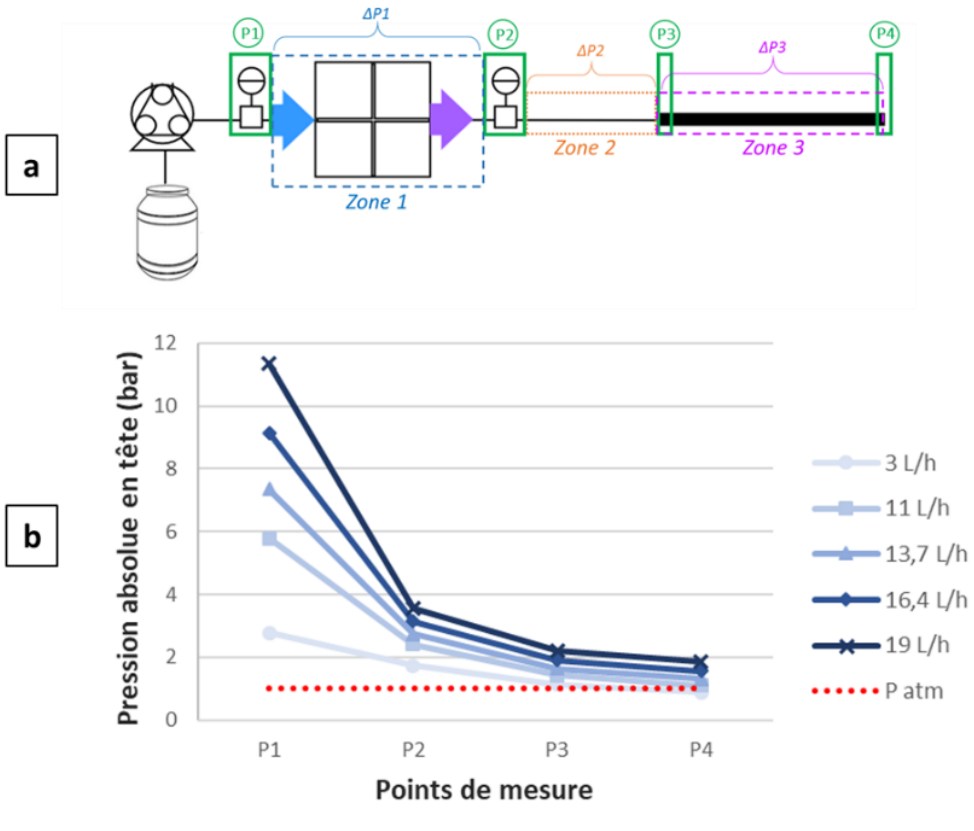


Figure 179. Profil de pression en écoulement monophasique dans le dispositif CX600 en utilisant la solution WPI3XG04 **a)** schéma du banc expérimental avec les points de mesure. **b)** profils de pression pour la gamme des débits liquides compris entre 3 et 19 $L.h^{-1}$.

Effet du diamètre hydraulique

Les profils de pression en écoulement monophasique pour CX500 et CX600 sont présentés dans la figure 180 pour le cas du débit liquide de 11 Lh^{-1}. On constate qu'au niveau du dispositif, les pressions d'injection du liquide dans CX500 sont presque deux fois supérieures à celles du CX600. Dans les autres parties de l'installation, les profils ont quasiment les mêmes valeurs. L'apport d'énergie plus important dans le cas du dispositif CX500 expliquerait les tailles des bulles plus petits aussi dans le microcanal comme en sortie. Les valeurs exactes des pressions en écoulement monophasique montrées dans la figure 180 sont réunies dans le tableau E2 (même tableau A17).

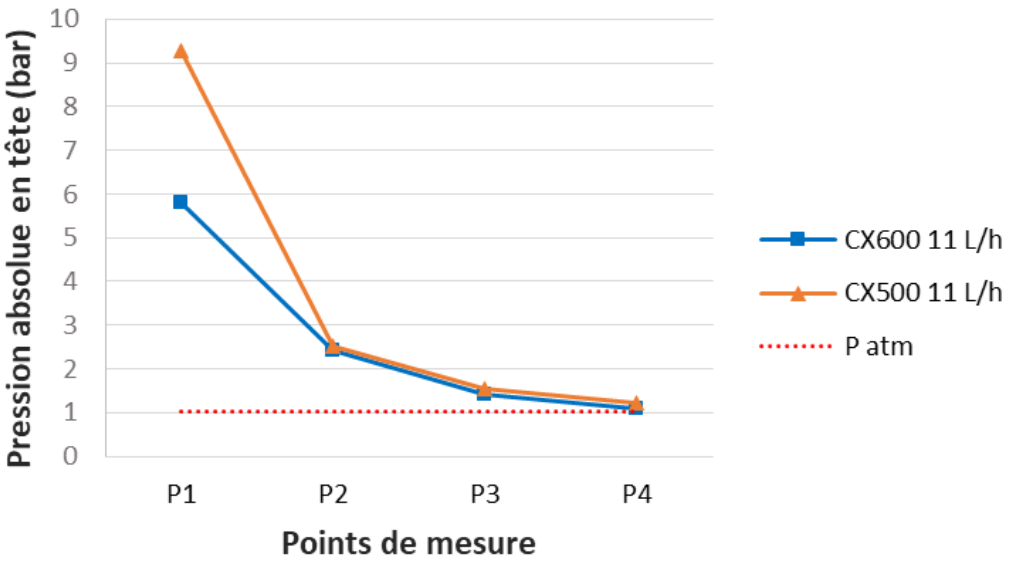


Figure 180 Comparaison des profils de pression en écoulement monophasique pour les dispositifs CX600 et CX500 en utilisant la solution WPI3XG04 avec un débit liquide Q_{vL} = 11 L.h^{-1}.

Tableau E2. Pressions relatives et chutes de pressions pour l'écoulement monophasique dans le dispositif CX500 avec la solution WPI3XG04. Seulement $P_{s\text{-}exp}$ et $P_{s\text{-}thèo}$ sont des pressions absolues.

Q_{vL} L.h^{-1}	P_{pompe} bar	ΔP_1 bar	p_2 bar	ΔP_2 bar	p_3 bar	ΔP_3 bar	$P_{S\,exp}$ bar	$P_{S\,théo}$ bar
3,0	2,45	1,73	0,72	0,59	0,13	0,25	0,89	1,01325
11,0	8,28	6,76	1,52	0,96	0,52	0,31	1,22	1,01325
13,7	10,44	8,78	1,66	1,07	0,54	0,32	1,24	1,01325
16,4	13,99	11,98	2,00	1,18	0,76	0,33	1,44	1,01325
19,1	18,18	15,98	2,20	1,28	0,84	0,34	1,51	1,01325

Le facteur de frottement pour l'écoulement monophasique avec les dispositifs CX500 et CX600 a été estimé en utilisant l'équation 60 (Kandlikar *et al.*, 2014) pour les débits 3, 11, 13,7, 16,4 et 19 L.h^{-1}. Dans l'équation 60, f^*correspond au facteur de frottement de Fanning, ΔP la chute de pression dans le dispositif (Zone 1), D_h le diametre hydraulique, ρ la masse volumique de la solution, U_m La vitesse moyenne dans le canal et L la longueur du canal.

$$f^* = \frac{\Delta P D_h}{2\rho U_m^2 L} \tag{60}$$

La figure 181 montre l'évolution du facteur de frottement de Darcy (qui est égal à 4 fois le facteur de Fanning) en fonction du nombre de Reynolds pour les dispositifs CX600 et CX500. Il est possible de constater que pour les débits élevés de nos expériences (11, 13,7, 16,4 et 19 L.h^{-1}) les valeurs du facteur de frottement commencent à se stabiliser à des Reynolds entre 2000 et 3000 comme dans les cas des écoulements turbulents décrits par le diagramme de Moody pour les macro-écoulements.

Un débit faible de 3 L.h^{-1} (premier point sur la courbe) a été également évalué pour observer un ordre de grandeur du facteur de frottement à des débits plus faibles. Une superposition de nos points sur un diagramme de Moody montrerait que nos points pour les débits 11, 13,7, 16,4 et 19 L.h^{-1} sont plus précisément situés dans la région de transition entre les régimes laminaire et turbulent (entre 2000 et 4000). Des travaux récents en écoulement monophasique d'eau à l'intérieur de microcanaux lisses ont montré que la transition entre les régimes laminaire et turbulent n'est pas en effet affectée par les dimensions du canal et se produit globalement vers 2300 (Baviere *et al.*, 2004 ; Bucci *et al.*, 2004).

Un autre aspect important à remarquer c'est le fait que cette classification du passage entre régimes laminaire et turbulent décrit bien le cas des fluides newtoniens, mais pas nécessairement les fluides non-newtoniens. Cependant, malgré le caractère non-newtonien de nos solutions, on peut constater que pour la gamme des débits liquides 11-19 L.h^{-1}, la valeur du facteur de frottement calculée pour l'écoulement à l'intérieur des microcanaux commence à se stabiliser à partir des Reynolds autour de 2000 comme pour le cas classique des fluides newtoniens dans les macro-écoulements présenté dans un diagramme de Moody.

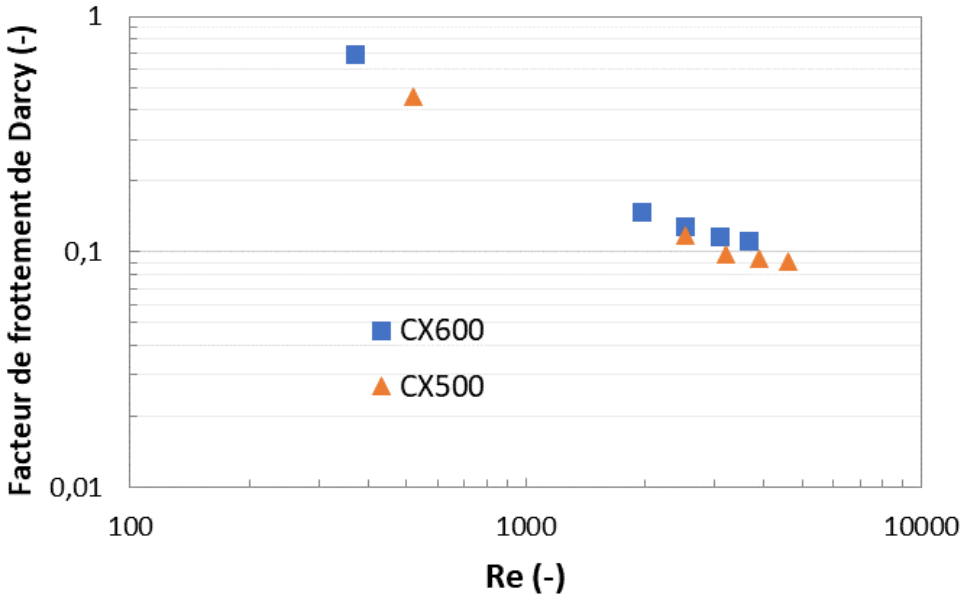


Figure 181 Comparaison du facteur de frottement de Darcy pour les dispositifs CX600 et CX500 en écoulement monophasique en utilisant la solution WPI3XG04 et les débits liquides 3, 11, 13,7, 16,4 et 19 L.h^{-1}.

Annexe F

Détermination de l'excès de WPI par rapport à la saturation des interfaces dans nos solutions modèles

Une détermination de la quantité de protéines (WPI) en excès que nous avons dans nos solutions modèles est effectuée en utilisant les propriétés physicochimiques de la β-lactoglobuline, la principale protéine dans les WPI. On a suivi une procédure similaire à celle présentée dans Bamforth (2004). Pour nos estimations, nous utilisons un diamètre moyen de bulles de 200 µm calculé en tenant compte les mesures effectuées dans cette thèse pour la mousse en sortie. La procédure sera présentée en 5 parties :

1ère partie : moles de molécules nécessaires pour former une monocouche dans une seule bulle

- Surface occupée par un seul polymère

Pour cette partie un rayon de giration (r_g) de 2,5 nm à pH 6,2 pour la β-lactoglobuline est utilisé (Moitzi *et al.*, 2011). La β-lactoglobuline peut en fait se présenter comme un dimère ou un octamère (Gottschalk *et al.*, 2003 ; McSweeney & Fox, 2013). Nous ne connaissons pas la configuration des protéines utilisées dans nos expériences et donc nous avons décidé d'utiliser le plus petit diamètre de giration. Également, nous considérons une situation d'emboitement parfait (interlocking) des protéines dans l'interface. Cependant dans la réalité les protéines vont se déployer (McClements, 2005) et occuper une surface encore plus grande et donc la concentration en excès pourrait être encore plus importante que celle calculée par cette procédure (Pérez-Fuentes *et al.*, 2017).

$$Surface\ occupée\ par\ une\ seule\ molécule\ de\ protèine = \pi r_g^2 = \pi(2{,}5\ nm)^2 = 19{,}63\ nm^2$$

- Surface d'une seule bulle

$$surface\ d'une\ seule\ bulle = 4\pi r^2 = 4\pi(0{,}1\ mm)^2 = 0{,}13\ mm^2$$

- Nombre de polymères capables de remplir l'interface

$$\frac{surface\ d'une\ bulle}{surface\ occupée\ par\ une\ molécule\ de\ protèine} = \frac{0{,}13\ mm^2}{1{,}96 \times 10^{-11} mm^2} = 6{,}63 \times 10^9\ molécules$$

- Nombre de moles

$$6{,}63 \times 10^9\ molécules\ \frac{1\ mol}{6{,}02 \times 10^{23}\ molécules} = 1{,}1 \times 10^{-14}\ moles$$

2ème partie : nombre de bulles pour 1 L de mousse ayant une fraction de vide de 0,57

