



THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par l'Institut National Polytechnique de Toulouse
Discipline ou spécialité : Génie des procédés et de l'environnement

Présentée et soutenue par **Matthieu Roudet**
Le 05 décembre 2008

Hydrodynamique et transfert de masse autour d'une bulle confinée entre deux plaques

JURY

C. Boyer	rapporteur
L. Limat	rapporteur
A. Cessou	membre
A.-M. Billet	membre
C. Daniel	membre invité
F. Larachi	membre
F. Risso	membre
V. Roig	membre

Ecole doctorale : MEGEP
Unité de recherche : Laboratoire de Génie Chimique (LGC)
Directrices de Thèse : A.-M. Billet et V. Roig (co-directrice)



Résumé

Ce travail de recherche est consacré à l'étude expérimentale de la dynamique d'une bulle isolée "bidimensionnelle", ainsi qu'à celle du transfert de masse de cette bulle vers la phase liquide pour le couple de fluides eau-oxygène. L'aspect bidimensionnel des bulles vient du fait qu'elles sont confinées entre 2 plaques. La gamme de nombres adimensionnels que nous avons balayée dans notre étude a été peu étudiée pour ce genre de dispositif. Dans cette étude, les effets inertiels liés à la perturbation de vitesse provoquée par le passage de la bulle ne sont pas négligeables devant le frottement aux parois. L'étude de l'hydrodynamique de la bulle est réalisée grâce à l'utilisation de techniques de mesure optique : ombroscopie et vélocimétrie par image laser (PIV). En raison de la géométrie 2D de la cellule, un éclairage en volume du champ d'investigation est réalisé pour les mesures PIV. Il est montré que la PIV mesure la vitesse moyenne du liquide dans l'épaisseur entre les plaques, lors du passage d'une bulle. Les mesures par ombroscopie permettent d'étudier la trajectoire et la forme de la bulle au cours du temps pour une large gamme de nombres de Reynolds (50-6000). On montre que la vitesse moyenne des bulles vérifie la loi d'échelle $U = 0.5\sqrt{ga}$ compatible avec une interface non contaminée. D'autre part, l'étude de l'instabilité du mouvement et de la forme permet d'identifier différents régimes d'écoulement et notamment de montrer que la forme moyenne des bulles et la structure du sillage sont essentiels pour comprendre l'évolution des oscillations. De plus, les champs de vitesse issus de la PIV donnent l'évolution du sillage à l'arrière de la bulle en fonction du nombre d'Archimède et mettent en évidence deux structures clairement différentes, suivant que les bulles sont des calottes avec une trajectoire rectiligne, ou des ellipsoïdes qui oscillent. Ils montrent également que, quelque soit le nombre de Reynolds, le sillage décroît rapidement à cause du confinement. L'étude du transfert de l'oxygène, contenu dans la bulle, vers le liquide, est réalisée au moyen de la technique de fluorescence induite par nappe laser (PLIF), avec inhibition de la fluorescence par l'oxygène dissous, et avec un éclairage en volume de la cellule. L'analyse des images de fluorescence permet de distinguer le transfert de matière issu de deux régions de l'interface de la bulle : la surface en contact avec les films liquides entre la bulle et les plaques, et la surface périphérique de la bulle. Le transfert de masse par les films se faisant dans un espace mince et proche des parois, l'oxygène n'est pas réparti de manière uniforme dans l'épaisseur aux temps courts après le passage de la bulle. La non linéarité du signal de fluorescence avec la concentration en oxygène implique de prendre en compte la répartition de l'oxygène entre les plaques. Un modèle de répartition de l'oxygène entre les plaques est proposé, et confronté à des mesures de concentration entre les plaques après diffusion ; cette démarche permet de déterminer la contribution relative des deux surfaces au transfert. Les flux de matière ainsi que les densités de flux issus de chacune des deux régions de la surface de la bulle sont calculés et discutés.

Table des matières

1	Motivation de l'étude : potentialités technologiques des écoulements à bulles confinées	11
1.1	Quelques grandes lignes sur les réacteurs à bulles	11
1.1.1	Définition et présentation des réacteurs à bulles	11
1.1.2	Les phénomènes physiques mis en jeu dans les réacteurs à bulles	13
1.1.3	Applications des réacteurs à bulles	17
1.1.4	Conclusion	18
1.2	Comparaison des fonctionnements des colonnes à bulles et des milli-réacteurs	19
1.2.1	Contraintes et facilités opératoires	19
1.2.2	Performances chimiques.	20
1.2.3	Transfert de masse.	21
1.2.4	Conclusion	24
1.3	Conclusion du chapitre	25
2	Dispositif expérimental et position du problème	27
2.1	Présentation et qualification du dispositif expérimental	27
2.1.1	Contraintes pour une étude en géométrie semi-confinée	27
2.1.2	Description de la cellule 2D	27
2.1.3	Mesure de l'écart entre les plaques	28
2.2	Position du problème	30
2.2.1	Paramètres de l'étude.	30
2.2.2	Régime d'écoulement.	32
2.2.3	Écoulement dans les films.	34
2.2.4	Transfert de masse entre la bulle et le liquide.	37
2.2.5	Synthèse.	42
3	Méthodes de mesure	43
3.1	Ombroscopie	43
3.1.1	Dispositif expérimental.	43
3.1.2	Analyse d'image.	43
3.2	Vélocimétrie par Image de Particules	45
3.2.1	Description du système PIV.	45
3.2.2	Étalonnage des mesures PIV	46

3.2.3	Mesure PIV pour des écoulements instationnaires	49
3.3	Fluorescence Induite par Laser dans un Plan	52
3.3.1	Qu'est ce que la fluorescence ?	52
3.3.2	Description du système PLIF utilisé pour cette étude.	54
3.3.3	Analyse des conditions d'éclairement et du signal de fluorescence	56
3.3.4	Détermination du champ de concentration en oxygène dissous	59
4	Hydrodynamique de la bulle entre les plaques	69
4.1	Présentation des essais expérimentaux	69
4.2	Description des lois horaires	71
4.3	Analyse physique et régimes d'écoulements	75
4.3.1	Grandeurs moyennes	75
4.3.2	Oscillations de trajectoire et de forme	80
4.4	Perturbation de vitesse dans le liquide	87
4.4.1	Evolution de la structure du sillage avec le nombre d'Archimède	87
4.4.2	Atténuation de la perturbation de vitesse	91
4.5	Synthèse	97
5	Transfert de matière	99
5.1	Première analyse de la répartition spatiale de l'oxygène dissous après le passage d'une bulle	99
5.1.1	Images utilisées	99
5.1.2	Examen des images moyennées et identification des mécanismes de transfert.	101
5.1.3	Observations sur les images brutes et analyse de la couche d'oxygène au nez des grosses bulles.	103
5.2	Méthodologie pour la reconstruction du champ de concentration d'oxygène dans le sillage d'une bulle.	106
5.2.1	Modélisation de la répartition de l'oxygène dans l'épaisseur.	106
5.2.2	Détermination de l'épaisseur de la couche de masse issue des films grâce aux images aux temps longs.	111
5.3	Analyse quantitative du transfert de masse pour la bulle à $Ar=1200$	113
5.3.1	Concentrations locales et moyennes en oxygène dissous dans les 3 zones de l'image ($Ar=1200$).	113
5.3.2	Masse d'oxygène transférée, flux, densité de flux, et nombre de Sherwood.	113
5.4	Discussion des évolutions du transfert de masse avec Ar	116
5.5	Synthèse	116
5.6	Calcul du volume	126
5.7	Calcul des surfaces	127

Nomenclature

A	surface, m^2
Ar	nombre d'Archimède ($Ar = \frac{\rho(g\cos\alpha d)^{1/2}d}{\mu}$), sans dimension
Bo	nombre de Bond ($Bo = \frac{\rho g \cos\alpha d^2}{\sigma}$), sans dimension
C	concentration, $mg.L^{-1}$
Ca	nombre capillaire
C_D	coefficient de traînée
d	diamètre de la bulle, m
d_Ω	taille caractéristique d'un tourbillon, m
D	coefficient de diffusion ou de diffusivité, $m^2.s^{-1}$
e	épaisseur de la cellule bidimensionnelle, m
Gz	nombre de Graetz
g	accélération de la gravité, $m.s^{-2}$
h	épaisseur du film entre une bulle et les parois, m
k, k_g, k_{ng}, k_L	coefficients d'échange, $m.s^{-1}$
k_q	constante biomoléculaire d'inhibition, $kg.L^{-1}s^{-1}$
k_r, k_{nr}	constantes de dépeuplement, s^{-1}
K_{SV}	constante de Stern-Volmer $L.mg^{-1}$
l_F	épaisseur de couche massique de diffusion, m
L	longueur du canal, m
L_{bulle}	longueur des bulles, m
l_m	longueur du ménisque dynamique, m
L_{slug}	longueur des slugs, m
M	masse, mg
NG	niveau de gris
p	périmètre de la bulle confinée entre plaques, m
P	pression dans le liquide, Pa
Pe	nombre de Péclet ($Pe = \frac{Ud}{D}$), sans dimension
r	coordonnée radiale, m
r_c	rayon de courbure, m
r_n	rayon de courbure au nez de la bulle, m
R	coordonnée radiale du contour de la bulle, m
S	surface de la bulle, m^2
Sc	nombre de Schmidt ($Sc = \frac{\nu}{D}$), sans dimension
Sh	nombre de Sherwood ($Sh = \frac{\varphi d}{DC_s}$), sans dimension
St	nombre de Strouhal ($St = \frac{\omega d}{U}$), sans dimension
T	période des oscillations de trajectoire, s
U	vitesse moyenne d'acension d'une bulle, $m.s^{-1}$
\vec{V}	vitesse du liquide, $m.s^{-1}$
V	volume de la bulle, m^3
V_L	volume de la phase liquide, m^3
V_Ω	vitesse de déplacement des tourbillons, $m.s^{-1}$
We	nombre de Weber ($We = \frac{\rho U^2 d}{\sigma}$), sans dimension

α	inclinaison des plaques, degrés
β_n	inclinaison de la bulle, degrés
β_v	inclinaison du vecteur vitesse, degrés
δ	épaisseur de couche limite massique, m
ϕ	flux de matière, $mg.s^{-1}$
$\phi_{\beta_{nv}}$	déphasage, radians
φ	densité de flux de matière, $mg.s^{-1}.m^{-2}$
λ	rapport de forme de la bulle
λ_m	rapport de forme moyen de la bulle
$\lambda_{em}, \lambda_{ex}$	longueurs d'onde d'émission et d'excitation, m
μ	viscosité dynamique de l'eau, $kg.m^{-1}.s^{-1}$
ν	viscosité cinématique de l'eau, $m^2.s^{-1}$
ρ	masse volumique de l'eau, $kg.m^{-3}$
σ	tension superficielle eau air, $kg.s^{-2}$
τ_t	temps de vie de la fluorescence, s
τ_t	temps de vie d'un tourbillon, s
ω	pulsation, $rad.s^{-1}$
Ω	vorticité, s^{-1}

Introduction

Lorsque le regard s'attache à suivre attentivement le mouvement libre d'une bulle dans un liquide, on perçoit toute la complexité des phénomènes hydrodynamiques mis en jeu, sans même parfois soupçonner l'éventuel échange de masse entre la bulle et le liquide. Or la compréhension des phénomènes physiques présents dans cette situation présente des enjeux importants. Les écoulements gaz-liquide à bulles sont fréquemment utilisés dans l'industrie du Génie des Procédés, où des opérations de transformation de la matière sont réalisées soit dans des réacteurs de grand volume (colonnes à bulles) soit dans des réacteurs de taille millimétrique (monolithes).

Lorsqu'on injecte un volume de gaz sous forme de bulle isolée au sein d'un volume de liquide d'extension infinie qui est au repos, on observe, lorsque le nombre de Reynolds de cette bulle est suffisamment grand, que la bulle monte librement dans le champ de la gravité selon une trajectoire 3D instable couplée avec la perturbation hydrodynamique instationnaire dans son sillage. Si, en outre, le nombre de Bond ou de Weber sont importants, la forme moyenne de la bulle s'écarte de la forme sphérique et présente des oscillations excitées par le sillage. Enfin, si la bulle est constituée d'un gaz peu soluble dans le liquide, en présence d'un déséquilibre thermodynamique entre phases, le flux de masse à l'interface est contrôlé par la couche limite massique en phase liquide. Dans des régimes d'oscillations de trajectoires et de forme le transfert de masse est donc instationnaire par couplage à l'hydrodynamique de la bulle. Dans les écoulements à bulles pilotés par la gravité, comme on en trouve dans l'industrie, on conçoit donc que la complexité de l'écoulement est liée tant à la présence de nombreuses bulles qui sont en interactions qu'aux nombreux degrés de liberté du mouvement de chacune d'entre elles.

Concernant la seule bulle isolée, l'analyse détaillée des mécanismes dominant le transfert de masse à l'échelle locale et des divers régimes de transfert se heurte d'un point de vue expérimental à des difficultés techniques ardues et les approches numériques à mettre en oeuvre sont également limitées pour simuler, à grand nombre de Schmidt, des couches limites massiques de taille extrêmement réduite autour d'interfaces instationnaires.

Pour progresser dans la compréhension des couplages entre l'hydrodynamique et le transfert de masse autour de bulles isolées libres de se mouvoir sous l'action de la gravité, il est nécessaire de définir des situations de complexité réduite qui puissent, autant que faire se peut, isoler des mécanismes particuliers à l'oeuvre dans le problème général ou faciliter l'analyse en permettant un accès à l'information pertinente.

L'étude de l'hydrodynamique et des transferts de masse autour de bulles isolées, confinées entre deux plaques rapprochées, et à grand nombre de Reynolds s'inscrit dans cette démarche.

En effet, lorsqu'on injecte une bulle dans une cellule étroite de fluide au repos, et que le diamètre de cette bulle est supérieur à la largeur de l'interstice entre les plaques, on conserve par rapport à la problématique 3D la liberté de mouvement et de déformation de la bulle, qui sont simplement contraints à se développer dans le plan entre les plaques. Le nombre de degrés de liberté du mouvement est donc réduit sans que le couplage entre la dynamique de la

trajectoire et de la déformation disparaissent. Bien sûr la nature du problème a changé en partie. Dans cette situation 2D le confinement impose un rôle particulier des films de liquide qui se développent entre la bulle et les parois, un frottement spécifique aux parois et une modification de la dynamique tourbillonnaire par rapport à la dynamique 3D. La présence de films où les nombres de Reynolds sont faibles, et d'un écoulement autour de la bulle à grand nombre de Reynolds impose aussi un contraste important entre deux régions de l'écoulement. Il n'en reste pas moins que l'écoulement qui contourne la bulle peut générer des oscillations de trajectoire et de forme parce qu'il conserve un rôle important à l'inertie comme dans la situation 3D. A ce titre l'étude de la bulle 2D s'inscrit dans le cadre général des recherches menées sur les bulles en mouvement à grand nombre de Reynolds.

On doit cependant s'attendre à ce que les écoulements dans les films et l'écoulement contournant la bulle dans l'interstice donnent lieu à des transferts de quantité de mouvement et de masse très contrastés. C'est donc également l'éventuelle spécificité d'une efficacité particulière des transferts de masse dus aux films que nous avons souhaité étudier. Ces films sont réputés assurer un transfert important dans les réacteurs tubulaires de taille millimétrique en écoulement à bulles, et il est intéressant d'examiner si cette efficacité des transferts se conserve lorsqu'on impose un confinement dans une seule direction et qu'on change donc l'aire interfaciale volumique.

Beaucoup d'applications industrielles traitant du transfert de masse à grands nombres de Schmidt, nous avons choisi de travailler avec des bulles d'oxygène dans de l'eau. Le choix d'une approche expérimentale se justifie par l'existence de moyens de mesure efficaces dans une configuration d'écoulement où la mise en oeuvre de méthodes de résolution numérique reste délicate. Si, en règle générale, les méthodes de mesure optique en écoulements diphasiques dispersés, sont souvent limitées par l'opacité du milieu ou la mobilité des objets d'étude, il est par contre possible de mettre en oeuvre de telles méthodes pour l'étude de bulles en ascension dans une cellule bidimensionnelle. L'accès optique est en effet facilité puisque les bulles restent toujours dans un plan d'observation connu et fixe. L'investigation du mouvement des interfaces peut être réalisée aisément par suivi de trajectoire et détection des contours à partir d'images en ombroscopie. La mesure du champ des vitesses dans le liquide est également accessible par PIV. Enfin, en utilisant la propriété qu'a l'oxygène d'inhiber la fluorescence d'un fluorophore particulier, la PLIF permet de mesurer le champ de concentration en oxygène dissous en phase liquide. Bien évidemment des difficultés opératoires doivent être surmontées, et notamment celle de réaliser des mesures dans un volume confiné où peuvent exister de forts gradients des grandeurs à mesurer, en raison de la présence des films et du frottement aux parois.

Le manuscrit est organisé en 5 chapitres. Le chapitre 1 peut être lu de manière indépendante. Il contient une analyse bibliographique des avantages et inconvénients respectifs des technologies de réacteurs à bulles 3D et confinés. Cette analyse nous donnera des pistes sur les phénomènes importants du point de vue des transferts dans les réacteurs confinés. Cette analyse nous permet d'affiner notre regard critique sur les potentialités applicatives de notre travail scientifique. Elle nous ouvre à un dialogue avec les problématiques industrielles. Le chapitre 2 entre dans le vif du sujet et présente le problème physique étudié ainsi que le dispositif expérimental utilisé. Ce travail a donné lieu à des développements méthodologiques pour la mesure PIV et la mesure PLIF. Les méthodes de mesures et leur validation sont donc présentées en détails au chapitre 3. Avec le chapitre 4, nous aborderons la présentation des résultats en commençant par ceux qui concernent le comportement hydrodynamique des bulles 2D. Enfin au chapitre 5 nous discuterons les premiers résultats sur le transfert de masse autour de ces bulles 2D.