- Volume du gaz

$$0{,}57(1000\ ml) = 570\ ml\ du\ gaz = 5{,}7 \times 10^5 mm^3$$

- Volume d'une seule bulle

$$V = \frac{4}{3}\pi r^3 = \frac{4}{3}\pi(0{,}1\ mm)^3 = 4{,}2 \times 10^{-3} mm^3$$

- Nombre de bulles

$$\frac{volume\ du\ gaz}{volume\ d'une\ seule\ bulle} = 1{,}36 \times 10^8\ bulles$$

3ème partie : moles de polymère nécessaires pour couvrir la surface de toutes les bulles

$$1{,}36 \times 10^8\ bulles * \ 1{,}1 \times 10^{-14}\ moles = \mathbf{1{,}5 \times 10^{-6}\ moles}$$

4ème partie : moles de soluté (polymère) présentes dans la solution

En utilisant la masse volumique de l'eau

$$[WPI3] = 3\%\ en\ masse = {}^{30\ g}/_{L}$$

Puisque le poids moléculaire de la β-lactoglobuline est 18,4 kDa (Pérez-Fuentes *et al.*, 2017)

$$\frac{30g}{L}\ \frac{1\ mol}{18\ 400\ g} = 1{,}6 \times 10^{-3}\ \frac{moles}{L} = \ 1{,}6 \times 10^{-3}\ M$$

Ce sont donc les moles présentes dans 1 litre de solution. Cependant, nous avons fait les calculs pour 1 L de mousse avec fraction de vide 0,57 donc il faut calculer les moles réellement présentes dans le volume de la phase liquide (1L – 570 ml = 430 ml).

$$moles\ de\ soluté\ dans\ 1\ litre\ de\ mousse = 1{,}6 \times 10^{-3}\ {}^{mol}/_{L}\ (0{,}430\ L) = \mathbf{6{,}9 \times 10^{-4}\ moles}$$

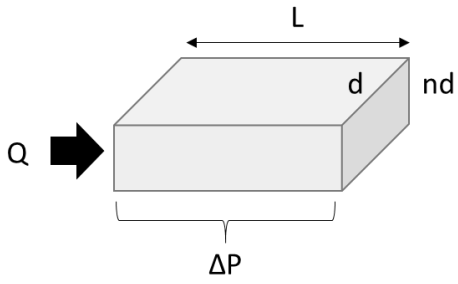
5ème Quantité en excès de protéines dans nos solutions

$$\frac{moles\ du\ polymère\ dans\ 1\ L\ de\ mousse}{moles\ du\ polymère\ necessaire\ pour\ couvrir\ surface\ de\ toutes\ les\ bulles\ dans\ 1\ L\ de\ mousse}$$

$$\frac{6{,}9 \times 10^{-4}}{1{,}5 \times 10^{-6}} = \mathbf{460\ fois\ plus\ de\ ce\ qui\ est\ necessaire}$$

Annexe G

Détermination de facteur 7,11 utilisé dans calcul de $\dot{\gamma}_{app}$ pour canaux carrés



Bilan des forces : force de pression = force de cisaillement

$$\text{Soit : } \Delta P(nd^2) = \tau_w \left(2d(n+1)\right)L$$

La contrainte de cisaillement s'écrit alors :

$$\tau_w = \frac{nd}{2(n+1)} \frac{\Delta P}{L}$$

D'après (Comolet, 1994) dans un écoulement laminaire :

$$\Delta P = \frac{K\,\mu\,L\,Q}{d^4}$$

Où μ correspond à la viscosité et K un coefficient sans dimension qui dépend de la forme géométrique de la section

$$\tau_w = \frac{nd}{2(n+1)L} \frac{K\,\mu\,L\,Q}{d^4}$$

$$\text{Avec } \tau_w = \mu\,\dot{\gamma}_w$$

$$\dot{\gamma}_w = \frac{nd}{2(n+1)} \frac{KQ}{d^4}$$

Avec $Q = nd^2\,U$. U Étant la vitesse superficielle. D'autre part, n = 1 pour des canaux de section carrée.

$$\dot{\gamma}_w = \frac{KU}{4d}$$

D'apres Comolet (1994) si la section est carrée K = 28,441. Finalement, le gradient de vitesse s'écrit :

$$\dot{\gamma}_w = 7{,}11\frac{U}{d}$$

Annexe H

Courbes d'écoulement réunissant les données du rhéomètre AR1000 et les mesures à haut taux de cisaillement effectuées par la société *Formulaction*

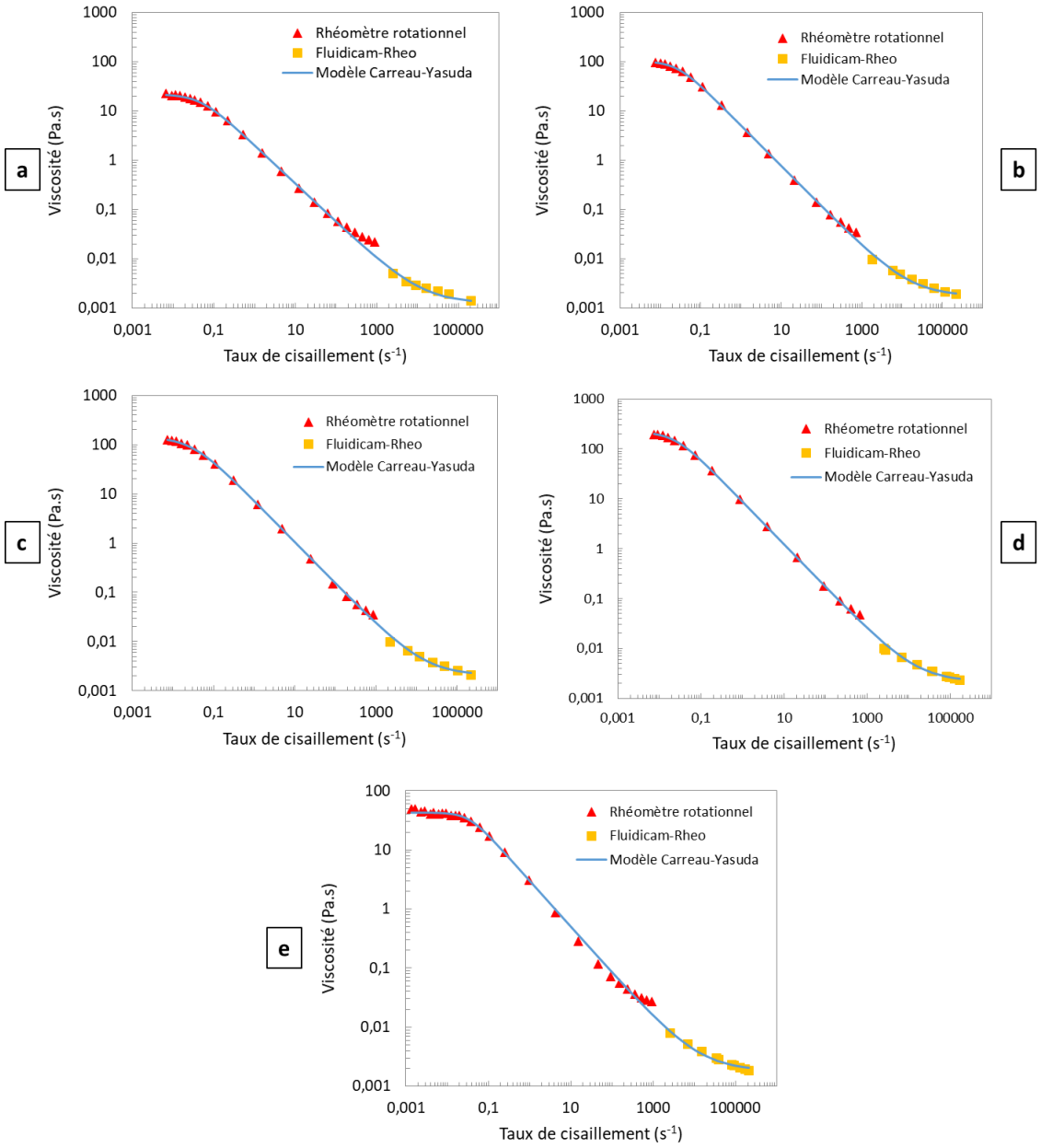
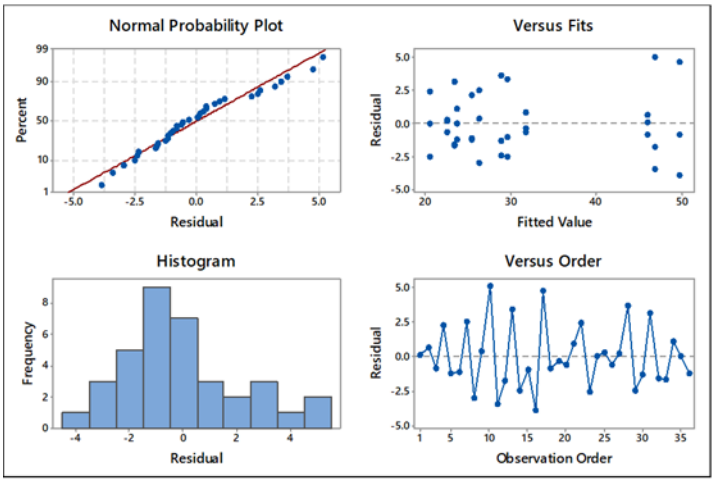


Figure 182. Courbes d'écoulement réunissant les données du rhéomètre rotationnel AR1000 et les mesures à haut taux de cisaillement effectués par la société formulation avec le microrhéomètre Fluidicam-Rheo **a)** WPI3XG02 **b)** WPI3XG035 **c)** WPI3XG04 **d)** WPI3XG05 **e)** XG04. Mesures effectuées à 20 °C. Les paramètres rhéologiques du modèle de Carreau-Yasuda pour ces solutions se trouvent dans le tableau 3 dans le chapitre « matériels et méthodes ».

Annexe I

Résultats Anova et Post-Anova pour l'effet du dispositif et débit sur le module élastique des mousses élaborées (résultats 1er partie section 1.4.2)

a



b

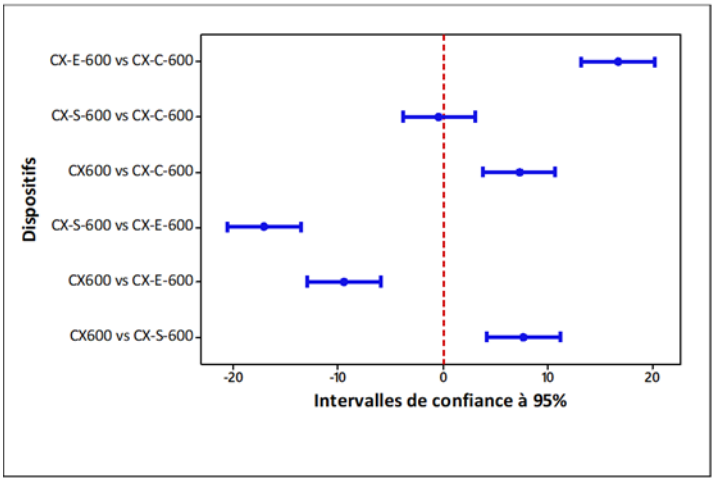
Analysis of Variance

Source	DF	F-Value	P-Value
Dispositif	3	80,15	0,000
Débit	2	77,85	0,000
Dispositif*Débit	6	15,70	0,000
Error	24		
Total	35		

Model Summary

S	R-sq	R-sq(adj)	R-sq(pred)
2,69356	95,33%	93,19%	89,50%

c



d

Comparaisons Tukey Pairwise Comparisons:

Grouping Information Using the Tukey Method and 95% Confidence

Dispositif	N	Mean	Grouping
CX-E-600	9	41,9900	A
CX600	9	32,5122	B
CX-C-600	9	25,2400	C
CX-S-600	9	24,8611	C

Means that do not share a letter are significantly different.

Figure 183. Analyse statistique des différences élastiques des mousses en sortie **a)** graphiques des valeurs résiduelles **b)** résultats de l'analyse de variance effectué sur les modules élastiques G' **c)** test post-Anova de Tukey pour détermination de différences **d)** résultats regroupés du test de Tukey.

Annexe J

Précisions de la répétabilité de la granulométrie des bulles

a) Variation de la pression à l'entrée du dispositif, utilisée pour le calcul du diamètre équivalent des bulles dans les microcanaux

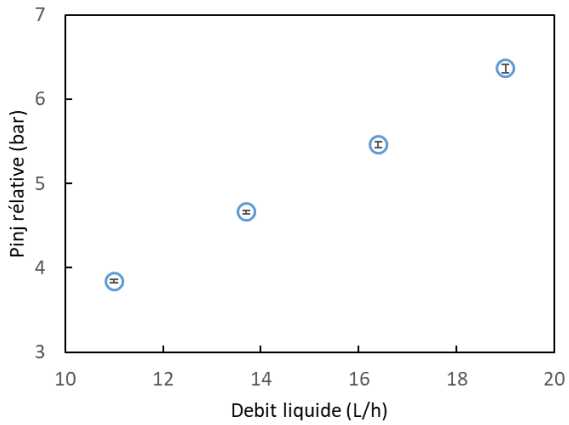


Figure 184. Pression à l'entrée du dispositif microfluidique CX600 pour la solution modèle WPI3XG04 en utilisant les conditions Q_{vL} =11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}, Q_{vL} = 13,7 L.h^{-1}-Q_{mG} = 26,5 g.h^{-1}, Q_{vL} =16,4 L.h^{-1}-Q_{mG} = 31,0 g.h^{-1}, Q_{vL} =19 L.h^{-1}-Q_{mG} = 36,4 g.h^{-1}. Dix mesures en moyenne pour chaque point (prises en trois jours différents).

b) Variation du diamètre des bulles évaluées dans la mousse en sortie de l'installation

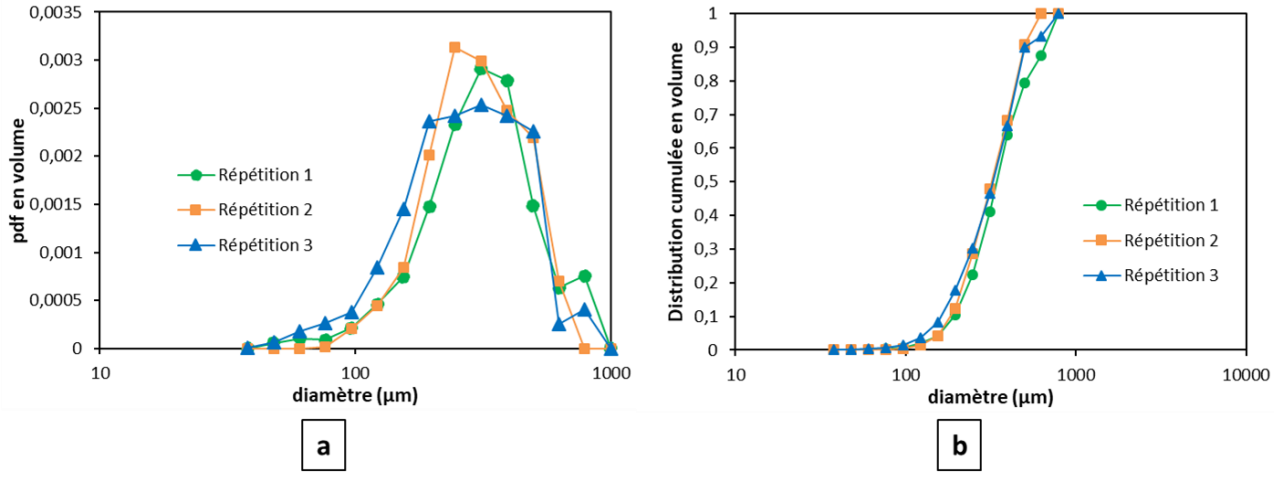


Figure 185. Répétabilité de la granulométrie des bulles en sortie. Illustration pour une mousse ayant une fraction de vide de 0,57 et produite avec le dispositif CX-E-600 et la solution modèle WPI3XG04 à Q_{vL} =11 L.h^{-1}-Q_{mG} = 21,6 g.h^{-1}.
a) granulométrie sous forme de fonction de distribution de probabilité (PDF) **b)** granulométrie sous forme de distribution cumulée en volume.

Références

Abadie, T. (2013). Hydrodynamics of gas-liquid taylor flow in microchannels (Thesis). Université de Toulouse, Toulouse. Retrieved from http://ethesis.inp-toulouse.fr/archive/00002504/01/abadie.pdf

Abdulbari, H. A., Ling, F. W. M., Hassan, Z., & Thin, H. J. (2018). Experimental investigations on biopolymer in enhancing the liquid flow in microchannel. Advances in Polymer Technology, 37(8), 3136–3145. https://doi.org/10.1002/adv.22084

Afzal, A., & Kim, K.-Y. (2014). Flow and mixing analysis of non-Newtonian fluids in straight and serpentine microchannels. Chemical Engineering Science, 116, 263–274. https://doi.org/10.1016/j.ces.2014.05.021

Aguilera, J. M., & Lillford, P. (Eds.). (2008). Food materials science: principles and practice. New York: Springer.

Ajaev, V. S., & Homsy, G. M. (2006). Modeling shapes and dynamics of confined bubbles. Annual Review of Fluid Mechanics, 38(1), 277–307. https://doi.org/10.1146/annurev.fluid.38.050304.092033

Amaya-Bower, L., & Lee, T. (2011). Lattice Boltzmann simulations of bubble formation in a microfluidic T-junction. Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 369(1945), 2405–2413. https://doi.org/10.1098/rsta.2011.0025

Anna, S. L. (2016). Droplets and Bubbles in Microfluidic Devices. Annual Review of Fluid Mechanics, 48(1), 285–309. https://doi.org/10.1146/annurev-fluid-122414-034425

Anna, S. L., & Mayer, H. C. (2006). Microscale tipstreaming in a microfluidic flow focusing device. Physics of Fluids, 18(12), 121512. https://doi.org/10.1063/1.2397023

Atiemo-Obeng, V. A., & Calabrese, R. V. (2003). Rotor–Stator Mixing Devices. In E. L. Paul, V. A. Atiemo-Obeng, & S. M. Kresta (Eds.), *Handbook of Industrial Mixing* (pp. 479–505). Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons, Inc. https://doi.org/10.1002/0471451452.ch8

Augustin, M. A., Oliver, C. M., & Hemar, Y. (2011). Casein, Caseinates, and Milk Protein Concentrates. In R. C. Chandan & M. A. Augustin (Eds.), Dairy ingredients for food processing. Ames, Iowa: Wiley-Blackwell.

AZO Materials. (2016, July 19). Five Reasons Why you Should Replace a Viscometer with a Rheometer. Retrieved February 2, 2019, from https://www.azom.com/article.aspx?ArticleID=13018

Bamforth, C. W. (2004). The Relative Significance of Physics and Chemistry for Beer Foam Excellence: Theory and Practice. *Journal of the Institute of Brewing*, *110*(4), 259–266. https://doi.org/10.1002/j.2050-0416.2004.tb00620.x

Bandara, T., Nguyen, N.-T., & Rosengarten, G. (2015). Slug flow heat transfer without phase change in microchannels: A review. Chemical Engineering Science, 126, 283–295. https://doi.org/10.1016/j.ces.2014.12.007

Barbosa-Cánovas, G. V. (2005). Encyclopedia of life support systems. Paris; EOLSS: UNESCO

Barik, T. K., & Roy, A. (2009). Statistical distribution of bubble size in wet foam. Chemical Engineering Science, 64(9), 2039–2043.

Barnes, H. A. (1999). The yield stress — a review or 'panta roi'—everything flows? Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 81, 133–178.

Barthès-Biesel, D., & Acrivos, A. (1973). Deformation and burst of a liquid droplet freely suspended in a linear shear field. Journal of Fluid Mechanics, 61(01), 1. https://doi.org/10.1017/S0022112073000534

Baviere, R., Ayela, F., Le Person, F., & Favre-Marinet, M. (2004). An experimental study of water flow in smooth and rough rectangular microchannels (pp. 221–228). Presented at the Second International Conference on Microchannels and Minichannels, Rochester, New York, USA.

Beebe, D. J., Mensing, G. A., & Walker, G. M. (2002). Physics and Applications of Microfluidics in Biology. Annual Review of Biomedical Engineering, 4(1), 261–286. https://doi.org/10.1146/annurev.bioeng.4.112601.125916

Belkadi, A. (2015). Étude expérimentale du fractionnement liquide-liquide en micro-canaux pour la production en continu de biodiesels émulsionnés (Thesis). Université de Nantes, Nantes, France.

Benichou, A., Aserin, A., Lutz, R., & Garti, N. (2007). Formation and characterization of amphiphilic conjugates of whey protein isolate (WPI)/xanthan to improve surface activity. Food Hydrocolloids, 21(3), 379–391. https://doi.org/10.1016/j.foodhyd.2006.04.013

Bentley, B. J., & Leal, L. G. (1986). An experimental investigation of drop deformation and breakup in steady, two-dimensional linear flows. Journal of Fluid Mechanics, 167(1), 241. https://doi.org/10.1017/S0022112086002811

Berg, A. van den, & Ramsey, J. M. (Eds.). (2001). Micro total analysis systems 2001: proceedings of the [mu]TAS 2001 Symposium, held in Monterey, CA, USA, 21-25 October, 2001. Dordrecht: Springer. Retrieved from http://site.ebrary.com/id/10661992

Berton-Carabin, C. C., Sagis, L., & Schroën, K. (2018). Formation, Structure, and Functionality of Interfacial Layers in Food Emulsions. *Annual Review of Food Science and Technology*, *9*(1), 551–587. https://doi.org/10.1146/annurev-food-030117-012405

Borwankar, R. P., & Case, S. E. (1997). Rheology of emulsions, foams and gels. Current Opinion in Colloid & Interface Science, 2(6), 584–589. https://doi.org/10.1016/S1359-0294(97)80049-0

Bos, M. A., & van Vliet, T. (2001). Interfacial rheological properties of adsorbed protein layers and surfactants: A review. Advances in Colloid and Interface Science, 91(3), 437–471. https://doi.org/10.1016/S0001-8686(00)00077-4

Boyer, C., Duquenne, A.-M., & Wild, G. (2002). Measuring techniques in gas–liquid and gas–liquid–solid reactors. Chemical Engineering Science, 57(16), 3185–3215. https://doi.org/10.1016/S0009-2509(02)00193-8

Brennen, C. E. (2006). Fundamentals of multiphase flow (Reprint). Cambridge: Cambridge Univ. Press.

Bruijn, R. R. D. (1989). Deformation and breakup of drops in simple shear flows. Technische Universiteit Eindhoven. https://doi.org/10.6100/ir318702

Brunchi, C.-E., Bercea, M., Morariu, S., & Dascalu, M. (2016). Some properties of xanthan gum in aqueous solutions: effect of temperature and pH. *Journal of Polymer Research*, *23*(7). https://doi.org/10.1007/s10965-016-1015-4

Brunchi, C.-E., Morariu, S., & Bercea, M. (2014). Intrinsic viscosity and conformational parameters of xanthan in aqueous solutions: Salt addition effect. Colloids and Surfaces B: Biointerfaces, 122, 512–519. https://doi.org/10.1016/j.colsurfb.2014.07.023

Bucci, A., Celata, G. P., Cumo, M., Serra, E., & Zummo, G. (2004). Water single-phase fluid flow and heat transfer in capillary tubes (pp. 319–326). Presented at the Second International Conference on Microchannels and Minichannels, Rochester, USA: ASME.

Butt, H.-J., Graf, K., & Kappl, M. (2003). *Physics and Chemistry of Interfaces*. Weinheim, FRG: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA. https://doi.org/10.1002/3527602313

Cabral, J. T., & Hudson, S. D. (2006). Microfluidic approach for rapid multicomponent interfacial tensiometry. Lab on a Chip, 6(3), 427. https://doi.org/10.1039/b511976f

Campbell, G. M. (2003). AERATED FOODS. In *Encyclopedia of Food Sciences and Nutrition* (pp. 55–61). Elsevier. https://doi.org/10.1016/B0-12-227055-X/00014-6

Campbell, G., & Mougeot, E. (1999). Creation and characterisation of aerated food products. *Trends in Food Science & Technology*, *10*(9), 283–296. https://doi.org/10.1016/S0924-2244(00)00008-X

Canselier, J.-P., & Poux, M. (2004). Procédés d'émulsification Mécanismes de formation des émulsions. Techniques de l'ingénieur Principes de Formulation, base documentaire : TIB489DUO.(ref. article : j2152). Retrieved from https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/procedes-chimie-bio-agro-th2/principes-de-formulation-42489210/procedes-d-emulsification-j2152/

Cantat, I., & Pitois, O. (2006). Stokes experiment in a liquid foam. Physics of Fluids, 18(8), 083302. https://doi.org/10.1063/1.2267062

Cantat, I., Cohen-Addad, S., Elias, F., Graner, F., Höhler, R., Pitois, O., … Cox, S. J. (Eds.). (2013). Foams: structure and dynamics (1. ed). Oxford: Oxford Univ. Press.

Caro, C. G., Pedley, T. J., Schroter, R. C., & Seed, W. A. (Eds.). (2012). *The mechanics of the circulation* (2nd ed). Cambridge: Cambridge Univ. Press.

Cascao Pereira, L., Johansson, C., J. Radke, C., & Blanch, H. (2003). Surface Forces and Drainage Kinetics of Protein-Stabilized Aqueous Films. Langmuir, 19. https://doi.org/10.1021/la034346+

Castrejón-Pita, A. A., Castrejón-Pita, J. R., & Hutchings, I. M. (2012). Breakup of Liquid Filaments. *Physical Review Letters*, *108*(7). https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.108.074506

Çengel, Y. A., & Cimbala, J. M. (2014). *Fluid mechanics: fundamentals and applications* (Third edition). New York: McGraw Hill.

Chandrasekhar, S. (1961). *Hydrodynamic and Hydromagnetic Stability*. Oxford: Oxford University Press.

Cheftel, J. C., & Lorient, D. (1982). Les propriétés fonctionnelles des protéines laitières et leur amélioration. Le Lait, 62(617–620), 435–483. https://doi.org/10.1051/lait:1982617-62029

Chen, T. T. (n.d.). Using Rheology to Characterize Flow and Viscoelastic Properties of Hydrogels, Adhesives and Biopolymers. Retrieved February 2, 2019, from http://www.tainstruments.com/wp-content/uploads/Biomedical-Seminar-Rheology-final.pdf

Chen, X., Hussein, M., & Becker, T. (2017). Determination of bubble size distribution in gas-liquid two-phase systems via an ultrasound-based method. Engineering in Life Sciences, 17(6), 653–663. https://doi.org/10.1002/elsc.201500148

Cheng, L. (2016). Flow Patterns and Bubble Growth in Microchannels. In Microchannel Phase Change Transport Phenomena (pp. 91–140). Elsevier. https://doi.org/10.1016/B978-0-12-804318-9.00003-0

Cheng, L., & Mewes, D. (Eds.). (2011). *Advances in multiphase flow and heat transfer. Vol. 4: ...* Saif Zone, Sharjah, U.A.E.: Bentham Books.