Chapitre 1

Motivation de l'étude : potentialités technologiques des écoulements à bulles confinées

Dans cette partie nous ferons une présentation synthétique des deux grandes catégories de réacteurs à bulles les plus utilisés aujourd'hui dans le domaine des réactions chimiques gaz-liquide : les colonnes à bulles et les réacteurs de taille millimétrique que nous nommerons milli-réacteurs. Nous parlerons des principaux phénomènes prenant place dans ces appareils, et de leurs applications industrielles. Puis, nous comparerons les avantages et inconvénients, en termes de coût opératoire et d'efficacité, pour chaque type de réacteur à bulles, tout en rendant compte de leurs spécificités. Cette analyse bibliographique nous permettra d'envisager les potentialités technologiques de réacteurs à bulles confinées dans un plan comme dans notre étude et qui n'ont jamais été mis en oeuvre à notre connaissance mais constituent selon nous une alternative ou un complément possible aux technologies existantes.

1.1 Quelques grandes lignes sur les réacteurs à bulles

1.1.1 Définition et présentation des réacteurs à bulles

On appelle réacteur à bulles au sens large, tout dispositif (cuve, tuyau, bloc poreux dit 'monolithe', colonne,...) qui contient une phase liquide majoritaire et des bulles de gaz. En fait, le mot 'réacteur', utilisé en toute rigueur, devrait impliquer que l'appareil abrite également une réaction chimique. Si ce n'est pas le cas, on devrait plutôt parler de 'contacteur' à bulles.

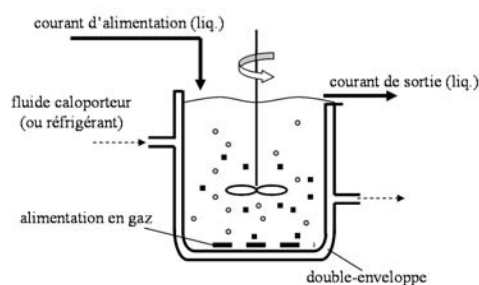


FIG. 1.1: Principe de la cuve agitée à bulles (ici avec des particules solides en suspension)

Les réacteurs à bulles peuvent être de grande taille (cuves, agitées ou non, et colonnes, figures 1.1 et 1.2) ou de petite taille (tubes, et monolithes, figure 1.3). Le cas des lits fixes de solide, représenté en figure 1.2 (d), est particulier : le gaz et le liquide se glissent dans les interstices offerts par l'empilement de structures solides ; le gaz se répartit en poches ou en filets plutôt qu'en bulles. Dans ce type d'appareil le mouvement des bulles n'est pas totalement libre. Les cuves et les colonnes peuvent atteindre plusieurs mètres de diamètre ; pour les colonnes, le rapport de forme obéit en général à la règle suivante : $3 < \text{Hauteur/Diamètre} < 10$. Les cuves agitées sont considérées ici comme des cas particuliers : en terme de Hauteur/Diamètre, et parce que l'hydrodynamique est pilotée par le mobile d'agitation.

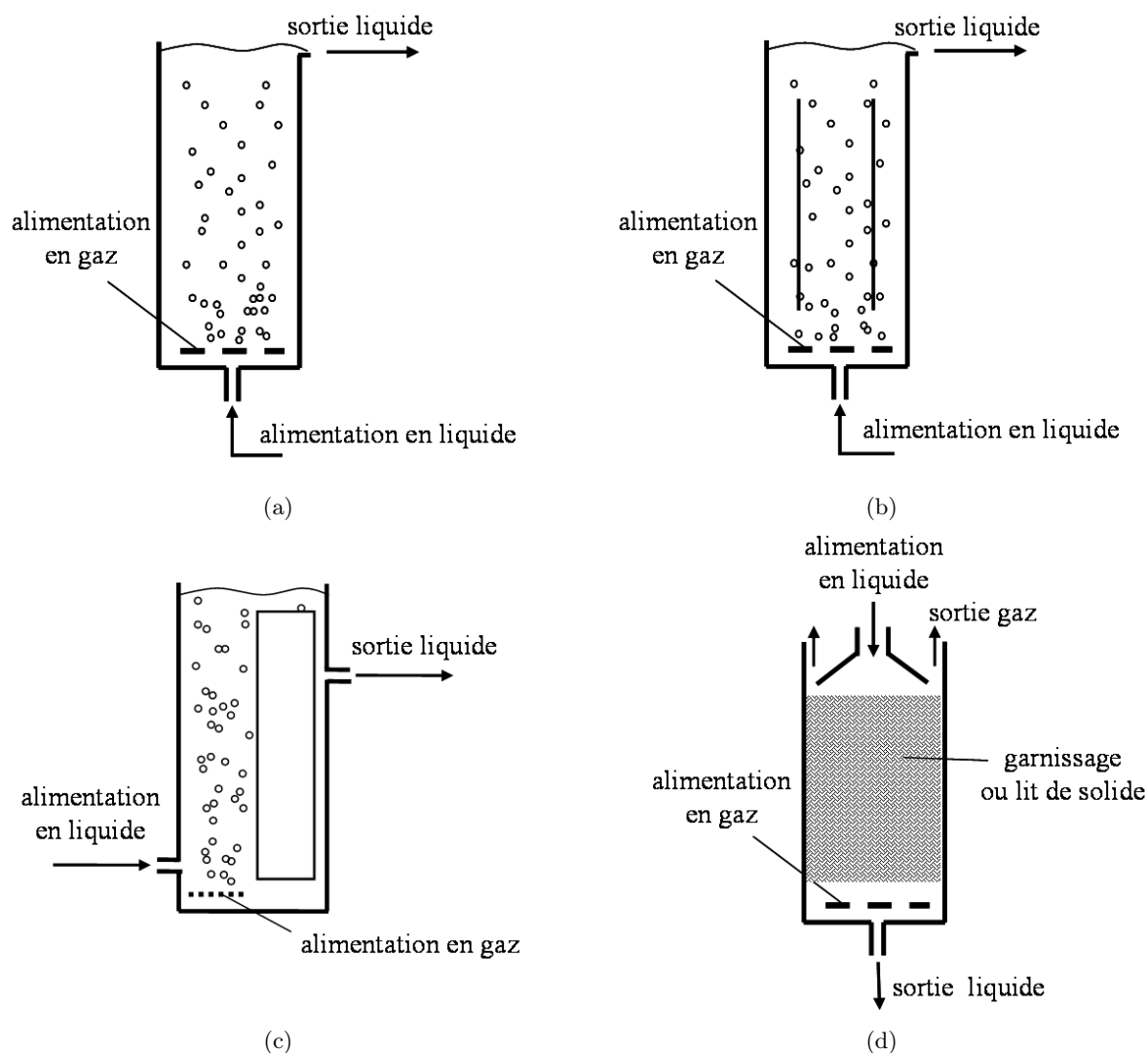


FIG. 1.2: Réacteurs à bulles de type colonne. a) colonne à bulles ; b) gazosiphon à boucle interne ; c) gazosiphon à boucle externe ; d) colonne à garnissage (ou lit fixe à contre courant).

Les réacteurs à bulles de petite taille que l'on rencontre dans l'industrie sont en général constitués d'éléments solides (mélangeurs statiques, nids d'abeille...) offrant de fins interstices pour le passage des fluides. On parle de réacteur structuré. Ces réacteurs peuvent posséder un nombre de canaux droits et fins, dont la section est circulaire ou carrée : les réacteurs appelés

'monolithes' (ou 'honeycombs' aux USA) sont un excellent exemple de réacteur structuré. Les monolithes sont caractérisés par un nombre important de canaux millimétriques (ou 'cellules') par unité de surface de la section droite du bloc (figure 1.3), allant de 300 000 à 1 million de cellules par m^2 et autorisant ainsi des débits de gaz et de liquide conséquents. Leur dimension caractéristique va de $300\mu m$ à $3mm$ (Kreutzer, Kapteijn Moulijn et Heiszwolf 2005).

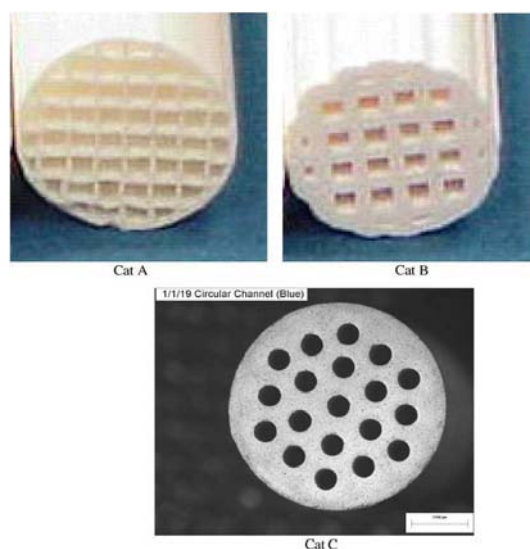


FIG. 1.3: Schéma d'un réacteur de type monolithe (photos tirées de Liu et Roy, 2004).

1.1.2 Les phénomènes physiques mis en jeu dans les réacteurs à bulles

Phénomènes hydrodynamiques

La nature des écoulements en colonne à bulles ou en monolithe est très différente.

Lorsque des bulles sont lâchées librement dans un grand volume de liquide (cas des cuves ou des colonnes), leur mouvement peut se développer de manière complexe tant du point de vue de leur trajectoire que de leur forme dans les trois directions de l'espace. Elles vont se mettre en ascension sous l'action de la poussée d'Archimède, et entraîner avec elles du liquide. Selon les débits des phases, elles peuvent s'élever toutes ensemble à peu près à la même vitesse, ou au contraire monter avec des trajectoires instables. Elles peuvent également se rassembler en paquets de bulles ascendantes, formant parfois un panache oscillant, et laissant un passage pour la circulation du liquide en périphérie. Ces différentes configurations sont très bien illustrées par les différents régimes, dits 'régimes de bullage' homogène ou hétérogène, rencontrés en colonnes à bulles (figure 1.5).

Dans les colonnes à bulles industrielles les débits des phases sont importants ; dans ce cas la présence de nombreuses bulles favorise la coalescence, élargit la distribution statistique des tailles de bulles, et engendre un rassemblement de grosses bulles en ascension rapide au centre de l'appareil ; ceci implique une macro-recirculation de la phase liquide : c'est typiquement le régime de bullage dit 'hétérogène'. La phase liquide est alors bien mélangée. Dans ce type de fonctionnement les effets inertiels participent de manière importante à la dynamique de l'écoulement. Dans ce cas également on constate expérimentalement un niveau de turbulence dans la phase liquide plus important que celui qu'on pourrait mesurer dans le même appareil pour l'écoulement monophasique liquide de même vitesse puisque le mouvement relatif des bulles ajoute une source de production

d'agitation dans le liquide en créant des sillages qui interagissent. Les tailles et les vitesses des bulles en colonnes industrielles sont donc difficiles à prévoir, d'autant plus qu'elles dépendent en outre beaucoup des propriétés physico-chimiques du milieu gaz-liquide, et en particulier de sa nature plus ou moins 'coalescente'. Il existe ainsi de nombreuses corrélations empiriques, identifiées par des expérimentateurs en colonnes pilotes, donnant un ordre de grandeur du diamètre de Sauter des bulles en colonnes pour différents milieux testés; elles sont toutes limitées au cas d'étude. Notons qu'on observe, pour les bulles, des formes parfois très complexes dès que leur taille moyenne atteint le centimètre (figure 1.4).



FIG. 1.4: Bulle centimétrique photographiée en bullage hétérogène (Chaumat, 2004).

Pour toutes ces raisons, la fraction volumique occupée par le gaz est difficile à estimer. Des corrélations donnant des valeurs globales existent, qu'on ne peut utiliser en dehors de leur domaine d'établissement (milieu, géométrie) dans la mesure où l'ordre de grandeur de la rétention de gaz en colonnes à bulles industrielle est très variable et va de 10 à 45%. Concernant la vitesse de recirculation du liquide, elle peut être estimée en une première approche en tenant compte des gradients macroscopiques de rétention gazeuse dans l'appareil et de la viscosité du milieu. Cependant, les colonnes en régime hétérogène montrent une dynamique instationnaire et fortement tridimensionnelle, avec des boucles de recirculation changeantes, et leur modélisation reste une gageure de ce domaine scientifique.

L'écoulement dans les monolithes présente des caractéristiques très différentes. Les canaux des monolithes sont de type capillaire, c'est-à-dire que les effets de tension de surface (d'ordre de grandeur σ/d_{3D}) et les effets visqueux (d'ordre de grandeur $\mu U/d_{3D}$) dominent ceux de la gravité et de l'inertie. Ici, σ , μ , d_{3D} et U , sont respectivement la tension de surface gaz-liquide, la viscosité dynamique du liquide, le diamètre équivalent volumique de la bulle et sa vitesse relative moyenne. Les effets capillaires sont tellement importants qu'ils peuvent même donner lieu, sous certaines conditions, au blocage global d'un écoulement à bulles. Il a ainsi été montré analytiquement (Bretherton, 1961) que la vitesse d'ascension d'une bulle allongée dans un tube capillaire de section circulaire, s'annule quand le nombre de Bond de la bulle comparant les effets de la gravité et de la tension de surface vérifie :

$$Bo_{3D} = \frac{\rho g d_{3D}^2}{\sigma} < 3.368 \quad (1.1)$$

Dans les tubes capillaires, selon les débits des deux phases, leurs propriétés physico-chimiques et la géométrie du tube, on peut observer différents régimes hydrodynamiques en écoulement gaz-liquide (figure 1.6). La topologie des interfaces peut donc être très variable. Le régime dit

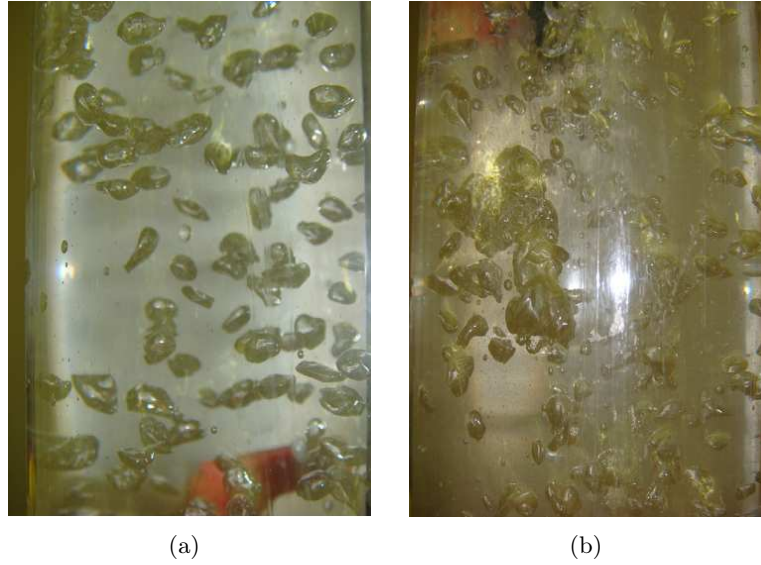


FIG. 1.5: Régimes de bullage en colonne à bulles. a) Régime homogène ; b) Régime hétérogène.

'poches- bouchon' (voir figure 1.6 c et d) est celui qui offre le meilleur rendement pour une grande partie des procédés industriels utilisant des réacteurs de taille millimétrique. Par conséquent nous discuterons essentiellement ce régime dans ce qui va suivre.

Ce régime d'écoulement, appelé aussi écoulement de Taylor, se développe lorsque les vitesses superficielles des deux phases sont similaires et suffisamment importantes. On constate expérimentalement pour ce régime une alternance de bulles séparées entre elles par des bouchons de liquide (en anglais : 'slugs'), à l'intérieur desquels on observe des recirculations (Kreutzer, Du, Heiszwolf, Kapteijn et Moulijn 2001). La vitesse de déplacement de ce train de bulles séparées par des bouchons de liquide est imposée par le débit des phases. La fraction volumique occupée par le gaz peut dépasser 50% du volume du canal à condition que les bulles soient suffisamment longues par rapport aux bouchons liquides. Ce pourcentage du volume occupé par le gaz découle directement du rapport des vitesses superficielles des phases qui alimentent l'appareil.

Un aspect important de ce type d'écoulement est la présence d'un film liquide d'épaisseur h entre la bulle et les parois du canal (dont le diamètre sera noté d_c). De nombreux travaux ont été réalisés afin de pouvoir prédire son épaisseur. Les travaux théoriques pionniers de Bretherton (1961) montrent que pour des canaux de section circulaire, h dépend du nombre capillaire $Ca = \mu U / \sigma$ qui est le rapport entre les contraintes visqueuses et la tension de surface :

$$\frac{h}{d_c} = 0.66Ca^{2/3} \quad (1.2)$$

Cette relation théorique est en excellent accord avec les résultats expérimentaux pour $10^{-4} < Ca < 10^{-2}$. En revanche, la présence de contaminants pouvant modifier localement la tension de surface de la bulle (effets Marangoni) tout comme les effets inertiels mettent en défaut la prédiction théorique de Bretherton (Kreutzer, Kapteijn, Moulijn et Heiszwolf, 2005). De plus, la forme de la section du canal est également un paramètre dont il faut tenir compte. La prise en compte de ces effets pour le calcul de h a suscité de nombreuses études, et plusieurs corrélations expérimentales sont disponibles dans la littérature. Irandoust et Anderson (1989) ainsi que Thulasidas, Abraham et Cerro (1995) trouvent expérimentalement que le rapport entre le diamètre de la bulle d_b et celui du canal (pour un canal de section circulaire) vérifie :

$$\frac{d_b}{d_c} = 0.64 + 0.36 \exp(-k_1 Ca^{k_2}) \quad (1.3)$$

avec $2 < k_1 < 3.1$ et $k_2 \cong 0.5$. Aussilous et Quéré (2000) ont proposé une loi d'échelle qui permet d'écrire la relation suivante donnant des valeurs très proches des résultats expérimentaux de Taylor (1961) pour $10^{-4} < Ca < 1$:

$$\frac{h}{d_c} = \frac{0.66 Ca^{2/3}}{1 + 3.33 Ca^{2/3}} \quad (1.4)$$

On remarque que ces deux relations prévoient que l'épaisseur du film augmente avec Ca .