Chhabra, R. (2006). Bubbles, Drops, and Particles in Non-Newtonian Fluids, Second Edition (Vol. 113). CRC Press. https://doi.org/10.1201/9781420015386

Christopher, G. F., & Anna, S. L. (2007). Microfluidic methods for generating continuous droplet streams. Journal of Physics D: Applied Physics, 40(19), R319–R336. https://doi.org/10.1088/0022-3727/40/19/R01

Coddington, P., & Macian, R. (2002). A study of the performance of void fraction correlations used in the context of drift-flux two-phase flow models. Nuclear Engineering and Design, 215(3), 199–216. https://doi.org/10.1016/S0029-5493(01)00503-9

Cohen-Addad, S., & Höhler, R. (2014). Rheology of foams and highly concentrated emulsions. Current Opinion in Colloid & Interface Science, 19(6), 536–548. https://doi.org/10.1016/j.cocis.2014.11.003

Cohen-Addad, S., Höhler, R., & Pitois, O. (2013). Flow in Foams and Flowing Foams. Annual Review of Fluid Mechanics, 45(1), 241–267. https://doi.org/10.1146/annurev-fluid-011212-140634

Colin, A. (2012). Coalescence in Foams. In P. Stevenson (Ed.), Foam Engineering Fundamentals and Applications. Chichester, UK: John Wiley & Sons, Ltd. https://doi.org/10.1002/9781119954620.fmatter

Comolet, R. (1994). Mécanique expérimentale des fluides. Dynamique des fluides réels, turbomachines. Paris: Masson.

Cook, A. W., & Dimotakis, P. E. (2001). Transition stages of Rayleigh–Taylor instability between miscible fluids. Journal of Fluid Mechanics, 443. https://doi.org/10.1017/S0022112001005377

Copeland, D., Ren, C., Su, M., & Ligrani, P. (2017). Elastic turbulence influences and convective heat transfer within a miniature viscous disk pump. International Journal of Heat and Mass Transfer, 108, 1764–1774. https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2016.12.075

Costa, A. L. R., Gomes, A., & Cunha, R. L. (2017). Studies of droplets formation regime and actual flow rate of liquid-liquid flows in flow-focusing microfluidic devices. Experimental Thermal and Fluid Science, 85, 167–175. https://doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2017.03.003

Costa, S. (2012). Rhéologie multiéchelle des mousses liquides (Thesis). Université Paris-Est Marne-la-Vallée. Retrieved from https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00778076/file/TH2012PEST1120_complete.pdf

Couarraze, G., Grossiord, J.-L., & Huang, N. (2014). Initiation à la rhéologie: bases théoriques et applications expérimentales.

Coussot, P., & Guyon, É. (2014). Rheophysics: matter in all its states. Cham; Heidelberg; New York: Springer.

Cubaud, T., & Ho, C.-M. (2004). Transport of bubbles in square microchannels. Physics of Fluids, 16(12), 4575–4585. https://doi.org/10.1063/1.1813871

Cubaud, T., & Mason, T. G. (2008). Capillary threads and viscous droplets in square microchannels. Physics of Fluids, 20(5), 053302. https://doi.org/10.1063/1.2911716

Damodaran, S., & Paraf, A. (Eds.). (1997). Food proteins and their applications. New York: Marcel Dekker.

Damodaran, S., Parkin, K. L., & Fennema, O. R. (Eds.). (2008). Fennema's food chemistry (4th ed). Boca Raton, Fla.: CRC Press.

De Bruijn, R. (1989). *Deformation and breakup of drops in simple shear flows* (Thesis). Technische Universiteit Eindhoven. https://doi.org/10.6100/IR318702

De Bruijn, R. A. (1993). Tipstreaming of drops in simple shear flows. Chemical Engineering Science, 48(2), 277–284. https://doi.org/10.1016/0009-2509(93)80015-I

de Kruif, C. G., & Tuinier, R. (2001). Polysaccharide protein interactions. Food Hydrocolloids, 15(4–6), 555–563. https://doi.org/10.1016/S0268-005X(01)00076-5

Delaplace, G., Loubière, K., Ducept, F., & Jeantet, R. (2015). *Dimensional Analysis of Food Process.* Oxford, UK: Elsevier Science & ISTE Press. Retrieved from http://www.sciencedirect.com/science/book/9781785480409

Denkov, N. D., Tcholakova, S. S., Höhler, R., & Cohen-Addad, S. (2012). Foam Rheology. In P. Stevenson (Ed.), Foam Engineering (pp. 91–120). Chichester, UK: John Wiley & Sons, Ltd. https://doi.org/10.1002/9781119954620.ch6

Denn, M. M. (2004). Fifty years of non-Newtonian fluid dynamics. AIChE Journal, 50(10), 2335–2345.

Deshpande, A. P., Krishnan, J. M., & Kumar, P. B. S. (Eds.). (2010). *Rheology of complex fluids*. New York: Springer.

Desir, P., Chen, T.-Y., Bracconi, M., Saha, B., Maestri, M., & Vlachos, D. G. (2019). Experiments and computations of microfluidic liquid–liquid flow patterns. *Reaction Chemistry & Engineering*, 10.1039.C9RE00332K. https://doi.org/10.1039/C9RE00332K

Dickinson, E. (1999). Adsorbed protein layers at fluid interfaces: interactions, structure and surface rheology. Colloids and Surfaces B: Biointerfaces, 15(2), 161–176. https://doi.org/10.1016/S0927-7765(99)00042-9

Dickinson, E. (2017). Biopolymer-based particles as stabilizing agents for emulsions and foams. Food Hydrocolloids, 68, 219–231. https://doi.org/10.1016/j.foodhyd.2016.06.024

Dollet, B., & Raufaste, C. (2014). Rheology of aqueous foams. Comptes Rendus Physique, 15(8–9), 731–747. https://doi.org/10.1016/j.crhy.2014.09.008

Donato, L., & Guyomarc'h, F. (2009). Formation and properties of the whey protein/κ-casein complexes in heated skim milk – A review. Dairy Science and Technology, 89(1), 3–29. https://doi.org/10.1051/dst:2008033

Drenckhan, W., & Saint-Jalmes, A. (2015). The science of foaming. Advances in Colloid and Interface Science, 222, 228–259. https://doi.org/10.1016/j.cis.2015.04.001

Driessen, T., Jeurissen, R., Wijshoff, H., Toschi, F., & Lohse, D. (2013). Stability of viscous long liquid filaments. Physics of Fluids, 25(6), 062109. https://doi.org/10.1063/1.4811849

Duraiswamy, S., & Khan, S. A. (2009). Droplet-Based Microfluidic Synthesis of Anisotropic Metal Nanocrystals. *Small*, *5*(24), 2828–2834. https://doi.org/10.1002/smll.200901453

Eggers, J., & Villermaux, E. (2008). Physics of liquid jets. Reports on Progress in Physics, 71(3), 036601. https://doi.org/10.1088/0034-4885/71/3/036601

Elgeti, D., Jekle, M., & Becker, T. (2015). Strategies for the aeration of gluten-free bread – A review. Trends in Food Science & Technology, 46(1), 75–84. https://doi.org/10.1016/j.tifs.2015.07.010

Elvira, K. S., i Solvas, X. C., Wootton, R. C. R., & deMello, A. J. (2013). The past, present and potential for microfluidic reactor technology in chemical synthesis. Nature Chemistry, 5(11), 905–915. https://doi.org/10.1038/nchem.1753

Eugénie, S. de P., Fabrice, D., Gérard, C., & Samir, M. (2014). Effect of bulk viscosity and surface tension kinetics on structure of foam generated at the pilot scale. Food Hydrocolloids, 34, 104–111. https://doi.org/10.1016/j.foodhyd.2012.12.001

Euston, S. R., & Hirst, R. L. (2000). The Emulsifying Properties of Commercial Milk Protein Products in Simple Oil-in-Water Emulsions and in a Model Food System. Journal of Food Science, 65(6), 934–940. https://doi.org/10.1111/j.1365-2621.2000.tb09396.x

Fameau, A.-L., & Salonen, A. (2014). Effect of particles and aggregated structures on the foam stability and aging. Comptes Rendus Physique, 15(8–9), 748–760. https://doi.org/10.1016/j.crhy.2014.09.009

Fameau, A.-L., Arnould, A., Houinsou Houssou, B., & Douliez, J. (2013). Tensioactifs, mousses et émulsions. In J. Legrand (Ed.), Emulsions alimentaires et foisonnement. Paris, France: Lavoisier.

Farr, R. S., & Groot, R. D. (2009). Close packing density of polydisperse hard spheres. The Journal of Chemical Physics, 131(24), 244104. https://doi.org/10.1063/1.3276799

Fitremann, J.-M. (1983). Écoulements diphasiques gaz-liquide. In Techniques de l'Ingénieur (Vol. a772, p. 30). Editions T.I.

Foegeding, E. A., Davis, J. P., Doucet, D., & McGuffey, M. K. (2002). Advances in modifying and understanding whey protein functionality. Trends in Food Science & Technology, 13(5), 151–159. https://doi.org/10.1016/S0924-2244(02)00111-5

Foegeding, E. A., Luck, P. J., & Davis, J. P. (2006). Factors determining the physical properties of protein foams. Food Hydrocolloids, 20(2–3), 284–292. https://doi.org/10.1016/j.foodhyd.2005.03.014

Francis, F. J. (Ed.). (2000). *Encyclopedia of food science and technology* (2., [rev.] ed). New York: Wiley.

Frank, X., Charpentier, J.-C., Ma, Y., Midoux, N., & Li, H. Z. (2012). A Multiscale Approach for Modeling Bubbles Rising in Non-Newtonian Fluids. Industrial & Engineering Chemistry Research, 51(4), 2084–2093.

Fu, T., & Ma, Y. (2015). Bubble formation and breakup dynamics in microfluidic devices: A review. Chemical Engineering Science, 135, 343–372. https://doi.org/10.1016/j.ces.2015.02.016

Fu, T., Ma, Y., Funfschilling, D., & Li, H. Z. (2009). Bubble formation and breakup mechanism in a microfluidic flow-focusing device. Chemical Engineering Science, 64(10), 2392–2400. https://doi.org/10.1016/j.ces.2009.02.022

Fu, T., Ma, Y., Funfschilling, D., Zhu, C., & Li, H. Z. (2010). Squeezing-to-dripping transition for bubble formation in a microfluidic T-junction. Chemical Engineering Science, 65(12), 3739-3748.

Fu, T., Wei, L., Zhu, C., & Ma, Y. (2015). Flow patterns of liquid–liquid two-phase flow in non-Newtonian fluids in rectangular microchannels. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 91, 114–120.

Funada, T., & Joseph, D. D. (2001). Viscous potential flow analysis of Kelvin–Helmholtz instability in a channel. Journal of Fluid Mechanics, 445. https://doi.org/10.1017/S0022112001005572

Furukawa, T., & Fukano, T. (2001). Effects of liquid viscosity on flow patterns in vertical upward gas–liquid two-phase flow. *International Journal of Multiphase Flow*, *27*(6), 1109–1126. https://doi.org/10.1016/S0301-9322(00)00066-5

Gad-el-Hak, M. (Ed.). (2006). MEMS: introduction and fundamentals (2nd ed). Boca Raton, Florida, USA: CRC/Taylor & Francis.

Gaillard, T. (2016). Ecoulements confinés à haut et bas Reynolds : génération millifluidique de mousse et drainage de films minces de copolymères (Thesis). Université Paris Saclay.

Galindo-Rosales, F. J., Alves, M. A., & Oliveira, M. S. N. (2013). Microdevices for extensional rheometry of low viscosity elastic liquids: a review. Microfluidics and Nanofluidics, 14(1–2), 1–19. https://doi.org/10.1007/s10404-012-1028-1

Galindo-Rosales, F. J., Campo-Deaño, L., Sousa, P. C., Ribeiro, V. M., Oliveira, M. S. N., Alves, M. A., & Pinho, F. T. (2014). Viscoelastic instabilities in micro-scale flows. Experimental Thermal and Fluid Science, 59, 128–139. https://doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2014.03.004

Gañán-Calvo, A. M. (2004). Perfectly monodisperse microbubbling by capillary flow focusing: An alternate physical description and universal scaling. Physical Review E, 69(2). https://doi.org/10.1103/PhysRevE.69.027301

Gañán-Calvo, A. M., & Gordillo, J. M. (2001). Perfectly Monodisperse Microbubbling by Capillary Flow Focusing. Physical Review Letters, 87(27). https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.87.274501

Gañán-Calvo, A. M., Herrada, M. A., & Garstecki, P. (2006). Bubbling in Unbounded Coflowing Liquids. *Physical Review Letters*, *96*(12). https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.96.124504

García-Ochoa, F., Santos, V. ., Casas, J. ., & Gómez, E. (2000). Xanthan gum: production, recovery, and properties. Biotechnology Advances, 18(7), 549–579. https://doi.org/10.1016/S0734-9750(00)00050-1

Garstecki, P., Fuerstman, M. J., Stone, H. A., & Whitesides, G. M. (2006). Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction—scaling and mechanism of break-up. Lab on a Chip, 6(3), 437. https://doi.org/10.1039/b510841a

Garstecki, P., Gañán-Calvo, A. M., & Whitesides, G. M. (2005). Formation of bubbles and droplets in microfluidic systems. Bulletin of the polish academy of science, 12.

Garstecki, P., Gitlin, I., DiLuzio, W., Whitesides, G. M., Kumacheva, E., & Stone, H. A. (2004). Formation of monodisperse bubbles in a microfluidic flow-focusing device. Applied Physics Letters, 85(13), 2649–2651. https://doi.org/10.1063/1.1796526

Garstecki, P., Stone, H. A., & Whitesides, G. M. (2005). Mechanism for Flow-Rate Controlled Breakup in Confined Geometries: A Route to Monodisperse Emulsions. Physical Review Letters, 94(16). https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.94.164501

Gaudet, S., & McKinley, G. H. (1998). Extensional deformation of non-Newtonian liquid bridges. Computational Mechanics, 21(6), 461–476. https://doi.org/10.1007/s004660050325

Ghiaasiaan, S. M. (2008). Two-phase flow, boiling and condensation: in conventional and miniature systems. New York, NY: Cambridge Univ. Press.

Ghosh, D. P., Raj, R., Mohanty, D., & Saha, S. K. (2016). Onset of Nucleate Boiling, Void Fraction, and Liquid Film Thickness. In Microchannel Phase Change Transport Phenomena (pp. 5–90). Elsevier. https://doi.org/10.1016/B978-0-12-804318-9.00002-9

González Méndez, N. (1990). Mise en œuvre d'un procédé de foisonnement en continu en échangeurs de chaleur à surface raclée. Elaboration de mousses de viande et de poisson (Thesis). Université Blaise Pascal, Clermont-Ferrand, France.

Gopal, A. D., & Durian, D. J. (2003). Relaxing in Foam. Physical Review Letters, 91(18). https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.91.188303

Gottschalk, M., Nilsson, H., Roos, H., & Halle, B. (2003). Protein self-association in solution: The bovine β -lactoglobulin dimer and octamer. *Protein Science*, *12*(11), 2404–2411. https://doi.org/10.1110/ps.0305903

Grace, H. P. (1982). Dispersion phenomena in high viscosity immiscible fluid systems and application of static mixers as dispersion devices in such systems. *Chemical Engineering Communications*, *14*(3–6), 225–277. https://doi.org/10.1080/00986448208911047

Groisman, A., & Steinberg, V. (2000). Elastic turbulence in a polymer solution flow. Nature, 405(6782), 53–55. https://doi.org/10.1038/35011019

Gu, Z. (2013). *Experimental and Theoretical Study of Droplet Formation at a T-junction with Xanthan Gum Solutions*. University of New South Wales.

Günther, A., & Jensen, K. F. (2006). Multiphase microfluidics: from flow characteristics to chemical and materials synthesis. Lab Chip, 6(12), 1487–1503. https://doi.org/10.1039/B609851G

Günther, A., & Kreutzer, M. T. (2009). Fluid Dynamics in Microchannels. In V. Hessel (Ed.), Micro process engineering: a comprehensive handbook. Weinheim: Wiley-VCH.

Haase, S. (2016). Characterisation of gas-liquid two-phase flow in minichannels with co-flowing fluid injection inside the channel, part II: gas bubble and liquid slug lengths, film thickness, and void fraction within Taylor flow. International Journal of Multiphase Flow, 88, 251–269. https://doi.org/10.1016/j.ijmultiphaseflow.2016.09.002

Haase, S. (2017). Characterisation of gas-liquid two-phase flow in minichannels with co-flowing fluid injection inside the channel, part II: gas bubble and liquid slug lengths, film thickness, and void fraction within Taylor flow. International Journal of Multiphase Flow, 88, 251–269. H

Hallett, W. L. H., & Günther, R. (1984). Flow and mixing in swirling flow in a sudden expansion. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, *62*(1), 149–155. https://doi.org/10.1002/cjce.5450620123

Hanselmann, W., & Windhab, E. (1998). Flow characteristics and modelling of foam generation in a continuous rotor/stator mixer. Journal of Food Engineering, 38(4), 393–405. https://doi.org/10.1016/S0260-8774(98)00129-0

Hartel, R. W. (2017). Confectionery science and technology. New York, NY: Springer Science+Business Media.

Hartman, R. L., & Jensen, K. F. (2009). Microchemical systems for continuous-flow synthesis. Lab on a Chip, 9(17), 2495. https://doi.org/10.1039/b906343a

Herrada, M. A., Gañán-Calvo, A. M., & Montanero, J. M. (2013). Theoretical investigation of a technique to produce microbubbles by a microfluidic T junction. Physical Review E, 88(3), 033027. https://doi.org/10.1103/PhysRevE.88.033027

Hudson, S. D., Cabral, J. T., Goodrum, W. J., Beers, K. L., & Amis, E. J. (2005). Microfluidic interfacial tensiometry. Applied Physics Letters, 87(8), 081905. https://doi.org/10.1063/1.2034098

Hudson, S. D., Phelan, F. R., Handler, M. D., Cabral, J. T., Migler, K. B., & Amis, E. J. (2004). Microfluidic analog of the four-roll mill. *Applied Physics Letters*, *85*(2), 335–337. https://doi.org/10.1063/1.1767594

Huffman, L. M., & Barros Ferreira, L. (2011). Whey - based Ingredients. In R. C. Chandan & M. A. Augustin (Eds.), Dairy ingredients for food processing. Ames, Iowa: Wiley-Blackwell.

Huppertz, T., Fox, P. F., & Kelly, A. L. (2018). The caseins: Structure, stability, and functionality. In R. Y. Yada (Ed.), Proteins in food processing (Second edition). Duxford, United Kingdom: Woodhead Publishing is an imprint of Elsevier.

ICF International. (2016). Xanthan Gum Handling and Processing. Retrieved from https://www.ams.usda.gov/sites/default/files/media/TRXanthanGumHandling042216.pdf

Indrawati, L., Wang, Z., Narsimhan, G., & Gonzalez, J. (2008). Effect of processing parameters on foam formation using a continuous system with a mechanical whipper. *Journal of Food Engineering*, *88*(1), 65–74. https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2008.01.015

Jain, S. S. (2017). Flow-induced breakup of drops and bubbles. *ArXiv:1701.06157 [Physics]*. Retrieved from http://arxiv.org/abs/1701.06157

Janssen, J. J. M., Boon, A., & Agterof, W. G. M. (1994). Influence of dynamic interfacial properties on droplet breakup in simple shear flow. *AIChE Journal*, *40*(12), 1929–1939. https://doi.org/10.1002/aic.690401202

Janssen, J. M. H., & Meijer, H. E. H. (1993). Droplet breakup mechanisms: Stepwise equilibrium versus transient dispersion. *Journal of Rheology*, *37*(4), 597–608. https://doi.org/10.1122/1.550385

Jeong, W.-C., Lim, J.-M., Choi, J.-H., Kim, J.-H., Lee, Y.-J., Kim, S.-H., … Yang, S.-M. (2012). Controlled generation of submicron emulsion droplets via highly stable tip-streaming mode in microfluidic devices. *Lab on a Chip*, *12*(8), 1446. https://doi.org/10.1039/c2lc00018k

Joensson, H. N., Samuels, M. L., Brouzes, E. R., Medkova, M., Uhlén, M., Link, D. R., & Andersson-Svahn, H. (2009). Detection and Analysis of Low-Abundance Cell-Surface Biomarkers Using Enzymatic Amplification in Microfluidic Droplets. *Angewandte Chemie International Edition*, *48*(14), 2518–2521. https://doi.org/10.1002/anie.200804326

Kandlikar, S. G., Garimella, S., Li, D., Colin, S., & King, M. R. (2014). *heat transfer and fluid flow in minichannels and microchannels.pdf*. Oxford, UK: Butterworth-Heinemann.

Kang, K. S., & Pettitt, D. J. (1993). XANTHAN, GELLAN, WELAN, AND RHAMSAN. In R. L. Whistler & J. N. BeMiller (Eds.), Industrial gums: polysaccharides and their derivatives (3rd ed). San Diego: Academic Press.

Kang, K., Lee, L. J., & Koelling, K. W. (2005). High shear microfluidics and its application in rheological measurement. Experiments in Fluids, 38(2), 222–232. https://doi.org/10.1007/s00348-004-0901-4

Kang, Y. J., Yoon, S. Y., Lee, K.-H., & Yang, S. (2010). A Highly Accurate and Consistent Microfluidic Viscometer for Continuous Blood Viscosity Measurement: MICROFLUIDIC BLOOD VISCOMETER. *Artificial Organs*, *34*(11), 944–949. https://doi.org/10.1111/j.1525-1594.2010.01078.x

Kawahara, A., Chung, P. M.-Y., & Kawaji, M. (2002). Investigation of two-phase flow pattern, void fraction and pressure drop in a microchannel. International Journal of Multiphase Flow, 28(9), 1411–1435. https://doi.org/10.1016/S0301-9322(02)00037-X

Kawakatsu, T., Kikuchi, Y., & Nakajima, M. (1997). Regular-sized cell creation in microchannel emulsification by visual microprocessing method. Journal of the American Oil Chemists' Society, 74(3), 317–321. https://doi.org/10.1007/s11746-997-0143-8

Khouryieh, H. A., Herald, T. J., Aramouni, F., & Alavi, S. (2007). Intrinsic viscosity and viscoelastic properties of xanthan/guar mixtures in dilute solutions: Effect of salt concentration on the polymer interactions. Food Research International, 40(7), 883–893. https://doi.org/10.1016/j.foodres.2007.03.001

Koehler, S. A. (2012). Foam Drainage. In P. Stevenson (Ed.), Foam Engineering (pp. 27–58). Chichester, UK: John Wiley & Sons, Ltd. https://doi.org/10.1002/9781119954620.ch3

Kowalczuk, P. B., & Drzymala, J. (2016). Physical meaning of the Sauter mean diameter of spherical particulate matter. Particulate Science and Technology, 34(6), 645–647. https://doi.org/10.1080/02726351.2015.1099582

Kreutzer, M. T., Kapteijn, F., Moulijn, J. A., & Heiszwolf, J. J. (2005). Multiphase monolith reactors: Chemical reaction engineering of segmented flow in microchannels. Chemical Engineering Science, 60(22), 5895–5916. https://doi.org/10.1016/j.ces.2005.03.022

Kulkarni, A. A., Joshi, J. B., & Ramkrishna, D. (2004). Determination of bubble size distributions in bubble columns using LDA. AIChE Journal, 50(12), 3068–3084. https://doi.org/10.1002/aic.10274

Lambert, J., Cantat, I., Delannay, R., Mokso, R., Cloetens, P., Glazier, J. A., & Graner, F. (2007). Experimental Growth Law for Bubbles in a Moderately "Wet" 3D Liquid Foam. Physical Review Letters, 99(5). https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.99.058304

Langevin, D. (2017). Aqueous foams and foam films stabilised by surfactants. Gravity-free studies. Comptes Rendus Mécanique, 345(1), 47–55. https://doi.org/10.1016/j.crme.2016.10.009

Laporte, M. (2014). Étude de l'écoulement diphasique à l'échelle millimétrique et micrométrique : applications aux mousse (Thesis). Université de Nantes, Nantes, France.

Laporte, M., Loisel, C., Della Valle, D., Riaublanc, A., & Montillet, A. (2014). Flow process conditions to control the void fraction of food foams in static mixers. Journal of Food Engineering, 128, 119–126. https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2013.12.017

Laporte, M., Montillet, A., Della Valle, D., Loisel, C., & Riaublanc, A. (2016). Characteristics of foams produced with viscous shear thinning fluids using microchannels at high throughput. Journal of Food Engineering, 173, 25–33. https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2015.10.032

Larson, R. G. (2000). Turbulence without inertia. Nature, 405(6782), 27–28. https://doi.org/10.1038/35011172

Leal, L. G. (2004). Flow induced coalescence of drops in a viscous fluid. *Physics of Fluids*, *16*(6), 1833–1851. https://doi.org/10.1063/1.1701892

Lee, W., Walker, L. M., & Anna, S. L. (2009). Role of geometry and fluid properties in droplet and thread formation processes in planar flow focusing. Physics of Fluids, 21(3), 032103. https://doi.org/10.1063/1.3081407

Lexis, M., & Willenbacher, N. (2014a). Yield stress and elasticity of aqueous foams from protein and surfactant solutions – The role of continuous phase viscosity and interfacial properties. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 459, 177–185. https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2014.06.030

Lexis, M., & Willenbacher, N. (2014b). Relating foam and interfacial rheological properties of β-lactoglobulin solutions. Soft Matter, 10(48), 9626–9636. https://doi.org/10.1039/C4SM01972E

Li, D. (Ed.). (2008). *Encyclopedia of microfluidics and nanofluidics: with 152 tables*. New York, NY: Springer.

Lieu, B. K. (2014). Dynamics and Control ofNewtonian and Viscoelastic Fluids (Thesis). University of Minnesota, USA.

Lin, B., & Basuray, S. (Eds.). (2011). *Microfluidics: technologies and applications*. Berlin Heidelberg Dordrecht: Springer.

Link, D. R., Anna, S. L., Weitz, D. A., & Stone, H. A. (2004). Geometrically Mediated Breakup of Drops in Microfluidic Devices. Physical Review Letters, 92(5). https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.92.054503

Lizarralde Iragorri, M. A., El Hoss, S., Brousse, V., Lefevre, S. D., Dussiot, M., Xu, T., … El Nemer, W. (2018). A microfluidic approach to study the effect of mechanical stress on erythrocytes in sickle cell disease. *Lab on a Chip*, *18*(19), 2975–2984. https://doi.org/10.1039/C8LC00637G

Loisel, C., & Lefebvre, A.-C. (2013). Formulation des émulsions et des mousses alimentaires. In J. Legrand (Ed.), *Emulsions alimentaires et foisonnement*. Paris, France: Lavoisier.

Luck, P. J., Bray, N., & Foegeding, E. A. (2002). Factors Determining Yield Stress and Overrun of Whey Protein Foams. Journal of Food Science, 67(5), 1677–1681. https://doi.org/10.1111/j.1365-2621.2002.tb08704.x

Macosko, C. W. (1994). *Rheology: principles, measurements, and applications*. New York: VCH.