A nombre capillaire modéré ($Ca < 0,01$), la dynamique du film arrive à perturber une zone en proche paroi dans le bouchon de liquide. Cette zone a une épaisseur de l'ordre de l'épaisseur du film entourant les bulles et on peut y observer un écoulement descendant lorsque la vitesse superficielle des bulles est légèrement supérieure à celle de la phase liquide (Thulasidas, Abraham, et Cerro 1997). Cette structure d'écoulement a des conséquences sur le transport des espèces et sur l'homogénéisation au sein de la phase liquide :

- il n'y a pas d'éléments de liquide pouvant rattraper le liquide en aval; le liquide peut seulement retourner en amont, via le film.

- si les bouchons sont longs, un équilibre en concentration a le temps de s'établir entre le film et le bouchon qui s'homogénéise en concentration grâce à sa recirculation interne. Le canal se comporte alors comme une série de bouchons relativement homogènes en concentration. Thulasidas et al. (1997) ont montré que le profil radial de vitesse au sein d'un bouchon de liquide est très proche de celui d'un écoulement de Poiseuille, ceci en canal de section circulaire ou rectangulaire, et pour une large gamme de nombres capillaires ($5.10^{-3} < Ca < 0.52$).

- si les bouchons sont courts, cet équilibre n'a pas le temps de s'établir et l'écoulement de liquide peut être représenté, dans une approche de type Génie des Procédés, par un écoulement 'piston' (profil plat de vitesse) comportant une dispersion non négligeable des espèces, mais vers l'amont seulement.

Phénomènes de transfert de masse

Les bulles et le liquide sont susceptibles d'échanger des espèces chimiques. Une espèce chimique gazeuse contenue dans les bulles se dissout dans le liquide en traversant l'interface (on parle ici d'absorption gaz-liquide ou de 'lavage' de gaz); une espèce dissoute dans le liquide migre vers l'interface des bulles et s'y dégaze (on parle alors de désorption ou de 'strippage' ou 'striping'). Les deux types de transfert, en sens opposé, peuvent co-exister. Ce transfert de masse implique bien sûr pour l'espèce chimique transférée un changement d'état (liquéfaction ou vaporisation); en conséquence ce transfert de masse peut s'accompagner de phénomènes thermiques, qui dépendent de la valeur de l'enthalpie de vaporisation de l'espèce, mais aussi de l'existence d'une éventuelle chaleur de mélange entre l'espèce transférée et la phase liquide. Cependant ces phénomènes thermiques, liés au seul transfert de masse, sont généralement peu conséquents. Le transfert de masse s'accompagne également d'une variation de la fraction massique, et donc de la fraction volumique, de chacune des phases. Souvent, notamment lorsque la solubilité de l'espèce chimique transférée est faible, cette variation reste suffisamment modérée pour être négligée entre l'entrée et la sortie du contacteur.

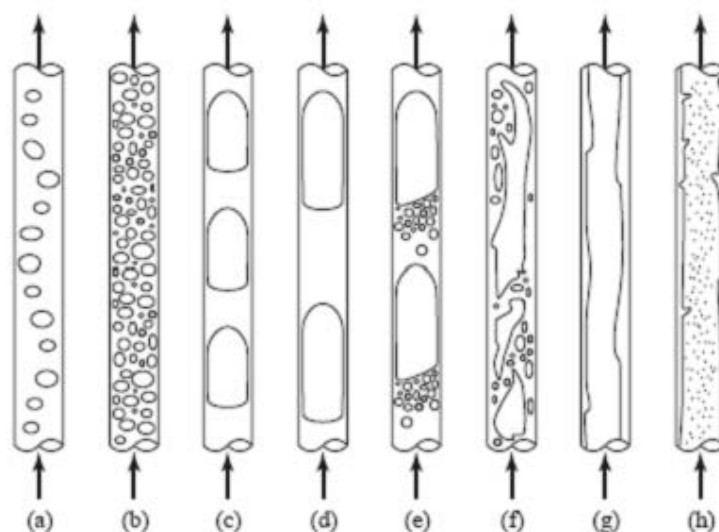


FIG. 1.6: Types d'écoulements gaz-liquide observés en canaux capillaires. (a) et (b) : écoulement à bulles; (c) et (d) : poches-bouchons; (e) : transition; (f) : écoulement chaotique; (g) : film liquide; (h) : écoulement annulaire. (figure tirée de Kreutzer, Kapteijn, Moulijn et Heiszwolf, 2005).

Réaction chimique

Dans le cas où une espèce chimique est transférée entre les deux phases, une réaction chimique peut avoir lieu. En général, un soluté issu des bulles de gaz se dissout dans le liquide et réagit avec une ou plusieurs des espèces chimiques déjà présentes dans la phase liquide. On peut donc dans ce cas vraiment parler de réacteur à bulles. Il est important de noter que cette réaction chimique va changer la composition du liquide, donc ses propriétés physico-chimiques (densité, viscosité, tension superficielle). Ce phénomène, couplé à l'échange de matière entre les phases, peut induire une variation de la fraction volumique occupée par le gaz, voire de la taille des bulles. Le changement de la physico-chimie du milieu peut également changer radicalement la distribution des phases, et donc les caractéristiques hydrodynamiques de l'écoulement entre l'entrée et la sortie du réacteur. Ainsi, par exemple, dans un réacteur de polymérisation le nombre de Reynolds caractérisant le mouvement des bulles peut être modifié de 2 ou 3 ordres de grandeur par la réaction.

1.1.3 Applications des réacteurs à bulles

Réacteurs de grande taille

Les contacteurs ou réacteurs à bulles les plus représentés dans l'industrie sont, aujourd'hui encore, des appareils de grande taille. Parmi ceux qui abritent uniquement des phénomènes mécaniques, on trouve les colonnes de flottation - les bulles entraînent des particules de boue vers la surface du contacteur -, ou les bains de métal en fusion - le mouvement des bulles homogénéise la température au sein du métal liquide -. Parmi les appareils dédiés au transfert de masse (ou de chaleur), on cite le cas courant du lavage d'effluents gazeux - les gaz indésirables, comme les oxydes de carbone ou l'ammoniac, se dissolvent dans la phase liquide, appelée alors 'solvant' -. Les réacteurs chimiques à bulles sont très représentés dans l'industrie [Dudukovic et al., 1999] : industrie pétrochimique, industrie chimique des herbicides et pesticides, industrie pharmaceutique, production de polymères, dépollution ou traitement d'eau, industrie agro-alimentaire, opérations

hydrométallurgiques... Les colonnes à bulles, très simples à construire et à utiliser, sont choisies pour de nombreuses applications chimiques : oxydations, hydrogénations, halogénations, hydrohalogénations, ammoniations, hydroformylations, réaction de Fisher-Tropsch, ozonation, carboxylations, alkylations, fermentations, etc [Joshi, 2001]. Une liste très complète d'applications en colonnes à bulles est donnée dans l'ouvrage de L.S. Fan : 'Gas-Liquid-Solid Fluidization Engineering' (1989).

Réacteurs de petite taille (milli-réacteurs)

L'écoulement de Taylor en canal étroit correspondant aux régimes (c) et (d) de la figure 1.6 a depuis longtemps des applications non réactives :

- le traditionnel débitmètre à bulles en est un exemple bien connu ;
- en micro-filtration les passages répétés de bulles permettent l'arrachement des dépôts en paroi ;
- en chimie analytique certains analyseurs peuvent traiter automatiquement une série d'échantillons liquides lorsque ceux-ci sont séparés par des bulles de gaz ;
- enfin, dans l'industrie nucléaire, les réacteurs sont refroidis par des tubes parcourus de poches de liquide et de bulles.

Pour le Génie de la Réaction chimique, les applications des écoulements confinés à bulles, comme les monolithes ou les micro-réacteurs à bulles, sont en pleine expansion depuis environ dix ans. Elles concernent parfois les réactions gaz-solide ; l'élimination des composés de type NOx et CO des gaz d'échappement dans les pots catalytiques de nos voitures en est un exemple connu. Mais ces micro-réacteurs s'adressent surtout aux réactions gaz-liquide catalysées par un solide, le catalyseur étant alors déposé sur les parois du réacteur. La première utilisation d'un monolithe en écoulement triphasique est rapportée par Horvath et al. (1973) ; elle concernait une réaction chimique entre un liquide et un solide (déposé en paroi), les bulles ayant été ajoutées pour activer le transfert liquide-solide. Les réacteurs monolithes ont ensuite connu un essor dans les années 80, pour des réactions chimiques gaz-liquide-solide ; en fait ces réacteurs constituent une alternative intéressante pour les réactions chimiques à cinétique rapide et pouvant souffrir d'une limitation par l'étape de transfert de masse, réactions habituellement réalisées en réacteurs à lits fixes (figure 1.2.d), comme les hydrogénations ou les hydroformylations. Récemment, dans les années 2000, des réactions catalysées par des particules solides en suspension, habituellement réalisées en colonnes à bulles (appelées colonnes 'slurry'), ont également été mises en oeuvre en réacteurs monolithes. L'article de synthèse sur le sujet de Kreutzer et al. (2005) en donne un large aperçu. L'exemple industriel le plus connu est sans doute celui de l'hydrogénation de l'anthraquinone servant à la production de peroxyde d'hydrogène (société Akzo-Nobel). C'est un procédé en deux étapes, le catalyseur ne devant pas être présent lors de la deuxième étape ; l'utilisation d'un monolithe pour la première étape permet de conserver la totalité du catalyseur en place, ce qui n'était pas possible avec des colonnes à bulles de type 'slurry'. D'autres réactions triphasiques sont réalisées en monolithes : la société Air Products and Chemicals a breveté la mise en oeuvre en monolithe des hydrogénations de nitro-aromatiques, réactions très rapides et hautement exothermiques. On peut citer également l'hydrogénation du sorbitol, celle d'oléfines, la production d'anhydride phtalique, l'oxydation de l'acide acétique par l'air humide, etc.

1.1.4 Conclusion

Les réacteurs à bulles sont largement représentés dans l'industrie car ils répondent à la nécessité de mettre en oeuvre de nombreuses réactions entre un gaz et un liquide, faisant éven-

tuellement intervenir un catalyseur solide. Ces réacteurs se déclinent en deux catégories, très différentes par leurs tailles, et également par la répartition des phases et la structure de l'écoulement qu'ils abritent. Ainsi l'écoulement dans les colonnes à bulles est piloté par les effets de gravité et le mouvement libre des bulles, alors que dans les réacteurs structurés faisant intervenir des canaux de taille millimétrique, ce sont les effets de tension superficielle et de viscosité, qui dominant, et qui imposent un mouvement d'ensemble aux phases liquide et gazeuse. Ces différences ont bien entendu une répercussion sur l'efficacité du transfert de masse et sur l'avancement d'une éventuelle réaction chimique. Dans ce qui suit on s'attachera à analyser les spécificités de fonctionnement et de performance des grands réacteurs à bulles et des monolithes, en termes de contraintes opératoires, de transfert de masse, de mélange et de réaction.

1.2 Comparaison des fonctionnements des colonnes à bulles et des milli-réacteurs

Pour cette comparaison on considèrera les caractéristiques des colonnes à bulles bien connues. Pour tout complément d'information, il existe des ouvrages ou articles de synthèse sur le sujet (par exemple : Akita et Yoshida, 1973 ; Trambouze, Van Landeghem et Wauquier, 1984 ; Dudukovic, Larachi et Mills 1999).

1.2.1 Contraintes et facilités opératoires

Pour les colonnes à bulles

En colonne à bulles la difficulté d'opération majeure est la distribution du gaz en pied de colonne. Beaucoup de types de distributeurs ont été testés : tubes inox percés (toriques ou droits), hydro-éjecteurs, membranes percées... Aucun ne permet une répartition homogène du gaz sur la section d'entrée de la colonne. Ces inhomogénéités à l'injection se répercutent sur la structure du milieu diphasique en aval : formation de cheminées de bulles, de panaches oscillants, ...

Les colonnes à bulles offrent un volume important aux phases en présence ; même si les débits des fluides sont élevés également (plusieurs $m^3/heure$, en général), on obtient des temps de passage des fluides importants (ordre de la dizaine de minutes).

L'énergie consommée dans ces appareils dépend essentiellement des débits de gaz et de liquide qui doivent l'alimenter, et de la hauteur de liquide dans l'appareil, qui conditionne la pression d'entrée à vaincre par les courants.

Pour les réacteurs milli-structurés

Un atout majeur des réacteurs milli-structurés est leur légèreté, due à la finesse de leurs parois. Malgré cette faible masse, la surface spécifique de catalyseur est aussi grande voire supérieure à ce qu'on trouve en trickle bed (lit fixe cf figure 1.2(d)). La finesse des parois confère également aux réacteurs de type monolithe une faible inertie thermique, très appréciée dans les opérations instationnaires : ainsi le pot catalytique, au démarrage de la voiture, est très rapidement opérationnel. Pour les réacteurs monolithes une des grandes difficultés d'opération est également l'injection des phases à l'entrée du réacteur : comment répartir le gaz et le liquide de façon identique dans tous les canaux capillaires ? Toute mal-distribution sera propagée dans les capillaires, qui présenteront des différences dans les rétentions des phases, dans les vitesses de transport, dans la performance de la réaction chimique. Certains auteurs préconisent l'utilisation d'un mélangeur statique dans une nourrice commune, placée en amont des canaux.

Vu l'étroitesse des canaux, on pourrait s'attendre à ce que la perte de charge soit importante

dans les monolithes. La perte de charge dépend de deux contributions (pour une longueur L du canal) : (i) la friction en paroi, qui peut s'exprimer pour les bouchons par la loi correspondant à un écoulement de Hagen-Poiseuille $\frac{\Delta P}{L} = 32\mu\frac{U}{d_b^2}$, (ii) celle de la gravité $\frac{\Delta P}{L} = \rho g$.

Pour le micro-canal dans son ensemble, il vient :

$$\frac{\Delta P}{L} = \epsilon_L \left(32\mu\frac{U}{d_b^2} + \rho g \right) \quad (1.5)$$

où ϵ_L est la rétention volumique en liquide du canal. Pour le monolithe dans son ensemble, il faut ajouter la forte perte de charge de la zone d'entrée. Mais la fraction volumique de phase liquide étant modérée, la perte de charge totale est réputée faible. En conséquence les débits d'alimentation des phases peuvent être élevés ; mais le volume offert aux fluides étant modéré, les temps de passage sont néanmoins faibles (inférieurs à la minute).

1.2.2 Performances chimiques.

Pour les colonnes à bulles

En colonne à bulle, on a vu que la phase liquide est très bien mélangée, ce qui signifie que les concentrations des réactifs sont homogènes dans tout le volume de l'appareil (sauf au voisinage direct des interfaces gaz-liquide). En conséquence, la réaction se fait dans ce volume avec la vitesse de réaction correspondant à ces concentrations, qui sont les concentrations de sortie de l'appareil, donc les concentrations les plus faibles. Ce type de fonctionnement est donc loin d'être optimal.

Pour les milli-réacteurs

En milli-canal en revanche, un bouchon de liquide se trouvant à l'entrée a des concentrations en réactifs très élevées par comparaison avec un bouchon de la zone de sortie. La vitesse de réaction évolue donc régulièrement de l'entrée vers la sortie du canal. Ce type de fonctionnement, proche du 'fonctionnement tubulaire idéal' (appelé 'piston'), est le plus favorable pour un très grand nombre de réactions chimiques. Pour un temps de passage similaire des réactifs dans l'appareil, le réacteur monolithe doit donc a priori être plus performant que la colonne à bulles du point de vue de la réaction chimique. Cependant, comme on l'a vu, le volume des réacteurs monolithes étant faible devant celui des colonnes à bulles, le temps de passage (volume / débit volumique) y est faible.

De plus les problèmes de mal-distribution à l'entrée des monolithes, particulièrement importants aux faibles débits, engendrent des disparités entre les canaux en ce qui concerne la vitesse de l'écoulement ; les temps de séjour des réactifs ne sont pas exactement les mêmes selon les canaux et l'avancement de la réaction répercutera ces disparités.

Il faut signaler aussi que le catalyseur déposé en paroi des canaux se désactive parfois rapidement, ce qui impose un renouvellement fréquent, et donc coûteux, du monolithe dans son ensemble. En revanche, les faibles pertes de charge constatées dans ces réacteurs offrent deux avantages :

- une boucle de recirculation globale peut être mise en place à moindre coût, ce qui permet d'augmenter le temps de séjour des réactifs, et de refroidir ou réchauffer le milieu réactionnel en plaçant un échangeur dans la boucle de recyclage, si besoin ;

- en cas d'apparition d'un point chaud inquiétant dans l'appareil (pour les réactions fortement exothermiques), l'arrêt de l'alimentation des phases induira un drainage spontané du liquide le

long des parois des canaux en quelques secondes, ce qui est un gage de sécurité pour ces appareils.

Limitation de la réaction par le transfert de masse

Cependant, qu'il s'agisse de colonne ou de monolithe, il ne faut surtout pas oublier que la vitesse intrinsèque de la réaction chimique est souvent ralentie par l'étape de transfert du (ou des) réactif(s) injecté(s) dans l'appareil en phase gazeuse. Lorsque la réaction chimique est de cinétique rapide, la vitesse de réaction apparente observée à l'échelle du réacteur est donc en fait la vitesse de transfert de masse. Dans ce cas très fréquent, on constate expérimentalement que la vitesse de réaction apparente, à l'échelle du réacteur :

- augmente quand la vitesse des phases augmente, en colonne à bulles,
- diminue quand la vitesse des phases augmente, en monolithe.