Madou, M. J. (2002). Fundamentals of Microfabrication: the Science of Miniaturization, Second Edition. London: Chapman and Hall/CRC. Retrieved from http://public.eblib.com/choice/publicfullrecord.aspx?p=5535346

Mak, H., & Balabani, S. (2007). Near field characteristics of swirling flow past a sudden expansion. *Chemical Engineering Science*, *62*(23), 6726–6746. https://doi.org/10.1016/j.ces.2007.07.009

Mansour, M. H., Kawahara, A., & Sadatomi, M. (2015). Experimental investigation of gas–non-Newtonian liquid two-phase flows from T-junction mixer in rectangular microchannel. *International Journal of Multiphase Flow*, *72*, 263–274. https://doi.org/10.1016/j.ijmultiphaseflow.2015.02.019

Marmottant, P., & Raven, J.-P. (2009). Microfluidics with foams. *Soft Matter*, *5*(18), 3385. https://doi.org/10.1039/b903276b

Martin, J. D., & Hudson, S. D. (2009). Mass transfer and interfacial properties in two-phase microchannel flows. New Journal of Physics, 11(11), 115005. https://doi.org/10.1088/1367-2630/11/11/115005

Martin, P. J. (2012). Foams in Consumer Products. In P. Stevenson (Ed.), Foam Engineering (pp. 459–475). Chichester, UK: John Wiley & Sons, Ltd. https://doi.org/10.1002/9781119954620.ch18

Martínez-Padilla, L. P., García-Rivera, J. L., Romero-Arreola, V., & Casas-Alencáster, N. B. (2015). Effects of xanthan gum rheology on the foaming properties of whey protein concentrate. Journal of Food Engineering, 156, 22–30. https://doi.org/10.1016/j.jfoodeng.2015.01.018

Mary, G. (2011). Prise en compte des effets du produit et du procédé aucours de l'opération de foisonnement par battage encontinu - Analyse dimensionnelle (Thesis). AgroParisTech, Paris, France.

Mary, G., Mezdour, S., Delaplace, G., Lauhon, R., Cuvelier, G., & Ducept, F. (2013). Modelling of the continuous foaming operation by dimensional analysis. *Chemical Engineering Research and Design*, *91*(12), 2579–2586. https://doi.org/10.1016/j.cherd.2013.05.020

Mashaghi, S., Abbaspourrad, A., Weitz, D. A., & van Oijen, A. M. (2016). Droplet microfluidics: A tool for biology, chemistry and nanotechnology. TrAC Trends in Analytical Chemistry, 82, 118–125. https://doi.org/10.1016/j.trac.2016.05.019

Mason, T. G., Bibette, J., & Weitz, D. A. (1995). Elasticity of Compressed Emulsions. Physical Review Letters, 75(10), 2051–2054. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.75.2051

Mason, T. G., Bibette, J., & Weitz, D. A. (1996). Yielding and Flow of Monodisperse Emulsions. Journal of Colloid and Interface Science, 179(2), 439–448. https://doi.org/10.1006/jcis.1996.0235

Matsubara, H., & Naito, K. (2011). Effect of liquid viscosity on flow patterns of gas–liquid two-phase flow in a horizontal pipe. *International Journal of Multiphase Flow*, *37*(10), 1277–1281. https://doi.org/10.1016/j.ijmultiphaseflow.2011.08.001

McClements, D. J. (2005). *Food emulsions: principles, practices, and techniques* (2. ed). Boca Raton, Fla.: CRC Press.

McSweeney, P. L. H., & Fox, P. F. (Eds.). (2013). *Proteins: basic aspects* (4th ed). New York: Springer.

Merkus, H. G. (2009). Particle size measurements: Fundamentals, practice, quality. New York. Springer.

Mezzenga, R., Schurtenberger, P., Burbidge, A., & Michel, M. (2005). Understanding foods as soft materials. Nature Materials, 4(10), 729–740. https://doi.org/10.1038/nmat1496

Michaelides, E. E., Crowe, C. T., & Schwarzkopf, J. D. (Eds.). (2017). *Multiphase Flow Handbook* (Vol. 20013045). CRC Press. https://doi.org/10.1201/9781420042399

Microfluidics by optical imaging to measure shear viscosity with high precision. (n.d.). Retrieved May 1, 2019, from http://www.formulaction.com/en/products-and-technologies/technologies/microfluidics-by-optical-imaging

Minakov, A. V., Shebeleva, A. A., Yagodnitsyna, A. A., Kovalev, A. V., & Bilsky, A. V. (2019). Flow Regimes of Viscous Immiscible Liquids in T-Type Microchannels. *Chemical Engineering & Technology*, *42*(5), 1037–1044. https://doi.org/10.1002/ceat.201800497

Miskovic, S. (2011). AN INVESTIGATION OF THE GAS DISPERSION PROPERTIES OF MECHANICAL FLOTATION CELLS: AN IN-SITU APPROACH (Thesis). Virginia Polytechnic Institute and State University, Virginia, USA. Retrieved from https://vtechworks.lib.vt.edu/bitstream/handle/10919/30223/Miskovic_S_D_2011.pdf?sequence=1&isAllowed=y

Möbius, D., & Miller, R. (Eds.). (1998). Proteins at liquid interfaces. Amsterdam: Elsevier.

Modular Compact Rheometers. (2018). Retrieved May 1, 2019, from https://www.anton-paar.com/?eID=documentsDownload&document=57983&L=0

Mohammadi, M., & Sharp, K. V. (2013). Experimental Techniques for Bubble Dynamics Analysis in Microchannels: A Review. Journal of Fluids Engineering, 135(2), 021202. https://doi.org/10.1115/1.4023450

Moitzi, C., Donato, L., Schmitt, C., Bovetto, L., Gillies, G., & Stradner, A. (2011). Structure of β-lactoglobulin microgels formed during heating as revealed by small-angle X-ray scattering and light scattering. *Food Hydrocolloids*, *25*(7), 1766–1774. https://doi.org/10.1016/j.foodhyd.2011.03.020

Mott, C. L., Hettiarachchy, N. S., & Qi, M. (1999). Effect of xanthan gum on enhancing the foaming properties of whey protein isolate. *Journal of the American Oil Chemists' Society*, *76*(11), 1383–1386. https://doi.org/10.1007/s11746-999-0154-8

Moyle, T. M., Walker, L. M., & Anna, S. L. (2012). Predicting conditions for microscale surfactant mediated tipstreaming. *Physics of Fluids*, *24*(8), 082110. https://doi.org/10.1063/1.4746253

Mueller, S., Llewellin, E. W., & Mader, H. M. (2010). The rheology of suspensions of solid particles. Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 466(2116), 1201–1228. https://doi.org/10.1098/rspa.2009.0445

Muijlwijk, K., Berton-Carabin, C., & Schroën, K. (2016a). Cross-flow microfluidic emulsification from a food perspective. *Trends in Food Science & Technology*, *49*, 51–63. https://doi.org/10.1016/j.tifs.2016.01.004

Muijlwijk, K., Hinderink, E., Ershov, D., Berton-Carabin, C., & Schroën, K. (2016b). Interfacial tension measured at high expansion rates and within milliseconds using microfluidics. *Journal of Colloid and Interface Science*, *470*, 71–79. https://doi.org/10.1016/j.jcis.2016.02.041

Müller-Fischer, N., & Windhab, E. J. (2005). Influence of process parameters on microstructure of food foam whipped in a rotor–stator device within a wide static pressure range. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, *263*(1–3), 353–362. https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2004.12.057

Müller-Fischer, N., Tobler, P., Dressler, M., Fischer, P., & Windhab, E. J. (2008). Single bubble deformation and breakup in simple shear flow. Experiments in Fluids, 45(5), 917–926.

Müller-Fischer, N., Tobler, P., Dressler, M., Fischer, P., & Windhab, E. J. (2008). Single bubble deformation and breakup in simple shear flow. *Experiments in Fluids*, *45*(5), 917–926. https://doi.org/10.1007/s00348-008-0509-1

Narchi, I. (2008). Etude du procédé de foisonnement en continu des milieux modèles : interaction formulation-procédé sur les propriétés du produit fini (Thesis). Université Blaise Pascal.

Narchi, I., Vial, C., & Djelveh, G. (2007). Influence of bulk and interfacial properties and operating conditions on continuous foaming operation applied to model media. *Food Research International*, *40*(8), 1069–1079. https://doi.org/10.1016/j.foodres.2007.06.002

Narchi, I., Vial, Ch., & Djelveh, G. (2009). Effect of protein–polysaccharide mixtures on the continuous manufacturing of foamed food products. *Food Hydrocolloids*, *23*(1), 188–201. https://doi.org/10.1016/j.foodhyd.2007.12.010

Nghe, P., Terriac, E., Schneider, M., Li, Z. Z., Cloitre, M., Abecassis, B., & Tabeling, P. (2011). Microfluidics and complex fluids. Lab on a Chip, 11(5), 788. https://doi.org/10.1039/c0lc00192a

Nghe, P., Terriac, E., Schneider, M., Li, Z. Z., Cloitre, M., Abecassis, B., & Tabeling, P. (2011). Microfluidics and complex fluids. *Lab on a Chip*, *11*(5), 788. https://doi.org/10.1039/c0lc00192a

Nicorescu, I., Loisel, C., Riaublanc, A., Vial, C., Djelveh, G., Cuvelier, G., & Legrand, J. (2009). Effect of dynamic heat treatment on the physical properties of whey protein foams. Food Hydrocolloids, 23(4), 1209–1219. https://doi.org/10.1016/j.foodhyd.2008.09.005

O'Mahony, J. A., & Fox, P. F. (2013). Milk Proteins: Introduction and Historical Aspects. In P. L. H. McSweeney & P. F. Fox (Eds.), Advanced Dairy Chemistry (pp. 43–85). Boston, MA: Springer US. https://doi.org/10.1007/978-1-4614-4714-6_2

Oliveira, M. S. N., Yeh, R., & McKinley, G. H. (2006). Iterated stretching, extensional rheology and formation of beads-on-a-string structures in polymer solutions. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 137(1–3), 137–148. https://doi.org/10.1016/j.jnnfm.2006.01.014

Ory, E., Yuan, H., Prosperetti, A., Popinet, S., & Zaleski, S. (2000). Growth and collapse of a vapor bubble in a narrow tube. Physics of Fluids, 12(6), 1268–1277. https://doi.org/10.1063/1.870381

Osswald, T., & Rudolph, N. (2014). Polymer rheology: fundamentals and applications. Germany: Hanser.

Owolabi, B. E., Dennis, D. J. C., & Poole, R. J. (2017). Turbulent drag reduction by polymer additives in parallel-shear flows. Journal of Fluid Mechanics, 827, R4. https://doi.org/10.1017/jfm.2017.544

Pacheco-Torgal, F., Ivanov, V., Karak, N., & Jonkers, H. (2015). *Biopolymers and Biotech Admixtures for Eco-Efficient Construction Materials*. Elsevier. https://doi.org/10.1016/C2013-0-16511-7

Pan, L. (2013). Complex Fluids in Microchannel Flows at Low Reynolds Number: Elastic Instabilities and Rheology (Thesis). University of Pennsylvania, Pennsylvania, USA.

Paquin, P. (Ed.). (2009). Functional and specialty beverage technology. Boca Raton, Fla.: CRC Press.

Patel, H., & Patel, S. (2015). Understanding the Role of Dairy Proteins in Ingredient and Product Performance. USA: Dairy Export Council.

Paul, E. L., Atiemo-Obeng, V. A., & Kresta, S. M. (Eds.). (2004). Handbook of industrial mixing: science and practice. Hoboken, N.J: Wiley-Interscience.

Peixinho, J., & Besnard, H. (2013). Transition to turbulence in slowly divergent pipe flow. *Physics of Fluids*, *25*(11), 111702. https://doi.org/10.1063/1.4833436

Pérez-Fuentes, L., Drummond, C., Faraudo, J., & Bastos-González, D. (2017). Adsorption of Milk Proteins (β-Casein and β-Lactoglobulin) and BSA onto Hydrophobic Surfaces. *Materials*, *10*(8), 893. https://doi.org/10.3390/ma10080893

Phillips, G. O., & Williams, P. A. (Eds.). (2009). Handbook of hydrocolloids (2. ed). Boca Raton, Fla.: CRC.

Pimenta, F., & Alves, M. A. (2018). Electro-elastic instabilities in cross-shaped microchannels. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 259, 61–77. https://doi.org/10.1016/j.jnnfm.2018.04.004

Pipe, C. J., & McKinley, G. H. (2009). Microfluidic rheometry. *Mechanics Research Communications*, *36*(1), 110–120. https://doi.org/10.1016/j.mechrescom.2008.08.009

Pipe, C. J., Majmudar, T. S., & McKinley, G. H. (2008). High shear rate viscometry. Rheologica Acta, 47(5–6), 621–642. https://doi.org/10.1007/s00397-008-0268-1

Poole, R. J., Budhiraja, B., Cain, A. R., & Scott, P. A. (2012). Emulsification using elastic turbulence. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 177–178, 15–18. https://doi.org/10.1016/j.jnnfm.2012.03.012

Prins, A., Bos, M. A., Boerboom, F. J. G., & van Kalsbeek, H. K. A. I. (1998). Relation between surface rheology and foaming behaviour of aqueous protein solutions. In Proteins at Liquid Interfaces (Vol. 7, pp. 221–265). Elsevier. https://doi.org/10.1016/S1383-7303(98)80053-7

Puerta-Gomez, A. F. (2014). *Characterization of biopolymers for use as matrices for encapsulation of hydrophobic compounds* (Thesis). Texas A&M University, Texas, USA.

Pugh, R. J. (2016). Bubble and foam chemistry. Cambridge: Cambridge University Press.

Rao, M. A. (2007). Application of rheology to fluid food handling and processing. In M. A. Rao (Ed.), *Rheology of fluid and semisolid foods: principles and applications* (2nd ed). New York: Springer.

Raven, J.-P., & Marmottant, P. (2009). Microfluidic Crystals: Dynamic Interplay between Rearrangement Waves and Flow. *Physical Review Letters*, *102*(8), 084501. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.102.084501

Rayleigh, Lord. (1878). On The Instability Of Jets. *Proceedings of the London Mathematical Society*, *s1-10*(1), 4–13. https://doi.org/10.1112/plms/s1-10.1.4

Rayner, M., & Dejmek, P. (Eds.). (2015). Engineering aspects of food emulsification and homogenization. Boca Raton London New York: CRC Press, Taylor & Francis Group.

Rehm, B. H. A. (2010). Bacterial polymers: biosynthesis, modifications and applications. Nature Reviews Microbiology, 8(8), 578–592. https://doi.org/10.1038/nrmicro2354

Rocha, G. N., Poole, R. J., & Oliveira, P. J. (2007). Bifurcation phenomena in viscoelastic flows through a symmetric 1:4 expansion. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, *141*(1), 1–17. https://doi.org/10.1016/j.jnnfm.2006.08.008

Rodd, L. E., Scott, T. P., Boger, D. V., Cooper-White, J. J., & McKinley, G. H. (2005). The inertio-elastic planar entry flow of low-viscosity elastic fluids in micro-fabricated geometries. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 129(1), 1–22. https://doi.org/10.1016/j.jnnfm.2005.04.006

Roisman, I., & Tropea, C. (2017). Droplet Breakup, Coalescence, and Wall Impact. In E. E. Michaelides, C. T. Crowe, & J. D. Schwarzkopf (Eds.), Multiphase Flow Handbook. CRC Press.

Rosalam, S., & England, R. (2006). Review of xanthan gum production from unmodified starches by Xanthomonas comprestris sp. *Enzyme and Microbial Technology*, *39*(2), 197–207. https://doi.org/10.1016/j.enzmictec.2005.10.019

Rothstein JP (2008) Strong flows of viscoelastic wormlike micelle solutions. In: Binding DM, Walters K (eds) Rheology reviews. The British Society of Rheology

Rouyer, F., Cohen-Addad, S., & Höhler, R. (2005). Is the yield stress of aqueous foam a well-defined quantity? Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 263(1–3), 111–116. https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2005.01.025

Rust, A. C., & Manga, M. (2002). Effects of bubble deformation on the viscosity of dilute suspensions. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 104(1), 53–63. https://doi.org/10.1016/S0377-0257(02)00013-7

Sadek, C., Pauchard, L., Schuck, P., Fallourd, Y., Pradeau, N., Le Floch-Fouéré, C., & Jeantet, R. (2015). Mechanical properties of milk protein skin layers after drying: Understanding the mechanisms of particle formation from whey protein isolate and native phosphocaseinate. *Food Hydrocolloids*, *48*, 8–16. https://doi.org/10.1016/j.foodhyd.2015.01.014

Saint-Jalmes, A., & Durian, D. J. (1999). Vanishing elasticity for wet foams: Equivalence with emulsions and role of polydispersity. Journal of Rheology, 43(6), 1411–1422. https://doi.org/10.1122/1.551052

Saint-Jalmes, A., Peugeot, M.-L., Ferraz, H., & Langevin, D. (2005). Differences between protein and surfactant foams: Microscopic properties, stability and coarsening. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, *263*(1–3), 219–225. https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2005.02.002

Salager, J.-L., & Choplin, L. (2008). Mousses - Formation, formulation et propriétés. *Techniques de L'ingénieur*, *1*, 19.

Schorsch, C. (2007). Formulation des mousses laitières. Techniques de l'ingénieur Élaboration Des Formulations, base documentaire : TIB335DUO.(ref. article : j2268). Retrieved from https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/procedes-chimie-bio-agro-th2/elaboration-des-formulations-42335210/formulation-des-mousses-laitieres-j2268/

Schramm, L. L. (2006). Emulsions, Foams and Suspensions. Weinheim, FRG: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA. https://doi.org/10.1002/3527606750.fmatter

Schramm, L. L. (2014). Emulsions, Foams, Suspensions, and Aerosols (Second edition). Wiley-VCH.

Schubert, H. (1997). Advances in the mechanical production of food emulsions, in Engineering and

Searl, T. W. (2017). Purely elastic shear flow instabilities: linear stability, coherent states and direct numerical simulations (Thesis). University of Edinburgh, Edinburgh.

Seemann, R., Brinkmann, M., Pfohl, T., & Herminghaus, S. (2012). Droplet based microfluidics. *Reports on Progress in Physics*, *75*(1), 016601. https://doi.org/10.1088/0034-4885/75/1/016601

Serizawa, A., Feng, Z., & Kawara, Z. (2002). Two-phase flow in microchannels. Experimental Thermal and Fluid Science, 26, 12.

Sharp, K. V., & Adrian, R. J. (2004). Transition from laminar to turbulent flow in liquid filled microtubes. Experiments in Fluids, 36(5), 741–747. https://doi.org/10.1007/s00348-003-0753-3

Sharp, K. V., Adrian, R. J., Santiago, J. G., & Molho, J. I. (2006). Liquid Flows in Microchannels. In MEMS: introduction and fundamentals (2nd ed), M. Gad-el-Hak (Ed.). Boca Raton, Florida, USA: CRC/Taylor & Francis.

Shaw, M. T. (2012). Introduction to polymer rheology. Hoboken, N.J: Wiley.

Shui, L., Eijkel, J. C. T., & van den Berg, A. (2007). Multiphase flow in microfluidic systems – Control and applications of droplets and interfaces. Advances in Colloid and Interface Science, 133(1), 35–49. https://doi.org/10.1016/j.cis.2007.03.001

Smith, D. E. (1998). Response of Flexible Polymers to a Sudden Elongational Flow. Science, 281(5381), 1335–1340. https://doi.org/10.1126/science.281.5381.1335

Sochol, R. D., Sweet, E., Glick, C. C., Wu, S.-Y., Yang, C., Restaino, M., & Lin, L. (2018). 3D printed microfluidics and microelectronics. *Microelectronic Engineering*, *189*, 52–68. https://doi.org/10.1016/j.mee.2017.12.010

Soleymanzadeh, A., Gahrooei, H. R. E., & Joekar-Niasar, V. (2017). A New Empirical Model for Bulk Foam Rheology. Journal of Energy Resources Technology, 140(3), 032911. https://doi.org/10.1115/1.4038385

Song, K.-W., Kuk, H.-Y., & Chang, G.-S. (2006). Rheology of concentrated xanthan gum solutions: Oscillatory shear flow behavior. Korea-Australia Rheology Journal, 18(2), 67–81.

Soulages, J., Oliveira, M. S. N., Sousa, P. C., Alves, M. A., & McKinley, G. H. (2009). Investigating the stability of viscoelastic stagnation flows in T-shaped microchannels. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 163(1–3), 9–24. https://doi.org/10.1016/j.jnnfm.2009.06.002

Sousa, P. C., Pinho, F. T., & Alves, M. A. (2018). Purely-elastic flow instabilities and elastic turbulence in microfluidic cross-slot devices. Soft Matter, 14(8), 1344–1354. https://doi.org/10.1039/C7SM01106G

Squires, T. M., & Quake, S. R. (2005). Microfluidics: Fluid physics at the nanoliter scale. Reviews of Modern Physics, 77(3), 977–1026. https://doi.org/10.1103/RevModPhys.77.977

Stegeman, Y. W., Van De Vosse, F. N., & Meijer, H. E. H. (2008). On the Applicability of the Grace Curve in Practical Mixing Operations. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, *80*(4), 1–6. https://doi.org/10.1002/cjce.5450800414

Stephen, A. M., Phillips, G. O., & Williams, P. A. (Eds.). (2009). Food polysaccharides and their applications (2nd ed). Boca Raton, FL: CRC/Taylor & Francis.

Stevenson, P. (Ed.). (2012). *Foam Engineering Fundamentals and Applications*. Chichester, UK: John Wiley & Sons, Ltd. https://doi.org/10.1002/9781119954620.fmatter

Stone, H. A. (1994). Dynamics of Drop Deformation and Breakup in Viscous Fluids. *Annual Review of Fluid Mechanics*, *26*(1), 65–102. https://doi.org/10.1146/annurev.fl.26.010194.000433

Stone, H. A., Bentley, B. J., & Leal, L. G. (1986). An experimental study of transient effects in the breakup of viscous drops. *Journal of Fluid Mechanics*, *173*(1), 131. https://doi.org/10.1017/S0022112086001118

Stone, H. A., Stroock, A. D., & Ajdari, A. (2004). Engineering flows in small devices. Annual Review of Fluid Mechanics, 36(1), 381–411. https://doi.org/10.1146/annurev.fluid.36.050802.122124

Sudarja, Jayadi, F., Indarto, Deendarlianto, & Widyaparaga, A. (2018). The effect of liquid viscosity on the gas-liquid two-phase flow pattern in horizontal mini-channel (p. 030010). Presented at the ADVANCED MATERIALS: Proceedings of the International Workshop on Advanced Materials (IWAM-2017), Berhampur, Odisha, India. https://doi.org/10.1063/1.5049982

Suresh, S. J. (2017). Flow-induced breakup of drops and bubbles. ArXiv:1701.06157 [Physics]. Retrieved from http://arxiv.org/abs/1701.06157

Swaisgood, H. E. (2008). Characteristics of Milk. In S. Damodaran, K. L. Parkin, & O. R. Fennema (Eds.), Fennema's food chemistry (4th ed). Boca Raton, Fla.: CRC Press.

Sworn, G. (2009). Xanthan gum. In G. O. Phillips & P. A. Williams (Eds.), *Handbook of hydrocolloids* (2. ed). Boca Raton, Fla.: CRC.

Syrbe, A., Bauer, W. J., & Klostermeyer, H. (1998). Polymer Science Concepts in Dairy Systems—an Overview of Milk Protein and Food Hydrocolloid Interaction. International Dairy Journal, 8(3), 179–193. https://doi.org/10.1016/S0958-6946(98)00041-7

TA Instruments. (2000). AR 500/1000 Rheometers Hardware Manual. New Castle, UK. Retrieved from http://regmed.musc.edu/atbc/files/TAmanual/TA%20AR%201000%20Manual.pdf

TA Instruments. (2017). Discovery Hybrid Rheometers accesories. Retrieved May 13, 2019, from http://www.tainstruments.com/wp-content/uploads/BROCH-DHR-Accessories-2015-EN.pdf

TA Instruments. (n.d.). AR 1000 AR 500 Technical Specifications. Retrieved February 2, 2019, from http://tainstruments.com/pdf/literature/AR_500-1000.pdf

Tabeling, P. (2005). Introduction to microfluidics. Oxford, U.K. ; New York: Oxford University Press.

Tackett, H. H., Cripe, J. A., & Dyson, G. (2008). Positive Displacement Reciprocating Pump Fundamentals - Power And Direct Acting Types. Texas A&M University. Turbomachinery Laboratories. Retrieved from https://oaktrust.library.tamu.edu/handle/1969.1/163923

Taitel, Y., Lee, N., & Dukler, A. E. (1978). Transient gas-liquid flow in horizontal pipes: Modeling the flow pattern transitions. AIChE Journal, 24(5), 920–934. https://doi.org/10.1002/aic.690240518

Takagi, J., Yamada, M., Yasuda, M., & Seki, M. (2005). Continuous particle separation in a microchannel having asymmetrically arranged multiple branches. Lab on a Chip, 5(7), 778. https://doi.org/10.1039/b501885d

Taylor, G. I. (1934). The Formation of Emulsions in Definable Fields of Flow. *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, *146*(858), 501–523. https://doi.org/10.1098/rspa.1934.0169

Tecante, A. (2005). Viscoelasticity. In G. V. Barbosa-Cánovas (Ed.), Food Engineering (pp. 285–303). Paris; EOLSS: UNESCO ; Retrieved from http://catalog.hathitrust.org/api/volumes/oclc/64183236.html

Thoroddsen, S. T., Etoh, T. G., & Takehara, K. (2008). High-Speed Imaging of Drops and Bubbles. *Annual Review of Fluid Mechanics*, *40*(1), 257–285. https://doi.org/10.1146/annurev.fluid.40.111406.102215

Triplett, K. A., Ghiaasiaan, S. M., Abdel-Khalik, S. I., & Sadowski, D. L. (1999). Gas-liquid two-phase fow in microchannels Part I: two-phase fow patterns. *International Journal of Multiphase Flow*, 18.

Tsamopoulos, J., Dimakopoulos, Y., Chatzidai, N., Karapetsas, G., & Pavlidis, M. (2008). Steady bubble rise and deformation in Newtonian and viscoplastic fluids and conditions for bubble entrapment. *Journal of Fluid Mechanics*, *601*, 123–164. https://doi.org/10.1017/S0022112008000517

Utada, A. S., Fernandez-Nieves, A., Gordillo, J. M., & Weitz, D. A. (2008). Absolute Instability of a Liquid Jet in a Coflowing Stream. *Physical Review Letters*, *100*(1), 014502. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.100.014502

Utada, A. S., Fernandez-Nieves, A., Stone, H. A., & Weitz, D. A. (2007). Dripping to Jetting Transitions in Coflowing Liquid Streams. *Physical Review Letters*, *99*(9), 094502. https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.99.094502

Nino, V.G., Hrnjak, P.S., Newell, T.A. Analysis of void fraction in microchannels,in: International Refrigeration and Air Conditioning Conference, 2002. Paper 574

Van Hoeve, W. (2011). Fluid dynamics at a pinch : droplet and bubble formation in microfluidic devices (Thesis). University of Twente.