Cette différence radicale de comportement doit trouver son explication par l'analyse des mécanismes de transfert dans les deux types d'appareils.

1.2.3 Transfert de masse.

Du point de vue du transfert de masse, l'efficacité globale des réacteurs à bulles est évaluée classiquement, en Génie des Procédés, par le flux de masse total échangé dans l'appareil entre la phase gazeuse et la phase liquide ; ce flux (en mol/s) est donné par la relation globale suivante $\Phi = k_L a V_L (C_S - C_L)$ où V_L est le volume de phase liquide dans l'appareil, C_S est la concentration du soluté au voisinage de l'interface des bulles (équilibre thermodynamique liquide-vapeur, pris à la concentration moyenne du gaz dans le réacteur), C_L est la concentration moyenne de la phase liquide dans le réacteur, a est l'aire interfaciale offerte par unité de volume de mélange gaz-liquide, et k_L est le coefficient global de transfert de masse.

Colonnes à bulles.

Selon un modèle de type 'double film', dans les colonnes à bulles le transfert de masse est essentiellement limité par l'étape de migration du soluté dans la couche de gradient de concentration, ou couche limite massique, se trouvant à la surface des bulles, du côté de la phase liquide. Si la réaction chimique mise en oeuvre est catalysée par des particules solides, et si ces particules sont poreuses, il faut également prendre en compte la migration du soluté dans les pores du catalyseur.

Il a été montré expérimentalement que le coefficient volumétrique de transfert $k_L a$ peut être estimé via la rétention gazeuse globale ϵ : en général $k_L a$ (exprimé en s^{-1}) vaut entre 0.3ϵ et 0.4ϵ [Billet, 2005]. Cela donne, pour les colonnes à bulles, une gamme d'environ 0.06 à $0.2s^{-1}$ pour le paramètre $k_L a$. Les valeurs de $k_L a$ sont en fait essentiellement conditionnées par la valeur de a , car le coefficient k_L est toujours du même ordre de grandeur en colonne à bulles (de 2.10^{-4} à $3.10^{-4}m/s$). En colonne on constate que, quand le débit d'alimentation du gaz augmente, la taille des bulles et leur vitesse augmentent en moyenne, et le coefficient k_L peut augmenter. La valeur de a dépend directement des propriétés physico-chimiques du système gaz-liquide. En colonne à bulles elle varie de 300 à $1000 m^2/m^3$.

Réacteurs milli-structurés.

En réacteur monolithe, la gamme des valeurs relevées pour le coefficient volumétrique global de transfert $k_L a$ est de 0.5 à $1.5s^{-1}$ (Kreutzer, Du, Heiszwolf, Kapteijn et Moulijn, 2001) qui est donc bien plus favorable qu'en colonne à bulles. Il faut remarquer qu'en milli-canal avec un écoulement de Taylor, l'aire interfaciale offerte au transfert du soluté est importante ; si on ne fait

pas de distinction entre l'interface en contact avec le bouchon de liquide et l'interface en contact avec les films pariétaux, et si on assimile les bulles et les bouchons à des cylindres de même diamètre que le canal, on peut aisément calculer une estimation approchée de l'aire interfaciale a en fonction du diamètre du canal, d_c , et de la longueur des bulles et des bouchons (L_{bulle} et L_{slug} , respectivement) :

$$a = \frac{2d_c + 4L_{bulle}}{d_c(L_{bulle} + L_{slug})} \quad (1.6)$$

Dans le cas où les bulles et les slugs sont à peu près de même longueur L_e , il vient :

$$a = \frac{d_c + 2L_e}{d_c L_e} \quad (1.7)$$

Si $L_e \approx d_c$, on obtient $a = 3/d_c$ (soit $1000 < a < 3000 m^2/m^3$); si $L_e \approx 3d_c$, on obtient $a \approx 7/d_c$ (soit $2300 < a < 7000 m^2/m^3$). On voit bien ici la supériorité des monolithes sur les colonnes à bulles en terme de rapport interface/volume. Kreutzer, Kapteijn et Moulijn (2006) ont bâti un graphe comparant les valeurs du coefficient global $k_L a$ pour les monolithes en écoulement de Taylor et pour les colonnes à bulles (agitées ou non). On reproduit ce graphe ci-dessous (figure 1.7); il confirme la supériorité des réacteurs de type monolithe en termes de coefficient global de transfert.

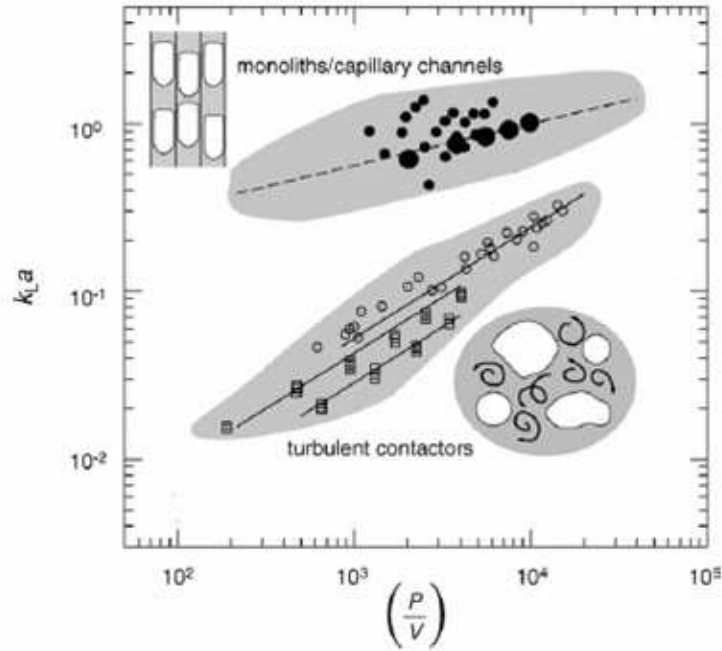


FIG. 1.7: Comparaison des coefficients $k_L a$ en monolithe et en réacteur à bulles, en fonction de l'énergie fournie à l'appareil par unité de volume. (Kreutzer, Kapteijn et Moulijn, 2006)

Pour mieux comprendre les mécanismes gouvernant le transfert de masse dans les monolithes, Kreutzer, Du, Heiszwolf, Kapteijn et Moulijn (2001) décomposent le phénomène en trois résistances au transfert (voir le schéma de synthèse en figure 1.8), dans le cas d'une réaction catalytique, c'est-à-dire nécessitant la migration du soluté vers les parois (où a été fixé le catalyseur) :

(1) : Le transfert direct du soluté de la bulle vers la paroi solide du canal introduit une résistance ou un coefficient de transfert noté k_{GS} . On peut modéliser k_{GS} par D/δ où D est la diffusivité du soluté dans le liquide et δ l'épaisseur de la couche de diffusion de concentration qu'il faut estimer.

(2) : Le transfert du soluté de la bulle vers le bouchon de liquide se fait aux extrémités amont et aval de la bulle. Kreutzer et al. ont montré expérimentalement que dans leur travail le coefficient de transfert, k_{GL} , est proportionnel à $U^m/(L_{slug}^{0.5})$, où L_{slug} est la longueur moyenne des bouchons et U la vitesse de déplacement des slugs.

(3) : Le transfert du soluté de la phase liquide dans les bouchons vers la paroi solide introduit un coefficient k_{LS} . Dans l'étude considérée, le catalyseur qui consomme le soluté crée une fine couche de gradient de concentration en soluté près des parois appelé film slug-paroi. Par analogie avec les lois de transfert thermique en canal, on a une loi du type : $Sh = \left(\alpha_1^2 + \frac{\alpha_2^2}{Gz}\right)^{0.5}$ où α_1 et α_2 sont des paramètres qui dépendent de L_{slug}/d_c , et où Gz est le nombre adimensionnel de Graetz : $Gz = \frac{L}{d_c} Re Sc$ avec Re et Sc relatifs au canal et aux propriétés du liquide.

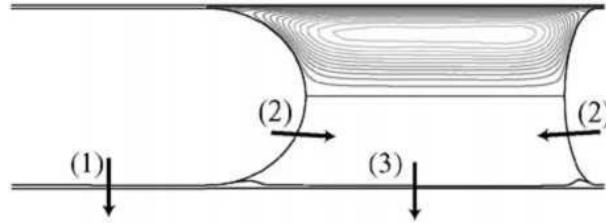


FIG. 1.8: Mécanismes de transfert en micro-canal pour un écoulement de type Taylor. (Schéma de principe proposé par Kreutzer, Du, Heiszwolf, Kapteijn et Moulijn, 2001).

Les résistances au transferts 2 et 3 s'enchaînent donc en série ; la résistance 1 est une résistance parallèle aux résistances 2 et 3. Des expériences, menées en transfert réactif par différents auteurs, montrent que la résistance au transfert, pour les réactions rapides, provient essentiellement des étapes de migration dans les films (étapes 1 et 3). Si le nombre capillaire est faible ($Ca < 0,01$), le film entre la bulle et la paroi, et le film entre le slug et la paroi, ont la même épaisseur ; les coefficients k_L sont alors similaires : $k_{GS} = k_{LS} = k$. Or la concentration en soluté est nulle en paroi ; on peut alors écrire les densités de flux ϕ ($\phi = \Phi/V_L$) de la façon suivante :

$$\phi_{GL} = k_{GS} a_{bulle} (C_S - 0) = k_{GS} \frac{4L_{bulle}}{d_c(L_{bulle} + L_{slug})} C_S \quad (1.8)$$

Vue la recirculation au sein des bouchons, la concentration est considérée constante homogène dans les slugs et est notée C_{slug} . Cette concentration est forcément inférieure ou égale à C_S .

$$\phi_{LS} = k_{LS} a_{slug} (C_{slug} - 0) = k_{LS} \frac{4L_{slug}}{d_c(L_{slug} + L_{slug})} C_{slug} \quad (1.9)$$

On montre ainsi que, pour des écoulements de Taylor où bulles et slugs sont de longueur similaire, pour que l'étape 3 joue un rôle ($\phi_{GS} \approx \phi_{LS}$) il faut que $C_S \cong C_{slug}$. Dans ces conditions ($Ca < 0,01$ et tailles de bulle et slug similaires), on voit donc que le slug de liquide est saturé en soluté gazeux dissous. On comprend alors que la migration du soluté des bulles vers les slugs (étape 2) n'est pas une étape déterminante du transfert de masse global, et on perçoit le rôle prépondérant des films dans ce processus.

De plus il a été constaté dans les différentes études expérimentales consacrées au sujet que la fraction volumique du gaz n'influe pas sur l'efficacité du transfert de masse dans le réacteur. Cela se comprend aisément dans le cas développé ci-dessus ($Ca < 0,01$ et longueurs de bulle et slug similaires), puisque dans ce cas on a :

$$\phi_{GS} = k \frac{4\epsilon_G}{d_c} C_S \quad (1.10)$$

$$\phi_{LS} = k \frac{4\epsilon_L}{d_c} C_S \quad (1.11)$$

Le flux total de masse par unité de volume du canal est donc :

$$\phi_{tot} = k \frac{4}{d_c} C_S \quad (1.12)$$

et ne dépend pas des rétentions des phases. Vu que l'aire interfaciale en monolithe est 3 à 7 fois plus importante qu'en colonne, et que le coefficient global de transfert $k_L a$ est environ 10 fois plus important en monolithe qu'en colonne, il est probable que le coefficient k_L déterminant en monolithe (k_{LS} ou k_{GS}) soit lui-même 1.5 à 3 fois plus important que le coefficient k_L moyen en colonnes à bulles. De plus, quand on diminue la vitesse des phases dans le monolithe, le nombre capillaire Ca diminue (par définition), donc l'épaisseur du film en paroi est plus faible (voir paragraphe ??), et donc le coefficient de transfert de masse prépondérant (noté k , dans la relation précédente) augmente. Ceci explique la surprenante constatation expérimentale, faite en monolithes, de l'augmentation de la vitesse apparente de réaction avec la diminution de la vitesse des phases. En monolithe un plus faible apport d'énergie induit une meilleure performance du réacteur du point de vue du transfert de masse et donc de la réaction chimique.

1.2.4 Conclusion

Résumons ce qui précède en mettant en lumière les avantages et inconvénients de chaque grande catégorie de réacteurs à bulles :

- Les colonnes à bulles ne présentent pas de difficulté de mise en fonctionnement, mise à part la réalisation d'une bonne distribution du gaz à l'entrée de l'appareil. Au sein des colonnes, de grandes recirculations de liquide prennent place, donnant à la phase liquide un caractère bien mélangé qui est néfaste à l'avancement chimique pour la plupart des réactions existantes, et qui autorise le 'rétro-mélange' des bulles de gaz (retour de bulles 'épuisées' en soluté gazeux vers l'entrée de la colonne). Les débits d'alimentation des phases ne sont pas limités, mais le temps de passage des fluides est relativement grand. La fraction volumique de gaz, et par conséquent l'aire interfaciale offerte au transfert de masse, sont modérées ; les interfaces peuvent avoir des formes complexes. Pour améliorer l'efficacité du transfert de masse en colonne, il faut augmenter les vitesses de circulation des fluides.

- En réacteur de type monolithe, les pertes de charge sont faibles ; cependant une distribution homogène des phases entre les différents micro-canaux est très difficile. L'écoulement dans les canaux est une succession de bulles et de bouchons de liquide, limitant le mélange, et conférant donc à la phase liquide un comportement 'piston' (au sens du Génie des Procédés), favorable à la performance chimique. Cependant le volume de ces réacteurs est généralement faible ce qui induit de faibles temps de passage pour les fluides, et donc un avancement chimique de sortie modéré. Les bulles sont de forme figées ; elles sont entourées par un film de liquide. Malgré l'indéformabilité des bulles, l'aire interfaciale volumétrique atteint des valeurs importantes. Les bouchons de liquide

sont également entourés d'un film de diffusion de concentration. La migration du soluté à travers les films constitue l'étape qui pilote le transfert de masse global dans le réacteur. En monolithes, le transfert de masse bénéficie d'un ralentissement des vitesses de circulation des fluides.

Les milli-réacteurs sont donc plus intéressants que les colonnes à bulles en termes d'aire interfaciale, de coefficient de transfert de masse (via le transfert dans les films minces en paroi), de structure de l'écoulement de la phase liquide, et du rapport entre le coefficient de transfert et l'énergie de mise en circulation des fluides.

1.3 Conclusion du chapitre

A la lumière de ce qui précède, on voit bien l'intérêt des géométries confinées pour des réactions gaz-liquide ou gaz-liquide-solide à cinétique intrinsèque rapide. Les principaux défauts des réacteurs monolithes sont les problèmes de mal-distribution et le temps de passage réduit des fluides. Il est alors tentant d'imaginer une configuration qui conserve les avantages offerts par les monolithes tout en réduisant leurs défauts. On peut légitimement s'interroger sur la faisabilité d'un écoulement à bulles présentant un plus grand volume réactionnel, une alimentation en fluides plus facile, des bulles libres de se déformer, et une phase liquide juste assez mélangée pour limiter la saturation au voisinage des interfaces mais pour conserver cependant à l'écoulement global un caractère piston pour limiter le rétro-mélange, et ceci tout en gardant les avantages d'une géométrie confinée, c'est à dire des films en paroi efficaces pour le transfert de masse gaz-liquide.

Nous proposons ici un écoulement à bulles confinées, mais permettant un accès aisé des fluides et offrant un volume de liquide plus important que dans un faisceau de canaux fins : l'écoulement entre deux plaques parallèles proches.

Dans cette configuration, on a observé qu'il est possible de réaliser des trains de bulles parallèles et proches les uns des autres. Le mélange par advection est minime. Ainsi on garde les avantages constatés dans les réacteurs monolithes :

- la phase liquide ne subit pas de rétro-mélange ;
- la perte de charge reste modérée ;
- le rapport entre l'aire interfaciale et le volume de gaz injecté reste excellent ;
- pour des bulles dont le diamètre équivalent est suffisamment important par rapport à l'écart entre plaques, on observe de la même manière que pour les écoulements de Taylor, un film liquide entre la bulle et les plaques participant activement au transfert de masse.

De plus, l'alimentation en gaz peut se faire par le biais de capillaires introduits entre les plaques ; le débit de chaque phase sera ainsi parfaitement maîtrisé. En outre, pour un même volume d'appareil, le volume de liquide sera plus important que dans un bloc monolithe ; par conséquent le temps de passage, et le taux de conversion global dans l'appareil, seront meilleurs. Bien sûr, à volume de réacteur donné, l'importance relative des surfaces solides est plus faible que dans le cas des monolithes. Cependant cet inconvénient disparaît totalement dans le cas des réactions gaz-liquide (non catalysées).

L'écoulement à bulles confiné entre deux plaques proches est une configuration originale, intermédiaire entre le cas des colonnes à bulles et celui des monolithes en termes de confinement et de taille caractéristique d'appareil. Elle est a priori prometteuse et nous nous attacherons dans ce travail à la caractériser du point de vue de l'hydrodynamique et du transfert de masse. Pour que les bulles soient bien confinées et que les effets capillaires ne soient pas négligeables dans l'appareil, on prendra des plaques suffisamment proches (interstice d'1mm pour une longueur capillaire air-eau de 2.5mm).

Dans une telle cellule, une première analyse est incontournable : celle de la bulle isolée.

On s'attachera à caractériser la forme et la vitesse de bulles isolées de différentes tailles, et à caractériser leur mouvement. En effet ces résultats ne sont pas encore disponibles dans la littérature scientifique, et cette situation comporte a priori tous les éléments prometteurs pour le transfert de masse et le transport des espèces : présence de film, mouvement 'libre' des bulles et donc du liquide, déformation possible des bulles.