Vazquez, A., Sanchez, R. M., Salinas-Rodríguez, E., Soria, A., & Manasseh, R. (2005). A look at three measurement techniques for bubble size determination. Experimental Thermal and Fluid Science, 30(1), 49–57. https://doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2005.03.018

Versluis, M. (2013). High-speed imaging in fluids. *Experiments in Fluids*, *54*(2). https://doi.org/10.1007/s00348-013-1458-x

Vial, C., & Djelveh, G. (2013). Foisonnement des émulsions alimentaires. In J. Legrand (Ed.), *Emulsions alimentaires et foisonnement*. Paris, France: Lavoisier.

Walstra, P. (1989). Principles of Foam Formation and Stability. In A. Wilson (Ed.), Foams: Physics, Chemistry and Structure (pp. 1–15). London: Springer London. https://doi.org/10.1007/978-1-4471-3807-5_1

Walstra, P. (2003). *Physical chemistry of foods*. New York, NY: Marcel Dekker.

Wang, J., Nguyen, A. V., & Farrokhpay, S. (2016). Effects of surface rheology and surface potential on foam stability. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 488, 70–81. https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2015.10.016

Wang, K., Xie, L., Lu, Y., & Luo, G. (2013). Generating microbubbles in a co-flowing microfluidic device. Chemical Engineering Science, 100, 486–495. https://doi.org/10.1016/j.ces.2013.02.021

Weaire, D. L., & Hutzler, S. (1999). The physics of foams. Oxford: Clarendon Press.

Weaire, D. L., & Hutzler, S. (2001). The physics of foams. Oxford: Clarendon Press.

Weaire, D., & Drenckhan, W. (2008). Structure and dynamics of confined foams: A review of recent progress. *Advances in Colloid and Interface Science*, *137*(1), 20–26. https://doi.org/10.1016/j.cis.2007.04.001

Whitesides, G. M. (2006). The origins and the future of microfluidics. Nature, 442(7101), 368–373. https://doi.org/10.1038/nature05058

Wierenga, P. A., & Gruppen, H. (2010). New views on foams from protein solutions. Current Opinion in Colloid & Interface Science, 15(5), 365–373.

Wierenga, P. A., van Norél, L., & Basheva, E. S. (2009). Reconsidering the importance of interfacial properties in foam stability. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 344(1–3), 72–78. https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2009.02.012

Wilde, P. J. (2000). Interfaces: their role in foam and emulsion behaviour. Current Opinion in Colloid & Interface Science, 5(3–4), 176–181. https://doi.org/10.1016/S1359-0294(00)00056-X

Wildeman, S., Visser, C. W., Sun, C., & Lohse, D. (2016). On the spreading of impacting drops. *Journal of Fluid Mechanics*, *805*, 636–655. https://doi.org/10.1017/jfm.2016.584

Wilhelmy plate method. (2019, March 5). Retrieved May 1, 2019, from https://www.kruss-scientific.com/services/education-theory/glossary/wilhelmy-plate-method/

Williams, P. A., & Phillips, G. O. (2009). Introduction to food hydrocolloids. In Handbook of Hydrocolloids (pp. 1–22). Elsevier. https://doi.org/10.1533/9781845695873.1

Wu, Z., & Sundén, B. (2019). Liquid-liquid two-phase flow patterns in ultra-shallow straight and serpentine microchannels. *Heat and Mass Transfer*, *55*(4), 1095–1108. https://doi.org/10.1007/s00231-018-2494-0

Wyatt, N. B., Gunther, C. M., & Liberatore, M. W. (2011). Increasing viscosity in entangled polyelectrolyte solutions by the addition of salt. *Polymer*, *52*(11), 2437–2444. https://doi.org/10.1016/j.polymer.2011.03.053

Xiong, R., & Chung, J. N. (2007). An experimental study of the size effect on adiabatic gas-liquid two-phase flow patterns and void fraction in microchannels. Physics of Fluids, 19(3), 033301. https://doi.org/10.1063/1.2567903

Xiong, R., & Chung, J. N. (2009). Bubble generation and transport in a microfluidic device with high aspect ratio. *Experimental Thermal and Fluid Science*, *33*(8), 1156–1162. https://doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2009.07.005

Yap, Y. F., Zhang, Y., Wong, T. N., Nguyen, N.-T., & Chai, J. C. (2014). Flow Bifurcation in Microchannel. In D. Li (Ed.), *Encyclopedia of Microfluidics and Nanofluidics* (pp. 1–13). Boston, MA: Springer US. https://doi.org/10.1007/978-3-642-27758-0_539-2

Yap, Y. F., Zhang, Y., Wong, T. N., Nguyen, N.-T., & Chai, J. C. (2008). Flow Bifurcation in Microchannel. In D. Li (Ed.), *Encyclopedia of microfluidics and nanofluidics: with 152 tables*. New York, NY: Springer.

Yue, J., Luo, L., Gonthier, Y., Chen, G., & Yuan, Q. (2009). An experimental study of air–water Taylor flow and mass transfer inside square microchannels. Chemical Engineering Science, 64(16), 3697–3708. https://doi.org/10.1016/j.ces.2009.05.026

Zayas, J. F. (1997). Functionality of proteins in food (Softcover reprint of the hardcover 1st edition 1997). Berlin Heidelberg: Springer Berlin.

Zeytounian, R. K. (2011). Theory and applications of viscous fluid flows. Berlin: Springer.

Zhang, J. M., Li, E. Q., & Thoroddsen, S. T. (2014). A co-flow-focusing monodisperse microbubble generator. Journal of Micromechanics and Microengineering, 24(3), 035008. https://doi.org/10.1088/0960-1317/24/3/035008

Zhang, J., Wang, K., Teixeira, A. R., Jensen, K. F., & Luo, G. (2017). Design and Scaling Up of Microchemical Systems: A Review. Annual Review of Chemical and Biomolecular Engineering, 8(1), 285–305. https://doi.org/10.1146/annurev-chembioeng-060816-101443

Zheng, R., Tanner, R. I., & Fan, X.-J. (2011). Injection molding: integration of theory and modeling methods. Heidelberg: Springer.

Zhou, H., Yao, Y., Chen, Q., Li, G., & Yao, S. (2013). A facile microfluidic strategy for measuring interfacial tension. Applied Physics Letters, 103(23), 234102.

Zhu, P., & Wang, L. (2017). Passive and active droplet generation with microfluidics: A review. Lab on a Chip, 17(1), 34–75. https://doi.org/10.1039/C6LC01018K

Relevé de la production scientifique

Publications de rang A (journaux scientifiques internationaux avec comité de lecture)

J. Sepulveda, D. DellaValle, C. Loisel, A. Riaublanc, A. Montillet. *Deformation of gas-liquid interfaces in a non-Newtonian fluid at high throughputs inside a microfluidic device and effect of an expansion on bubble breakup mechanisms*. Journal of Chemical Science Engineering, 213, 2020.

Autres communications écrites

J. Sepulveda, D. DellaValle, C. Loisel, A. Riaublanc, A. Montillet. *Typologie de l'écoulement de systèmes diphasiques gaz-liquide à l'intérieur de microcanaux à fort débit d'injection.* 24e Congrès Français de Mécanique 2019. Aug 27-31, 2019. Brest, France.

Communications par affiche à des congrès nationaux ou internationaux

D. DellaValle*, J. Sepulveda, C. Loisel, A. Riaublanc, A. Montillet. *Identification of bubble breakup mechanisms by high speed imaging in a microfluidics foaming process*. International congress on engineering and food ICEF13. September 23-26, 2019. Melbourne, Australia.

J. Sepulveda*, D. DellaValle, C. Loisel, A. Riaublanc, A. Montillet. *Production of biosourced foams by microchannels at high throughputs*. MicroNanofluidics 2018. Mar 15-16, 2018. Grenoble, France.

Communications orales à des congrès nationaux ou internationaux.

J. Sepulveda*, D. DellaValle, C. Loisel, A. Riaublanc, A. Montillet. *Effet de la géométrie des microcanaux sur l'écoulement d'un système diphasique gaz-liquide lors d'un procédé microfluidique de foisonnement à haute vitesse.* XVIIème Congrès de la Société Française de Génie des Procédés (SFGP). October 15-17, 2019. Nantes, France.

J. Sepulveda*, D. DellaValle, C. Loisel, A. Riaublanc, A. Montillet. *Typologie de l'écoulement de systèmes diphasiques gaz-liquide à l'intérieur de microcanaux à fort débit d'injection.* 24e Congrès Français de Mécanique 2019. August 27-31, 2019. Brest, France.

J. Sepulveda*, D. DellaValle, C. Loisel, A. Riaublanc, A. Montillet. *Rheological properties of biosourced foams produced by microchannels at high throughput*. Annual European Rheology Conference 2018 (AERC 2018). April 17-20, 2018. Sorrento, Italy.

J. Sepulveda*, D. DellaValle, C. Loisel, A. Riaublanc, A. Montillet. *Production of biosourced foams by microchannels at high throughputs*. 5th European Conference on Microfluidics – µFlu18. Feb 28 - Mar 2, 2018. Strasbourg, France.

J. Sepulveda*, D. DellaValle, C. Loisel, A. Riaublanc, A. Montillet. *Production of biosourced foams by microchannels at high throughputs*. Biopolymers 2017 - Key Ingredients for the Food Transition. Nov 29 - Dec 1, 2019. Nantes, France.

Autres présentations orales.

- Comité de suivi de thèse CST 1ère année (09/10/2017)
- Séminaire GEPEA (11/10/2017)
- Séminaire MAPS (08/02/2018)
- Journée doctorants 2ème année école doctorale SPI (05/04/2018)
- Comité de suivi individuel CSI 2ème année (08/06/2018)
- Comité de suivi individuel CSI 3ème année (12/06/2019)

* *Intervenant*

UNIVERSITE BRETAGNE LOIRE SCIENCES POUR L'INGENIEUR

UNIVERSITÉ DE NANTES

Titre : **Contribution au design d'un équipement innovant pour l'obtention de mousses à base de matrices alimentaires : caractérisation des phénomènes de rupture de bulles dans des microsystèmes à haut débit**

Mots clés : Microfluidique, mousses, écoulements diphasiques, fluides non-newtoniens, hauts débits

Résumé : Une étude précédente, axée sur les propriétés du produit final, a démontré la capacité des dispositifs microfluidiques à produire des mousses alimentaires. Ce travail vise maintenant à élucider principalement la typologie des écoulements diphasiques et les phénomènes de déformation des interfaces gaz-liquide au sein de dispositifs microfluidiques afin de mieux pouvoir les dimensionner. Des conditions pertinentes pour les applications agroalimentaires industrielles sont explorées, à savoir des débits élevés et l'écoulement de fluides non newtoniens.

Les dispositifs utilisés dans cette recherche contenaient une configuration de base avec canaux carrés en croix. Certains appareils ont également intégré une singularité géométrique à cette configuration de base (élargissement, coudes et sinusoïde). Les solutions moussantes modèles ont été préparées à partir de molécules biosourcées. En particulier, les isolats de protéines de lactosérum (WPI) en tant qu'agent moussant et la gomme de xanthane (XG) à différentes concentrations pour moduler la viscosité de la solution.

Dans la configuration de base en forme de croix, il a été constaté que les bulles subissaient une érosion systématique par un mécanisme de rupture de type « tip streaming". Dans l'élargissement, les déformations élongationnelles génèrent un mécanisme binaire de rupture de bulle. De même, un effet stabilisant remarquable de la gomme xanthane sur la forme des bulles à l'intérieur des microcanaux a été identifié dans ce travail.

Cette étude a permis de mettre en évidence le rôle joué par la configuration géométrique des dispositifs et la formulation sur la typologie des écoulements et des mécanismes de rupture des bulles. De plus, elle a permis de montrer comment la modulation de ces deux paramètres pouvait conduire à des mousses ayant des propriétés structurelles et d'usage complètement différentes. Enfin, ces travaux ont mis en place une base expérimentale solide sur laquelle pourront s'appuyer les recherches futures pour la conception de dispositifs microfluidiques destinés à des applications de mousses alimentaires.

Title : **Contribution to the design of an innovative equipment for obtaining foams based on food matrices: characterization of bubble breakup phenomena in microsystems at high throughput**

Keywords : Microfluidics, foams, two-phase flow, bubble breakup, non-Newtonian fluids, High throughputs

Abstract: A previous study, focused on the end product properties, demonstrated the capability of microfluidic devices for production of food foams. This work now sets out to elucidate mainly the two-phase flow typology and deformation phenomena of gas-liquid interfaces inside microfluidic devices in order to improve their design. Conditions relevant for industrial food applications are explored, namely high throughputs and non-Newtonian fluids.

The devices employed in this research contained cross-like square channels as a base configuration. Some devices also integrated a geometric singularity to this base configuration (expansion, elbows and serpentine). The model foaming solutions were prepared from biosourced molecules. In particular, whey protein isolates (WPI) as the foaming agent and xanthan gum (XG) at different concentrations to tune the solution viscosities.

In the base cross-like configuration, bubbles were found to undergo systematic erosion through a tip streaming breakup mechanism. In the expansion singularity, elongational flows generate a binary bubble breakup mechanism. Moreover, a remarkable stabilizing effect of xanthan gum on the bubble shapes inside the microchannels was identified in this work.

This study made it possible to highlight the role played by geometric configuration of the devices and by the formulation on the flow typology and bubble breakup mechanisms. Additionally, it has shown how modulating those two parameters might lead to foams with completely different structural and end-use properties. Finally, this work has established an experimental background that future research can build on for the design and conception of microfluidic devices for food foams applications.