Chapitre 2

Dispositif expérimental et position du problème

2.1 Présentation et qualification du dispositif expérimental

2.1.1 Contraintes pour une étude en géométrie semi-confinée

Afin d'étudier la dynamique et le transfert de masse autour de bulles isolées confinées, nous avons construit un dispositif expérimental que nous nommerons cellule bidimensionnelle. Ce dispositif doit, tout en possédant une géométrie fortement bidimensionnelle, permettre de réaliser des mesures locales. Ceci implique qu'il doit posséder un accès optique permettant de filmer les inclusions circulant dans le canal et laissant passer une plage assez large de longueurs d'onde pour réaliser des mesures par techniques laser. Ce dispositif doit également permettre d'injecter des bulles de différentes tailles et de faire varier le débit de gaz en entrée. Pour finir, le temps de séjour des inclusions circulant dans la cellule doit pouvoir être modifié indépendamment du débit d'injection du gaz.

2.1.2 Description de la cellule 2D

La cellule bidimensionnelle est constituée de deux plaques en verre disposées parallèlement l'une à l'autre (figure 2.1) et ayant une largeur l_y de 400mm, une hauteur l_x de 800mm et une épaisseur de verre calibrée de 8mm. Ces deux plaques sont séparées d'une distance faible $e = 1mm$ qui confère l'aspect bidimensionnel à la cellule. Cette distance est volontairement choisie inférieure à la longueur capillaire (2.5mm pour l'eau et l'air) pour les fluides utilisés afin de donner du poids aux effets capillaires. De plus, les plaques étant en verre, des mesures optique peuvent être réalisées dans n'importe quelle région entre les plaques. L'interstice entre les plaques est rempli d'eau distillée dans laquelle circuleront des bulles d'air pouvant être injectées au moyen de divers capillaires. L'installation comporte 19 capillaires régulièrement espacés au total, pour permettre dans le futur une étude de l'ascension d'un nuage de bulles. Dans cette étude nous avons utilisé un capillaire à la fois. Afin de pouvoir faire varier le volume des bulles, nous avons utilisé des capillaires de différents diamètres intérieurs (0.14 à 0.25mm). Ils sont positionnés dans une nourrice connectée aux plaques (figure 2.2). Les capillaires les plus fins (dont le diamètre extérieur est inférieur à 1mm) peuvent être directement introduits dans les plaques. Ainsi nous pouvons injecter des bulles dans une gamme de volume allant de 0.5 à 700mm³. La présence d'un détendeur en amont du réseau de distribution de gaz dans les capillaires permet de faire varier le débit d'air injecté.

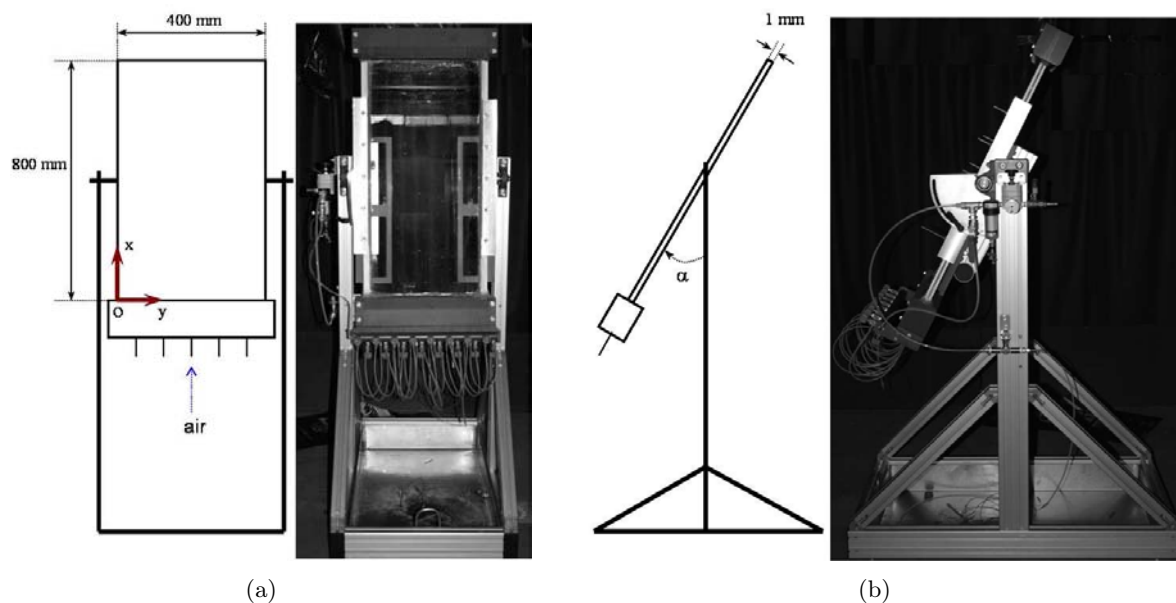


FIG. 2.1: Schémas et photos de la cellule 2D : (a) vue de face (b) vue de droite.

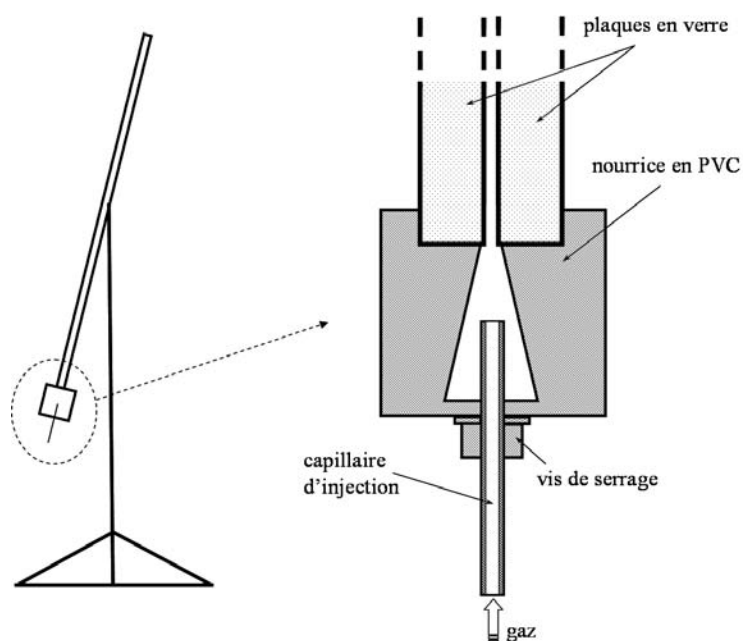


FIG. 2.2: Vue en coupe dans un plan normal aux plaques de la partie servant à l'injection du gaz.

La cellule est fixée à un châssis autorisant une inclinaison des plaques de 0° à 90° par rapport à la direction verticale afin de moduler l'effet de la gravité et donc la vitesse ou le temps de séjour des bulles entre les plaques.

2.1.3 Mesure de l'écart entre les plaques

L'épaisseur entre les plaques e est un paramètre important de l'étude. Devant les contraintes mécaniques importantes que peuvent subir les plaques en verre constituant la cellule, nous avons

voulu, d'une part, nous assurer que l'inclinaison du châssis ne modifiait pas l'écart entre les plaques e , et d'autre part connaître avec précision cet écart en différents points. Pour obtenir la mesure de e , nous avons fait passer un faisceau laser entre les plaques préalablement inclinées d'un angle α par rapport à la verticale. A chaque interface air-verre une partie de la lumière est réfléchie ce qui permet de distinguer 4 taches lumineuses sur la première plaque (figure 2.3). Ces taches sont photographiées au moyen d'une caméra dont l'axe optique est normal au plan des plaques. Un traitement d'image permet de déterminer le centre de chacune. Par un calcul basé sur l'optique géométrique, les distances l_{p1} , l_e et l_{p2} entre les 4 taches lumineuses donnent accès en fonction des indices optiques du verre n_v et de l'air n_a et de l'angle α , aux épaisseurs e_{p1} et e_{p2} des plaques ainsi qu'à leur espacement e :

$$e_{pi} = \frac{l_{pi}}{2} \left(\frac{n_a}{n_v} \frac{1}{\sin\alpha} - 1 \right)^{1/2} \quad i = 1, 2 \quad (2.1)$$

$$e = \frac{l_e}{2} \left(\frac{1}{\sin\alpha} - 1 \right)^{1/2} \quad (2.2)$$

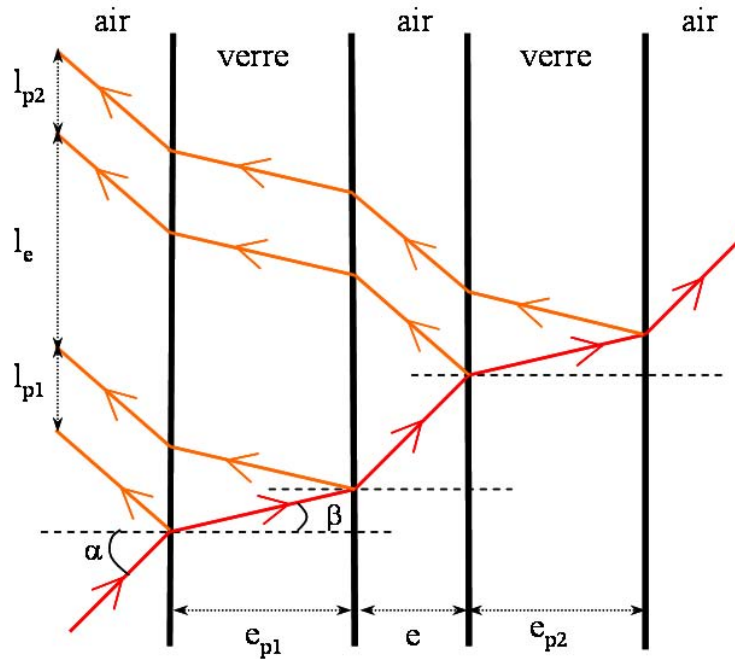


FIG. 2.3: Trajet optique et réflexions d'un faisceau laser horizontal impactant sur les plaques inclinées d'un angle α .

La relation 2.1, dans laquelle on connaît e_{pi} , n_a et n_v nous a permis de valider nos mesures d'épaisseur. On remarquera que la relation 2.2 permettant de calculer l'écart entre les plaques ne fait pas intervenir les indices optiques, nous l'utilisons pour obtenir les valeurs locales de e .

Pour cette étude, la définition des images est de $122\mu\text{m}$ par pixel et la distance l_e (mesurée pour $40.0^\circ < \alpha < 57.4^\circ$) varie entre 4 et 7.1mm. Le centre de chaque tache étant détecté avec une précision d'un pixel, la mesure des différentes épaisseurs a une précision comprise entre 3.5 et 6%. La mesure expérimentale de la distance l_e pour différentes inclinaisons des plaques, au point de coordonnées $(x=0.508\text{m}, y=0.283\text{m})$ est représentée sur la figure 2.4. Sur cette même figure,

nous avons tracé l'évolution théorique de l_e en fonction de α (relation 2.2) pour e constant. Cette valeur constante de e correspond à la mesure la plus précise (réalisée pour $\alpha=57.4^\circ$). L'écart entre les points expérimentaux et la courbe théorique est inférieur à l'erreur de mesure. Par conséquent, nous pouvons considérer qu'à l'erreur de mesure près, l'écart entre les plaques pour le point étudié ne dépend pas de l'inclinaison.

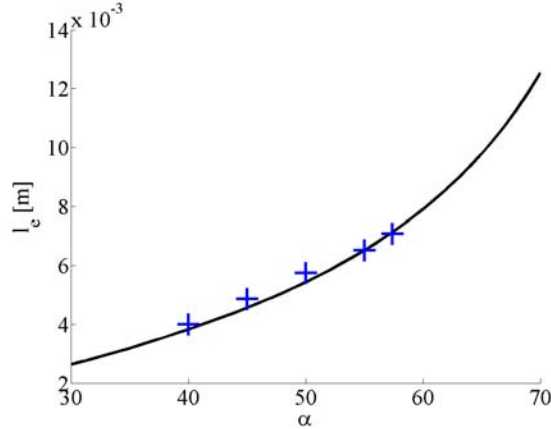


FIG. 2.4: Distance l_e en fonction de α pour le point de coordonnées ($x=0.508m, y=0.283m$). + valeurs expérimentales; - courbe théorique pour $e=1.13mm$

Nous avons réalisé ce type d'investigation en différents points de la cellule, et pour chacun, l'écart entre les plaques reste indépendant de l'inclinaison.

Le tableau 2.1 donne les valeurs de e en fonction des coordonnées des points étudiés. Nous avons bien évidemment retenu les valeurs les plus précises (3.5% d'erreur). Le tableau 2.1 montre que lorsque des variations d'épaisseur existent dans le plan elles sont au plus de l'ordre de 0.01mm par centimètre.

A la lumière de ces résultats, nous avons choisi une fenêtre d'observation pour nos mesures ($55 \leq x \leq 64cm, 23 \leq y \leq 30cm$) dans laquelle l'écart entre les plaques est de $1 \pm 0.08mm$. De plus, des mesures PIV lors de vidanges de l'eau de la cellule, ont montré que les champs de vitesse étaient uniformes dans cette zone, confirmant alors les faibles variations d'épaisseur.

2.2 Position du problème

Le problème physique dont nous allons discuter dans ce chapitre est celui de l'ascension dans une géométrie bidimensionnelle d'une bulle dans un fluide au repos. La géométrie particulière de cette bulle confinée permet de distinguer plusieurs régions de l'écoulement du liquide autour de son interface. Une première région correspond aux films liquides d'épaisseur h situés entre la bulle et les plaques (figure 2.5 (b)). L'autre concerne la partie de l'écoulement en périphérie de la bulle ($r > R$ figure 2.5 (a)). Après avoir donné les paramètres adimensionnels du problème nous discuterons des caractéristiques de l'écoulement dans les deux régions. Un dernier point portera sur le transfert de matière de la bulle vers le liquide .

2.2.1 Paramètres de l'étude.

Nous allons considérer ici une bulle de gaz isolée de volume V , en ascension sous l'effet de la gravité dans un liquide de viscosité dynamique μ et de masse volumique ρ . Comme nous le verrons dans le chapitre suivant, les mesures expérimentales nous donnent accès au périmètre p

e (mm)	x (mm)	y (mm)
0.99	629	176
1.08	631	256
1.07	598	292
1.15	502	183
1.13	508	283
1.13	502	85
1.13	315	288
1.13	316	258
1.16	314	177
1.16	312	144
1.10	310	83

TAB. 2.1: Ecart e entre plaques dans le repère (O,x,y) (x et y sont les coordonnées repérées sur la figure 2.1(a)).

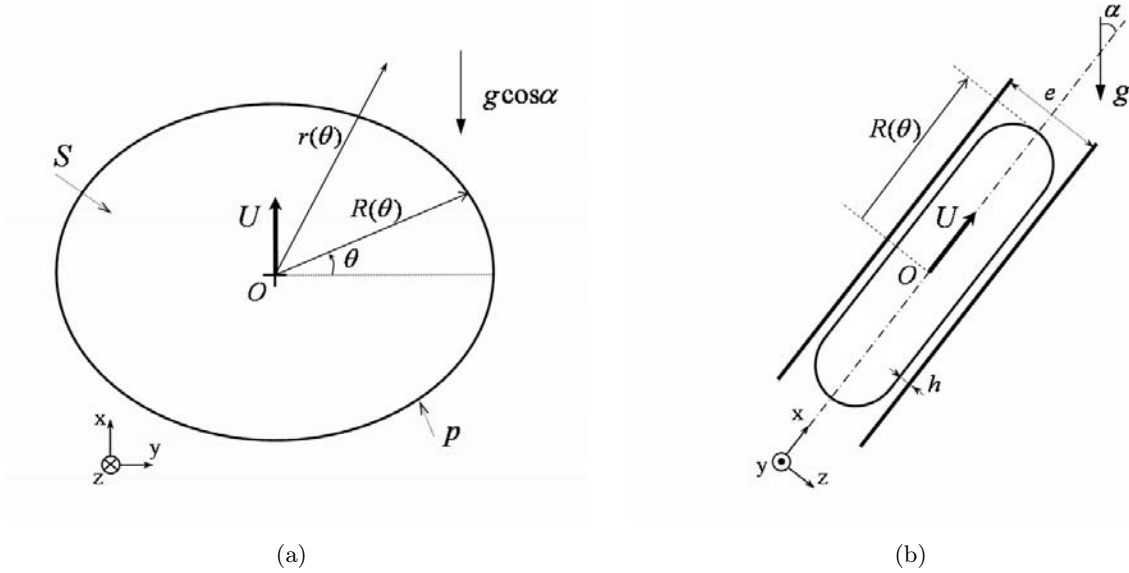


FIG. 2.5: Schéma d'une bulle d'air en ascension (a) vue de face (b) vue de profil

de la bulle ainsi qu'à l'aire de la surface projetée de la bulle dans le plan des plaques, S (figure 2.5). A partir de la grandeur mesurable S nous avons défini le diamètre équivalent $d = 2\sqrt{S/\pi}$ qui sera le paramètre lié à la taille de la bulle. Nous supposons que : (i) l'épaisseur h des films liquides est constante et vérifie $h \ll e$, (ii) la courbure dans l'épaisseur en périphérie de la bulle est constante et égale à $e/2$. Sous ces hypothèses on décompose le volume de la bulle en un volume d'épaisseur e et de surface égale à S amputée d'une bande périphérique de largeur $e/2$, et en un volume complémentaire dont la section est un demi-disque de rayon $e/2$. Dans ces conditions le volume de la bulle peut être estimé par :

$$\mathbf{V} \cong \left(\frac{\pi e^2}{8} p - \frac{\pi^2 e^3}{8} + \frac{\pi e^3}{6} \right) + \left(eS - e^2 \frac{p}{2} + \frac{\pi}{4} e^3 \right) \quad (2.3)$$

Les hypothèses (i) et (ii) seront discutées dans la suite. La première parenthèse correspond au volume occupé par la bulle pour $R - e/2 < r < R$, et l'autre au volume pour $0 < r < R - e/2$

(voir figure 2.5 (a)).

Cette bulle se déplace à la vitesse U entre deux plaques de dimensions l_x et l_y telles que $e \ll l_x, l_y$. La tension de surface air/eau est σ . Les paramètres physiques du problème sont donc au nombre de 7 : $\mu, \rho, \sigma, e, d, \alpha$ l'angle d'inclinaison de la cellule et g l'accélération de gravité. Les unités physiques étant au nombre de 3 (masse, longueur et temps), le problème dépend de 4 nombres sans dimension (théorème de Vaschy-Buckingham).

On choisira dans cette étude, le rapport entre l'épaisseur du canal et le diamètre équivalent de la bulle (2.4), le nombre d'Archimède (2.5) qui est un nombre de Reynolds construit à partir d'une vitesse gravitationnelle, et deux nombres de Bond (2.6 et 2.7). Lorsque la cellule est verticale ($\alpha = 0$), le problème présente une symétrie par rapport au plan médian des plaques, et seul le nombre de Bond défini par 2.6 à un sens. Il compare alors les effets de la gravité suivant l'axe Ox qui se confond avec la verticale, à ceux de la tension de surface. En revanche, une inclinaison des plaques crée une variation de pression suivant l'axe Oz (normal aux plan des plaques) tendant à rompre la symétrie de la bulle. Dans ce cas, c'est le nombre de Bond défini par la relation 2.7 qui va indiquer si les effets capillaires sont suffisants ou pas pour maintenir cette symétrie.

$$\frac{e}{d} \tag{2.4}$$

$$Ar = \frac{\rho(g \cos\alpha d)^{1/2} d}{\mu} \tag{2.5}$$

$$Bo = \frac{\rho g \cos\alpha d^2}{\sigma} \tag{2.6}$$

$$\tilde{Bo} = \frac{\rho g \sin\alpha d^2}{\sigma} \tag{2.7}$$

Dans la gamme d'inclinaison et de taille de bulles étudiées, $\tilde{Bo} \ll 1$, ce qui permet de supposer que la bulle possède un plan de symétrie parallèle aux plaques. Il faut préciser que dans le cas des plaques inclinées, l'épaisseur des deux films liquides (figure 2.5 (b)) n'est plus nécessairement la même. Nous supposons dans cette étude que l'écart entre les épaisseurs des deux films est faible. On se ramène alors au problème qui possède une symétrie suivant le plan médian des plaques et pour lequel la gravité vaut $g \cos\alpha$. Les paramètres g et α ne sont donc plus à prendre en compte séparément puisque ils n'interviennent que dans le terme de gravité réduite $g \cos\alpha$. Le problème ne dépend alors que de Ar , Bo et e/d .

2.2.2 Régime d'écoulement.

Nous allons écrire ici l'équation de quantité de mouvement dans le fluide situé dans la région périphérique ($r > R$) et discuter de l'importance relative des termes qui la composent. Pour cela, nous utiliserons d comme échelle de longueur dans le plan Oxy , e comme échelle de longueur suivant l'axe Oz et la vitesse moyenne de la bulle U comme échelle de vitesse. Celle-ci n'étant *a priori* pas connue, nous utiliserons la loi de vitesse expérimentale (présentée au chapitre 4), qui s'écrit : $U \cong 0.5\sqrt{g \cos\alpha d}$. L'écoulement dans le canal étant parallèle, la vitesse du fluide \vec{V} n'a que 2 composantes de vitesses dans le plan des plaques et dépend des 3 coordonnées spatiales x, y et z . Sous ces hypothèses, les équations de conservation de la quantité de mouvement et de conservation de la masse dans le volume $dx dy dz$ de coordonnées (x, y, z) s'écrivent :

$$\rho \frac{\partial \vec{V}}{\partial t} + \rho(\vec{V} \cdot \nabla) \vec{V} = -\vec{\nabla} P + \mu \left(\frac{\partial^2 \vec{V}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \vec{V}}{\partial y^2} \right) + \mu \frac{\partial^2 \vec{V}}{\partial z^2} \quad (2.8)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{V} = 0 \quad (2.9)$$

où $P = \tilde{P} + \rho g \cos \alpha x + \rho g \sin \alpha z$ avec \tilde{P} la pression dans le liquide. Le terme correspondant aux effets visqueux ($\mu \nabla^2 \vec{V}$) a été explicité dans l'équation 2.8 de manière à mettre en évidence des contraintes visqueuses associées aux gradients dans le plan (x, y) (avant dernier terme de droite) et celles associées aux gradients selon z (dernier terme de droite). Les ordres de grandeur des deux termes sont respectivement $\mu U/d^2$ et $\mu U/e^2$ (tableau 2.2). La comparaison entre les deux contributions visqueuses est donnée par le rapport $(e/d)^2$. Pour des diamètres de bulle proches de 3mm, ce rapport est déjà presque égal à 0.1. Ainsi le cisaillement causé par l'adhérence du fluide aux parois ($\mu \frac{\partial^2 \vec{V}}{\partial z^2}$) est l'effet visqueux dominant pour une majeure partie des écoulements étudiés.

expressions	$\rho(V \cdot \nabla)V$	$\mu \left(\frac{\partial^2 V}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 V}{\partial y^2} \right)$	$\mu \frac{\partial^2 V}{\partial z^2}$
ordre de grandeur	$\rho U^2/d$	$\mu U/d^2$	$\mu U/e^2$

TAB. 2.2: Ordre de grandeur du terme de transport de quantité de mouvement et de contraintes visqueuses

Le rapport entre les effets inertiels (correspondant au terme $\rho(\vec{V} \cdot \vec{\nabla})\vec{V}$) et les effets visqueux $\mu \left(\frac{\partial^2 \vec{V}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \vec{V}}{\partial y^2} \right)$ est donné par $Re = \rho U d / \nu$, qui est le nombre de Reynolds basé sur le diamètre équivalent. Lorsque ce sont les effets de $\mu \frac{\partial^2 \vec{V}}{\partial z^2}$ que l'on compare avec les effets inertiels, c'est la valeur du paramètre $Re (e/d)^2$ dont il faut discuter. En effet, même pour de grand nombres de Reynolds, il est possible de rendre les effets visqueux dominant en jouant sur l'écartement des plaques pour augmenter le cisaillement dans le fluide. Ainsi l'écoulement est dominé par les effets visqueux si $Re (e/d)^2 \ll 1$ ou par les effets inertiels si $Re (e/d)^2 \gg 1$.

Dans notre étude, le nombre de Reynolds est toujours supérieur à 10 ($10 < Re < 7450$) : les effets inertiels sont donc dominants devant les effets visqueux relatifs au plan Oxy. Le paramètre $Re (e/d)^2$ est quant à lui supérieur à 7 ($7 < Re (e/d)^2 < 113$), indiquant que même en présence d'un fort cisaillement lié au confinement du fluide entre les plaques, les effets inertiels jouent un rôle important.

Nous montrerons dans la suite (chapitre 3) que les vitesses du fluide mesurées expérimentalement sont des vitesses moyennées dans l'épaisseur ($-e/2 \leq z \leq e/2$). Nous expliciterons donc la vitesse moyenne de l'écoulement V_m dans les équations de conservation. Pour un profil de vitesse donné par $\vec{V} = 3/2 V_m (1 - 4z^2/e^2)$ correspondant à un écoulement de Poiseuille entre les plaques, l'intégration des équations 2.8 et 2.9 donne :

$$\rho \frac{\partial V_m}{\partial t} + \frac{6}{5} \rho (V_m \cdot \vec{\nabla}) V_m = -\vec{\nabla} P + \mu \left(\frac{\partial^2 V_m}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 V_m}{\partial y^2} \right) - \frac{12\mu}{e^2} V_m \quad (2.10)$$

$$\nabla \cdot V_m = 0 \quad (2.11)$$

Si le profil de vitesse selon z est autre, l'équation intégrée dans la section garde la même forme

mais le préfacteur du terme inertiel peut changer et le terme rendant compte du frottement peut être de forme différente.

Il est intéressant de signaler que dans le cas $Re(e/d)^2 < 1$ les équations précédentes se simplifient en :

$$\vec{\nabla}P = -\frac{12\mu}{e^2}\vec{V}_m \quad (2.12)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{V}_m = 0 \quad (2.13)$$

qui sont connues sous le nom d'équations de Hele-Shaw. Le dispositif permettant de générer des écoulements décrits par ces équations, appelé cellule de Hele-Shaw, est constitué lui aussi de 2 plaques très proches l'une de l'autre. Ces écoulements ont commencé par être utilisés pour visualiser l'écoulement de fluides autour d'un obstacle, puis ont servi à l'étude de la digitation visqueuse dont les premiers travaux furent ceux de Saffman et Taylor (1958). Même si la géométrie de notre dispositif est assimilable à celui d'une cellule de Hele-Shaw, les régimes que nous étudions sont (comme nous l'avons montré précédemment) différents du fait de la présence de fort effets inertiels.

2.2.3 Ecoulement dans les films.

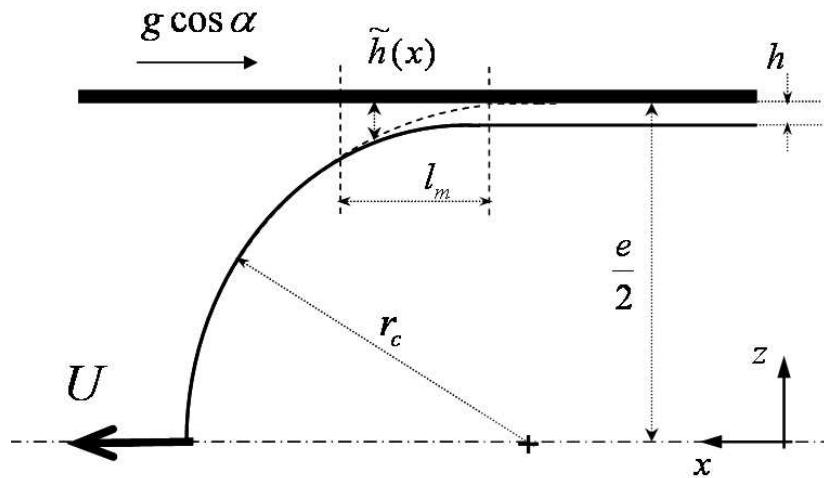


FIG. 2.6: Schéma de la bulle dans le plan Oxz .

Nous allons nous intéresser ici à l'écoulement dans le film liquide entre la bulle et les plaques. Nous supposons que l'épaisseur de chaque film h est constante à une distance $r < R - e/2 \forall \theta$ (figure 2.5 (b)). Sous cette hypothèse, la nature de l'écoulement dans le film va donc dépendre de la condition à l'interface. Si l'interface est contaminée et donc immobile, le fluide qui est à son contact ($z = e/2 - h$ figure 2.5) se déplacera à la vitesse de la bulle U . Comme l'adhérence au contact des plaques ($z = e/2$) impose une vitesse nulle, un écoulement de Couette va se développer dans le film. Si l'interface est mobile, la viscosité de l'eau étant 100 fois plus grande que celle de l'air, le fluide va glisser sans résistance à l'interface et la vitesse dans le film sera nulle. Ces deux cas de figures seront à prendre en considération lors de l'étude de la loi de vitesse d'ascension de la bulle. En effet, lorsque l'interface est immobile, la contrainte de cisaillement du fluide sur la bulle intervient dans le bilan des forces, alors que s'il y a glissement à l'interface le

fluide n'exerce pas de contrainte sur la bulle. Ces deux cas de figure seront également considérés lors de la discussion sur le transfert de matière qui va suivre.

Les lois prédisant l'épaisseur de films minces en fonction du nombre capillaire sont données dans plusieurs études, que ce soit par exemple pour des bulles se déplaçant dans des tubes fins (Bretherton 1960, Aussillous et Quéré 2000), ou des écoulements diphasiques dans des géométries similaires à celle de notre étude (Park et Homsy 1984). Comme nous le verrons plus tard, l'interface des bulles se déplaçant dans la cellule 2D est déformée, et l'écoulement est souvent instationnaire. Il ne s'agit donc pas de prédire de manière précise l'épaisseur des films liquides, car ceci nécessiterait une connaissance à chaque instant de l'écoulement proche de l'interface. Par un raisonnement sur la courbure moyenne des interfaces et sur les contraintes dans le fluide à leur proximité, nous donnerons l'ordre de grandeur de l'épaisseur h de ce film liquide en reprenant les différentes étapes d'un raisonnement présenté dans le livre de De Gennes, Brochard-Wyart et Quéré (2002).

Dans notre géométrie, l'écart entre plaques e est inférieur à la longueur capillaire ($\sqrt{\sigma/\rho g} \cong 2.5\text{mm}$) qui est la longueur au dessous de laquelle les effets capillaires dominent ceux de la gravité. Par conséquent l'interface du bord de la bulle a un rayon de courbure constant valant $r_c \cong e/2 - h$ dans le plan Oxz et un rayon de courbure $d/2$ dans le plan Oxy . Dans le plan Oxz cette interface de courbure constante se raccorde à celle qui se trouve entre la bulle et le film dont la courbure est supposée nulle (car h est supposé constant). Ce raccord s'effectue dans une région que l'on appellera ménisque dynamique, d'épaisseur $\tilde{h}(x)$ et de longueur l_m (figure 2.6). Nous supposons que l'écoulement est quasi parallèle dans cette région ($dh/dx \ll 1$).

La pression dans la bulle est supposée constante et uniforme. La pression dans le film est constante et égale à la pression de la bulle (interface plane). La pression dans le liquide à l'entrée du ménisque dynamique peut être estimée par la loi de Laplace. Ainsi la pression du ménisque dynamique subit une variation d'amplitude $\sigma(1/r_c + 2/d)$ liée au changement de courbure de l'interface. Le gradient de pression correspondant va être compensé par les effets visqueux et inertiels de l'écoulement qu'il induit. En prenant dans la zone du ménisque dynamique h comme échelle de longueur suivant l'axe Oz et l_m comme échelle de longueur suivant l'axe Ox , l'équilibre dans le ménisque dynamique s'écrit :

$$\mu \frac{U}{h^2} + \frac{1}{l_m} \rho U^2 \approx \frac{1}{l_m} \sigma \left(\frac{\pi/4}{r_c} + \frac{2}{d} \right) \quad (2.14)$$

La comparaison entre les effets inertiels et les effets capillaires est donnée par le rapport entre les termes $\rho U^2/l_m$ et $\sigma/l_m(1/r_c + 2/d)$ de l'équation précédente qui est un nombre de Weber. Ce nombre étant dans notre étude inférieur à 0.1 nous négligerons les effets inertiels. De plus les bulles sont telles que $d \gg r_c$, ce qui simplifie également l'équation 2.14 :

$$\mu \frac{U}{h^2} \approx \frac{1}{l_m} \frac{\sigma}{r_c} \quad (2.15)$$

D'autre part, le ménisque dynamique est supposé suffisamment plat pour que sa courbure se confonde avec la dérivée seconde de son profil $\tilde{h}(x)$. Cette courbure s'écrit donc : h/l_m^2 . Dans la zone de raccordement du ménisque on écrit donc :

$$\frac{h}{l_m^2} \approx \frac{1}{r_c} \quad (2.16)$$

La combinaison des équations 2.15 et 2.16 donne $(l_m/r_c)^3 \approx Ca$. En remplaçant r_c par $e/2 - h$

dans ces deux équations (2.15 et 2.16), on obtient la loi d'échelle du rapport entre l'épaisseur du film et celle du canal en fonction du nombre capillaire Ca ($Ca = \mu U/\sigma$) :

$$\frac{h}{e} \approx \frac{Ca^{2/3}}{1 + Ca^{2/3}} \quad (2.17)$$

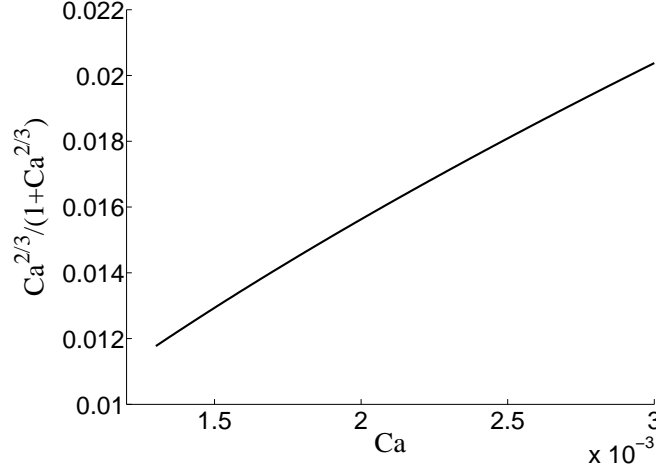


FIG. 2.7: Tracé de la fonction $Ca^{2/3}/(1 + Ca^{2/3})$ pour une variation de Ca correspondant à des vitesses comprises entre 0.1 et 0.2m/s.

L'équation 2.15 donnant l'échelle de longueur de l_m , l'hypothèse d'un profil quasi parallèle dans le ménisque dynamique équivaut à ce que $Ca^{1/3} \ll 1$. Pour notre gamme de vitesses de bulles, le nombre Capillaire est compris entre 0.0014 et 0.003, ce qui valide l'hypothèse précédente ($0.11 < Ca^{1/3} < 0.14$) et donne par la relation 2.17 une épaisseur du film liquide de l'ordre de la dizaine de micromètres, variant du simple au double dans la gamme de vitesse des bulles étudiées (figure 2.7).

Cette faible épaisseur du film permet de comprendre pourquoi la bulle se déforme dans le plan des plaques. En faisant l'hypothèse raisonnable d'une pression constante à l'intérieur de la bulle, la différence de pression entre deux points de l'interface s'écrit :

$$P(\theta_1) - P(\theta_2) = \sigma \left(\frac{1}{R(\theta_2)} - \frac{1}{R(\theta_1)} \right) + \sigma \left(\frac{1}{r_c(\theta_2)} - \frac{1}{r_c(\theta_1)} \right) \quad (2.18)$$

où $1/R$ et $1/r_c$ sont les courbures principales associées respectivement aux plans parallèle et perpendiculaire aux plaques. Les termes en $1/r_c$ sont prépondérants devant les termes en $1/R$. Puisque nous avons montré que $r_c = e/2 - h$ avec $h \ll e$, alors :

$$\sigma \left(\frac{1}{r_c(\theta_2)} - \frac{1}{r_c(\theta_1)} \right) \cong \frac{4\sigma}{e} \frac{(h(\theta_2) - h(\theta_1))}{e} \quad (2.19)$$

L'ordre de grandeur de h étant la dizaine de micromètres, la variation de pression liée à un changement d'épaisseur du film liquide reste inférieure à environ 3Pa. Pour des bulles de 3mm par exemple, la variation de pression entre le nez et l'arrière de la bulle lié à la gravité est déjà 10 fois plus importante. Ceci montre que seule la déformation de l'interface dans le plan des plaques peut compenser les variations de pression liés à l'écoulement et à la gravité.

2.2.4 Transfert de masse entre la bulle et le liquide.

Surfaces d'échange

Nous avons vu que l'on peut distinguer deux régions d'écoulement autour de la bulle : celle du film liquide et celle en périphérie de la bulle pouvant être décrite de manière bidimensionnelle dans le plan Oxy . Nous distinguerons donc deux surfaces d'échange : la surface S_f en contact avec le film liquide et la surface S_p en contact avec l'écoulement bidimensionnel (figure 2.8). Dans cette étude, les grandeurs mesurables permettant de calculer l'aire de ces deux surfaces, sont l'aire de la surface projetée de la bulle dans le plan des plaques S et la longueur de son périmètre p (figure 2.5). Comme nous venons de montrer que : i) $h \ll e$, et ii) qu'il est raisonnable de considérer que la périphérie de la bulle est un objet appuyé sur le périmètre et dont la section est un demi-disque de rayon $e/2$, les valeurs de l'aire ces deux surfaces sont données par :

$$S_f = S - \frac{e}{2}p + \pi \frac{e^2}{4} \quad (2.20)$$

$$S_p = \pi \frac{e}{2}p - \pi^2 \frac{e^2}{2} + \pi e^2 \quad (2.21)$$

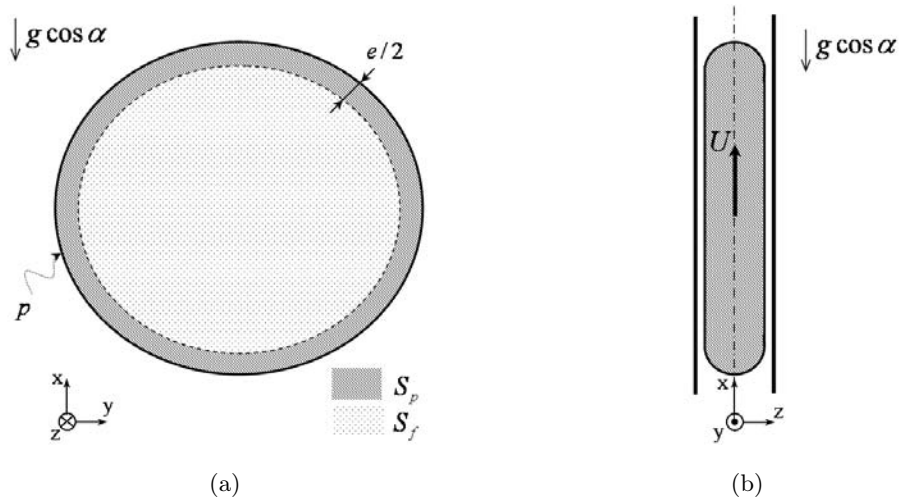


FIG. 2.8: Surfaces de transfert vers le film S_f et vers l'écoulement périphérique S_p (a) vue de face (b) vue de profil.

A chacune des surfaces d'échange est associée une densité de flux : φ_f de la bulle vers le film et φ_p vers l'écoulement périphérique. Le flux total de matière ϕ s'écrit alors :

$$\phi = 2\varphi_f S_f + \varphi_p S_p \quad (2.22)$$

A partir des mesures expérimentales de l'aire de la surface S et de la longueur de son périmètre P , nous avons pu tracer le rapport S_f/S_p en fonction de d/e (figure 2.9). Rappelons que d est le diamètre équivalent de la bulle défini par $S = \pi d^2/4$. Pour une même aire de la surface S , les relations 2.20 et 2.21 montrent que le rapport entre S_f et S_p change lorsque la longueur du périmètre P varie. Nous avons comparé ce rapport calculé à partir du périmètre mesuré expérimentalement avec un rapport calculé en considérant que la surface projetée des bulles est

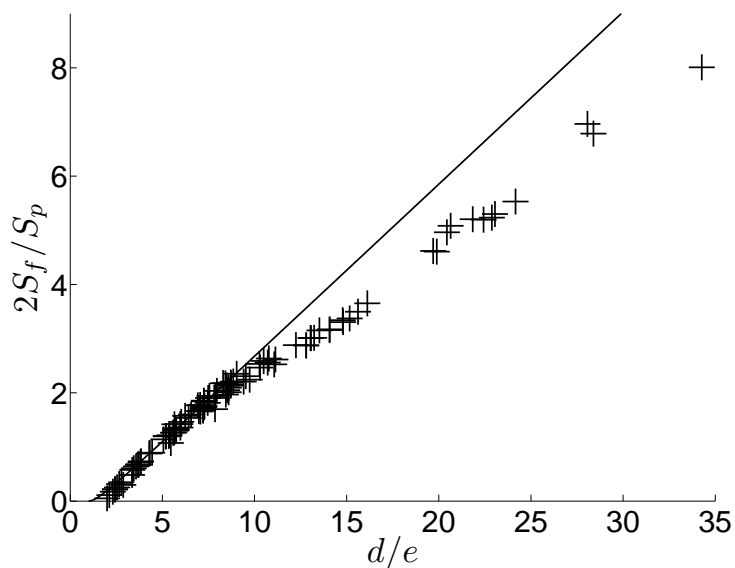


FIG. 2.9: Rapport des aires des surfaces d'échange + points expérimentaux — calcul pour une surface projetée S assimilée à disque de périmètre πd .

un disque de diamètre d et de périmètre πd . La figure 2.9 montre que pour les bulles dont le diamètre est inférieur à 8mm, il est raisonnable de considérer un contour circulaire. Les bulles dans cette gamme de diamètre ont une forme d'ellipsoïde dont le rapport λ entre la longueur du grand axe et celle du petit axe varie entre 1 et 2. Si l'on compare le périmètre d'une ellipse et celui du cercle de même surface en fonction de λ (figure 2.10), on s'aperçoit que pour $\lambda < 2$, le périmètre du cercle est très proche de celui de l'ellipse. Ceci explique alors pourquoi on peut calculer avec une bonne approximation le rapport des surfaces, lorsque l'on ne tient pas compte de la forme. Pour des diamètres supérieurs à 8mm on observe sur la figure 2.9 un changement de pente qui s'explique par une transition de forme entre l'ellipse et la calotte. Au-delà, l'évolution est linéaire puisque les bulles conservent toutes une forme de calotte qui va évoluer de manière homothétique.

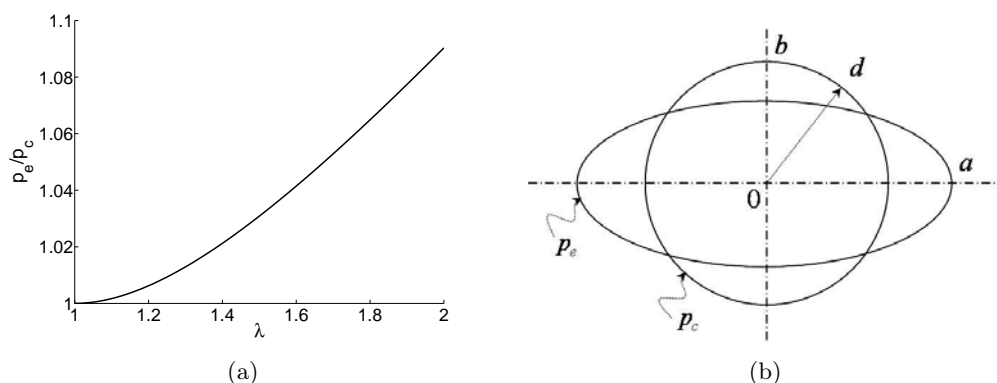


FIG. 2.10: (a) Rapport du périmètre de l'ellipse P_e avec celui du cercle P_c en fonction de $\lambda = a/b$ pour une même surface ($S = \pi d^2/4 = \pi ab$) (b) Schéma.

Densité de flux

Nous allons ici estimer l'ordre de grandeur des densités de flux dans le cas d'un gaz (O_2) dont la diffusivité D est très faible devant la viscosité cinématique μ/ρ du liquide (eau), c'est à dire pour les grands nombres de Schmidt : $Sc = \mu/\rho D$ ($Sc \cong 500$).

On commence par examiner le transfert de masse dans les films. Pour plus de commodité nous travaillerons dans le repère lié à la bulle (figure 2.11).

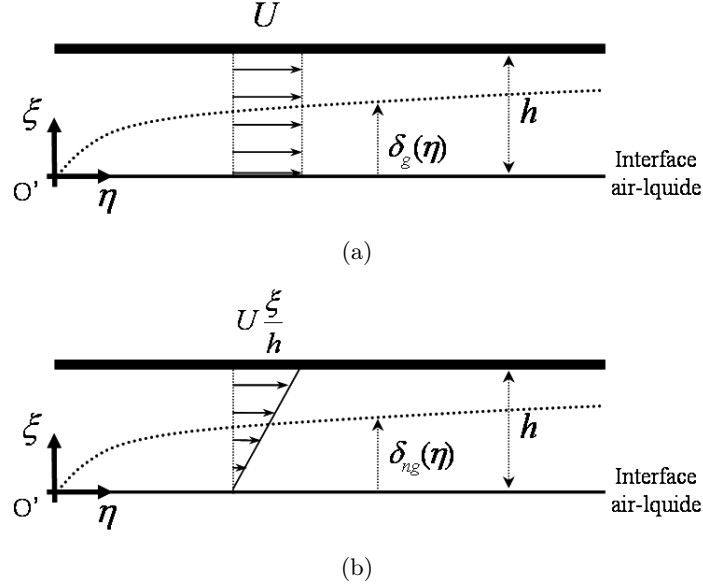


FIG. 2.11: Schéma de la couche limite massique et du profil de vitesse dans les films liquide entre la bulle et les plaques. (a) Cas du glissement à l'interface, (b) cas du non-glissement à l'interface

Dans le film liquide, l'équilibre local entre la diffusion du gaz et le transport par l'écoulement stationnaire et parallèle $u(x, z)$ s'écrit :

$$u \frac{\partial C}{\partial \eta} = -D \frac{\partial^2 C}{\partial \xi^2} \quad (2.23)$$

avec C , la concentration d'oxygène dissous dans le film. Elle est égale à la concentration à saturation C_s pour les points situés sur l'interface de la bulle de coordonnées $(\eta, \xi = 0)$ (figure 2.11) et considérée comme nulle en limite de couche limite massique. L'égalité des ordres de grandeur des termes de l'équation 2.23 lorsque l'on se place en limite de la couche limite massique donne :

$$u(\xi = \delta) \frac{\Delta C}{\eta} \approx D \frac{\Delta C}{\delta^2} \quad (2.24)$$

où $\Delta C = C_s - C(\xi = \delta)$. Quand l'interface est mobile (condition de glissement) la vitesse en frontière de la couche limite massique d'épaisseur δ_g vaut U (figure 2.11 (a)). Ainsi, pour une bulle de diamètre d , l'ordre de grandeur de δ_g en fonction du nombre de Peclet ($Pe = Ud/D$) issu de 2.24 est donné par :

$$\frac{\delta_g}{d} \approx Pe^{-1/2} \quad (2.25)$$

Lorsqu'il y a non glissement à l'interface, la vitesse vaut $U\delta_{ng}/h$ en frontière de la couche limite massique d'épaisseur δ_{ng} (figure 2.11 (b)) et son ordre de grandeur est dans ce cas :

$$\frac{\delta_{ng}}{d} \approx Pe^{-1/3} \left(\frac{h}{d}\right)^{-1/3} \quad (2.26)$$

L'épaisseur du film intervient ici dans l'expression de δ_{ng} puisque c'est ce paramètre qui fixe la pente du profil de vitesse.

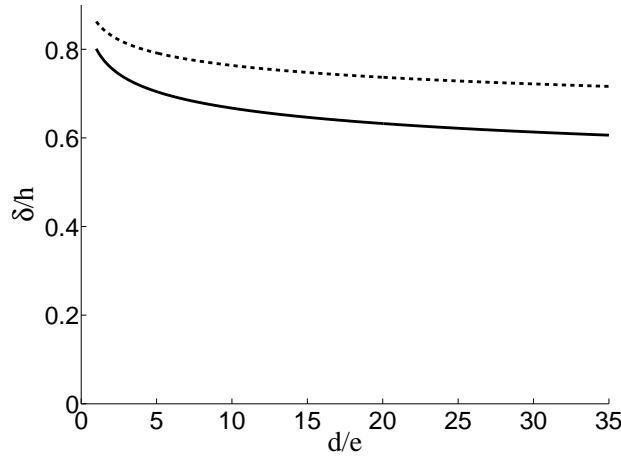


FIG. 2.12: Rapport entre l'épaisseur de couche limite massique et celle du film liquide en fonction du diamètre des bulles. — condition de glissement à l'interface - - condition de non glissement à l'interface.

La figure 2.12 compare l'épaisseur de la couche limite massique avec l'épaisseur du film lorsque le diamètre des bulles augmente. La loi de vitesse expérimentale utilisée pour calculer le nombre de Peclet est $U = 0.5\sqrt{g\cos\alpha d}$ et h sera estimé par la relation $eCa^{2/3}/(1 + Ca^{2/3})$. Que ce soit pour le cas de l'interface mobile ou immobile, δ est de l'ordre de la dizaine de micromètres. Il se peut donc qu'au delà d'une certaine taille de bulle, la couche limite massique atteigne l'épaisseur du film, limitant ainsi le transfert à l'interface.

La densité de flux à l'interface φ est définie par : $\varphi = D\partial C/\partial n$. On peut alors introduire le coefficient d'échange k défini par :

$$\varphi = k\Delta C \quad (2.27)$$

dont l'ordre de grandeur est :

$$k \approx \frac{D}{\delta} \quad (2.28)$$

Par conséquent, les coefficients d'échange dans le film, pour une condition de glissement k_g et de non glissement k_{ng} s'expriment de la manière suivante :

$$k_g \approx \frac{D}{d} Pe^{1/2} \quad (2.29)$$

$$k_{ng} \approx \frac{D}{d} \left(\frac{h}{d} \right)^{1/3} Pe^{1/3} \quad (2.30)$$

Pour obtenir l'ordre de grandeur des coefficients d'échange au niveau de la surface S_p nous utiliserons, à défaut d'une relation plus adaptée, les relations données dans la littérature pour une bulle sphérique (R. Clift, J.R. Grace et M.E. Weber, Bubbles, drops and particles, Ed Dover). Les coefficients pour le cas du glissement k_{pg} et du non glissement k_{png} s'écrivent :

$$k_{pg} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{D}{d} \left(1 - \frac{2.89}{\sqrt{Re}} \right)^{1/2} Pe^{1/2} \quad (2.31)$$

$$k_{png} = \frac{D}{d} \left(1 + 0.724 Re^{0.48} Sc^{1/3} \right) \quad (2.32)$$

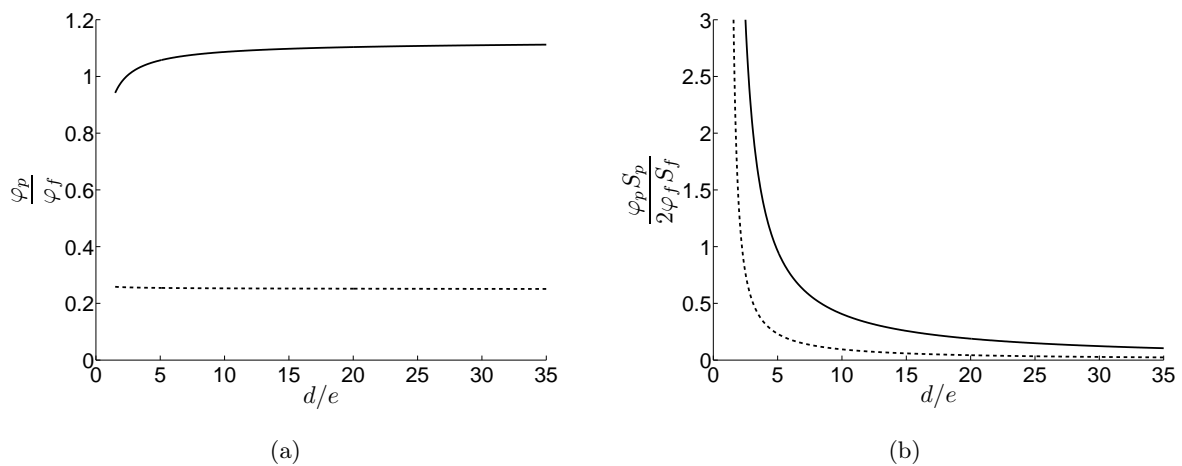


FIG. 2.13: (a) Rapport des densités de flux (b) Rapport des flux. (— condition de glissement - - condition de non glissement)

Ces coefficients d'échange nous permettent de comparer la densité de flux vers l'écoulement bidimensionnel avec celui vers le film liquide (figure 2.13 (a)). Ces densités de flux sont du même ordre de grandeur, et leur rapport dépend peu du diamètre de la bulle. Dans le cas où il y a non glissement à l'interface, la densité de flux vers le film est quasi-égale à celle vers l'écoulement périphérique, alors que s'il n'y a pas de glissement elle lui est supérieure.

Si l'on compare maintenant les flux totaux de transfert vers chacune des deux régions (figure (b)), on s'aperçoit que plus le diamètre des bulles augmente, plus le flux transféré vers le film ($\varphi_f S_f$) devient grand devant celui vers l'écoulement périphérique ($\varphi_p S_p$). Comme le rapport des densités de flux varie peu avec le diamètre des bulles, l'évolution de leur rapport va dépendre de celui des aires des surfaces S_f et S_p . Puisque $S_p/2S_f$ décroît avec d , le rapport des flux décroît lui aussi.

2.2.5 Synthèse.

Notre dispositif expérimental est une cellule bidimensionnelle d'épaisseur e permettant d'étudier l'ascension de bulles d'air de diamètre équivalent $d > e$ dans de l'eau distillée. Les propriétés physico-chimiques du fluide étant fixées, et les deux films étant supposés symétriques pour toutes les bulles, les paramètres adimensionnels de notre étude sont le nombre d'Archimède, le nombre de Bond ainsi que le rapport e/d .

La présence des plaques entre lesquelles le liquide se déplace impose un cisaillement du fluide qui est d'autant plus important que l'épaisseur e est faible. L'évaluation de l'ordre de grandeur des effets visqueux et inertiels dans le fluide permet de montrer, d'une part que le cisaillement dans l'épaisseur domine les termes de viscosité élongationnels dans le plan de la cellule, et d'autre part que le rapport entre les effets inertiels et visqueux dépend du paramètre $Re(e/d)^2$. Dans notre gamme de paramètres, les nombres de Reynolds des bulles sont tels que $Re(e/d)^2 > 10$. Ainsi, l'écoulement moyen bidimensionnel autour des bulles ($r > R$ figure 2.5) présente des effets inertiels importants.

Lorsque la bulle se déplace dans la cellule, elle est séparée des plaques par un fin film liquide d'épaisseur h supposée constante. La nature de l'écoulement dans le film va dépendre de la condition à l'interface entre la bulle et le liquide. S'il y a glissement, le fluide piégé dans le film aura une vitesse nulle. A l'inverse, si le fluide adhère à l'interface, un écoulement de Couette va s'y développer. L'écoulement bidimensionnel en périphérie de la bulle va se raccorder à celui du film dans une zone appelée ménisque dynamique. Par un raisonnement sur les ordres de grandeur des contraintes dans cette zone on peut estimer l'épaisseur des films h à une vingtaine de micromètres au maximum. Cet ordre de grandeur de h limite toute variation de courbure dans le film, et favorise la déformation de la bulle dans le plan des plaques sous l'action de variations du champ de pression extérieur.

Par ailleurs, nous avons estimé le transfert de masse de la bulle vers le liquide en distinguant la contribution des flux vers les films liquides plans qui séparent le gaz des parois et celle vers l'écoulement bidimensionnel. Les contributions relatives dépendent de la taille de la bulle et de la nature mobile ou immobile de l'interface gaz-liquide. Les densités surfaciques de flux de chaque région sont du même ordre de grandeur. L'aire d'échange des films augmentant plus vite avec la taille de la bulle que celle de la périphérie, la contribution des films au flux total devient prépondérante pour les plus grandes bulles. On retiendra cependant qu'il est risqué de négliger *a priori* l'une ou l'autre des contributions.

Chapitre 3

Méthodes de mesure

3.1 Ombroscopie

Nous allons présenter ici la technique d'ombroscopie utilisée pour étudier la dynamique de la bulle en ascension.

3.1.1 Dispositif expérimental.

Il s'agit ici de suivre le contour de la bulle dans le temps lors de son ascension. Pour cela on a disposé un panneau lumineux (de marque Nanolight) à l'arrière de la cellule parallèlement aux plaques (figures 3.1 (a) et (b)). Ce panneau (de dimension 20cmx20cm) est constitué de diodes placées à sa périphérie, dont la lumière est guidée de manière à produire un éclairage uniforme en espace et en temps, préférentiellement orienté dans la direction normale au support. Une caméra rapide (Photron APX, 1280x1024) munie d'un objectif de 85mm de focale est disposée de façon à ce que l'axe du système optique soit normal au plan des plaques. Le bras soutenant la caméra est fixé aux machoires de maintien des plaques, permettant ainsi de conserver les réglages optiques quelle que soit l'inclinaison de la cellule (figure 3.1 (b)). Le champ d'observation est placé loin de la zone d'injection, dans une région où l'épaisseur entre les plaques est de $1 \pm 0.05\text{mm}$ (cf chapitre 2). Pour la calibration des longueurs nous avons utilisé une mire que l'on peut insérer dans l'espace entre les plaques. Une première taille de champ de 4.3cmx3.4cm permettant d'avoir une définition de $33.5\mu\text{m}$ par pixel a été utilisée pour étudier les bulles de diamètre compris entre 1mm et 5mm environ. Lorsque les bulles ont un mouvement oscillant, nous avons utilisé un champ plus large de 12.8cmx10.2cm afin d'observer au moins une ou deux longueurs d'onde du mouvement. On a dans ce cas une définition de $100\mu\text{m}$ par pixel.

3.1.2 Analyse d'image.

Chaque séquence correspondant au passage d'une bulle dans le champ est traitée avec des programmes développés avec le logiciel Matlab. Afin d'enlever d'éventuels objets ou taches fixes présents dans le champ d'observation, une image de fond est retirée sur chaque image de la séquence. Le contour de la bulle est ensuite détecté par seuillage des niveaux de gris.

La figure 3.2 (a) est une illustration de l'image d'une bulle à laquelle on a enlevé une image de fond. On voit clairement se détacher une zone plus claire d'environ 0.6mm (figure 3.2 (b)) correspondant à la périphérie de la bulle. En effet, la surface de la bulle en contact avec les films liquide étant plane, seul les rayons lumineux passant par le bord de la bulle (de courbure non nulle) sont déviés. Par conséquent la position de l'extrémité de la bulle est indiquée par le

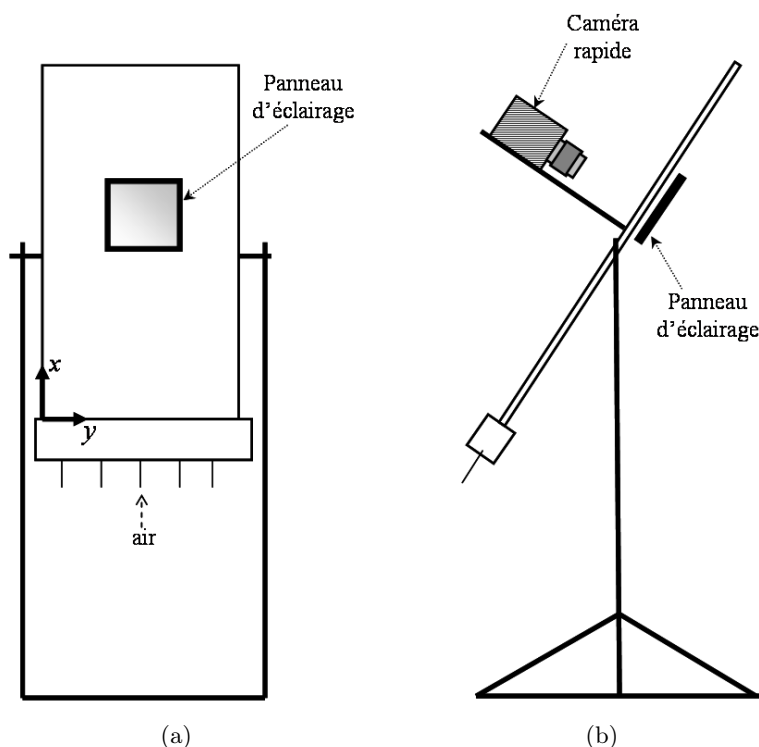


FIG. 3.1: Schéma du dispositif d'acquisition d'images par ombroscopie (a) vue de face (b) vue de profil.

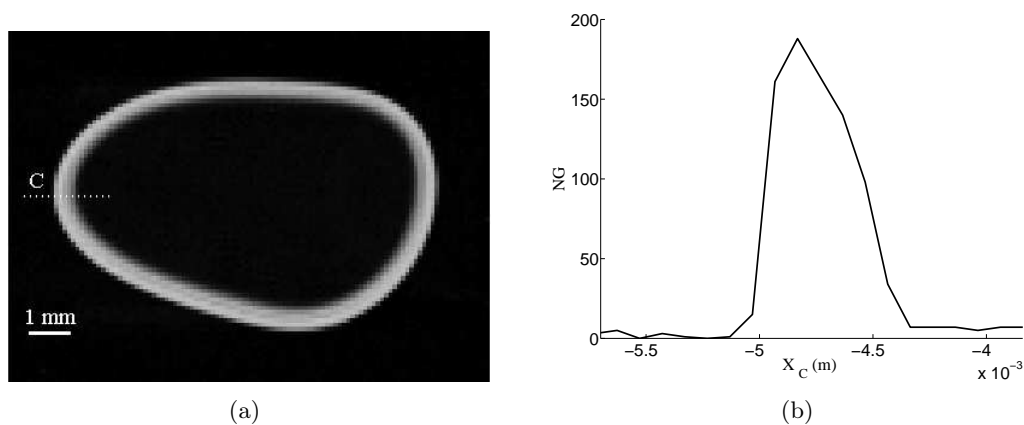


FIG. 3.2: (a) Image d'une bulle à laquelle on a soustrait une image de fond (b) profil de niveau de gris le long de la ligne C (pointillés).

front montant le plus raide du profil de niveau de gris (figure 3.2 (b))). Pour les acquisitions réalisées avec le grand champ d'observation, la périphérie de la bulle est détectée avec une précision d'environ 0.2mm pour des diamètres de bulle allant de 5 à 20mm. Les erreurs relatives sur les valeurs de l'aire de la surface S et sur la longueur du périmètre P sont donc inférieures respectivement à 8 et 4%. Pour le petit champ, la précision est de 0.07mm pour les bulles de diamètre inférieur à 5mm. Comme les bulles les plus petites font environ 1mm de diamètre,

l'erreur relative est donc ici inférieure à 7%.

3.2 Vélométrie par Image de Particules

Une solution permettant de mettre en place une mesure PIV (Particle Image Velocimetry) dans la cellule pourrait consister à générer une nappe laser entre les plaques qui soit parallèle à celles-ci, afin d'obtenir le champ de vitesse dans le plan de la nappe. Pour pouvoir réaliser des mesures précises, il faudrait alors connaître la position de la nappe dans l'interstice entre les plaques, s'assurer qu'elle est parallèle au plan des plaques et pouvoir mesurer son épaisseur. On peut noter qu'avec une telle méthode d'éclairage la mesure dans l'ombre portée d'une bulle serait impossible. La mise en place d'une telle méthodologie serait lourde et reste de toutes façons très difficile en raison de l'absence d'accès optiques sur les bords de la cellule (depuis l'axe optique y).

La solution que nous avons retenue est différente et permet de s'affranchir de ces contraintes puisqu'elle consiste à éclairer la cellule 2D en volume. Dans ce cas, à cause du gradient de vitesse dans l'épaisseur, les vitesses des traceurs varient de zéro à la vitesse maximum du liquide en fonction de la distance aux parois. Dans de telles configurations confinées, il est possible de ne prendre en compte que la lumière de traceurs situés à une distance donnée des plaques, en utilisant un système optique ayant une profondeur de champs suffisamment petite. Mais cette méthode limite fortement la taille du champ d'observation. Nous avons donc décidé de ne pas restreindre la taille de la fenêtre d'investigation et de travailler avec une profondeur de champ plus grande que l'écart entre les plaques. Dans ce cas, on enregistre la contribution lumineuse de tous les traceurs, quel que soit leur éloignement des parois.

Après avoir décrit de manière détaillée la technique PIV utilisée, il nous faudra donc préciser le sens de notre mesure de vitesse.

3.2.1 Description du système PIV.

Afin d'étudier le champ de vitesse autour des bulles, nous avons adapté la technique PIV à notre cellule bidimensionnelle. On présente ici le montage qui a été utilisé avec la cellule verticale. Un laser pulsé Quantel d'une puissance de 2x200mJ est disposé de manière à ce que le faisceau lumineux qu'il émet (à une longueur d'onde de 532nm) soit horizontal (figure 3.3 (a)). Une lentille sphérique permet de réaliser à partir du faisceau un cône de lumière qui éclaire tout le fluide situé entre les plaques de verre. Le laser est tourné suivant l'axe vertical afin de ne pas envoyer la lumière directement sur la caméra dont l'axe optique est perpendiculaire au plan des plaques (figure 3.3 (b)). La caméra est de type sensicam PCO 1280x1024 *pixel*². La région d'investigation est située ($56.6 \leq x \leq 64cm$, $24.1 \leq y \leq 30cm$). Le fluide estensemencé de traceurs qui sont des particules de PMMA de taille 1-20 μm remplies de Rhodamine B encapsulée. Grâce à un filtre passe-haut fixé sur l'objectif de la caméra (85mm de focale), seule la lumière de longueur d'onde supérieure à 580nm émise par fluorescence par les traceurs est enregistrée. Comme nous venons de l'indiquer, la profondeur de champ du système est supérieure à l'épaisseur entre les plaques, et par conséquent, les contributions de tous les traceurs occupant le volume éclairé sont prises en compte.

La vitesse de sédimentation des traceurs a été estimée par mesure PIV en filmant le liquide au repos, et en choisissant un intervalle de temps entre chaque tir suffisamment important pour capturer le déplacement des particules. On obtient une vitesse de sédimentation $V_s \cong 30\mu m/s$ bien plus faible que la gamme de vitesse étudiée (0.001–0.2m/s), nous garantissant que les particules de Rhodamine sont de bons traceurs pour notre étude.

Le temps entre les tirs des deux cavités laser est choisi de manière à ce que le déplacement des particules soit inférieur au quart de la maille de calcul PIV, ce qui assure une optimisation de la mesure de vitesse. Une taille caractéristique des fenêtres d'observation est de $5.92\text{cm} \times 7.4\text{cm}$ ce qui donne une définition de $57.8\mu\text{m}$ par pixel.

Le champ des déplacements est calculé au moyen de l'algorithme de calcul PIV 2D2C (2 dimensions, 2 composantes) nommé PIVIS développé au service Signaux et Images du Laboratoire (Levordier, 1999, Maurel, 2000, Lecordier, Demare, Vervisch, Réveillon et M Trinité 2001). La bonne qualité des images enregistrées permet d'appliquer l'algorithme sur ces images sans avoir à appliquer de traitement préliminaire d'amélioration des images par soustraction d'une image de fond. Le calcul PIV est réalisé en deux étapes classiques. La première étape est une intercorrélation entre des mailles de taille $32 \times 32 \text{pixel}^2$ en coïncidence sur les deux images. La deuxième étape fait appel à une interpolation d'image sous-pixel (Lecordier, 2001) et le calcul est effectué sur des mailles de $8 \times 8 \text{pixel}^2$ avec un recouvrement de 0,5. La précision de l'algorithme de calcul des déplacements est réputée de l'ordre de $0,1 \text{pixel}$. Nous effectuons ensuite un post-traitement qui consiste à détecter et à éliminer les vecteurs faux. Dans cette étape les bons rapports signal sur bruit de nos mesures ont permis de s'affranchir des vecteurs faux en utilisant un simple seuil.

Quand une bulle se trouve dans le champ de calcul PIV, les réflexions sur son interface rendent le calcul du champ de vitesse impossible dans son voisinage proche par une méthode d'intercorrélation ordinaire (voir figure 3.4). Dans ce travail nous avons choisi d'éliminer les vitesses calculées à une distance inférieure à celle associée à 2 mailles PIV de l'interface.

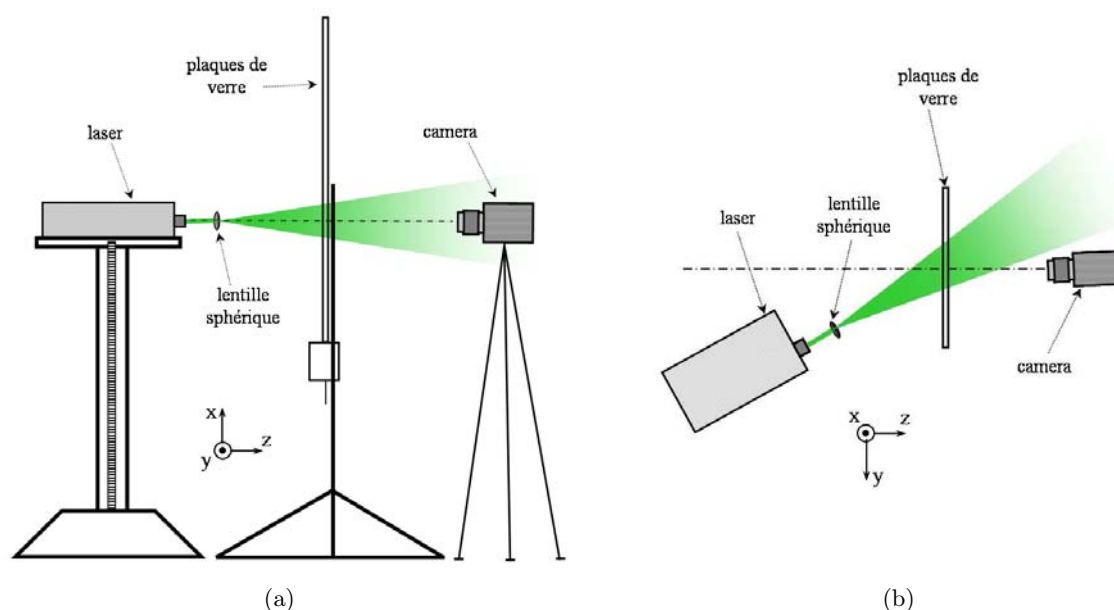


FIG. 3.3: Schéma du dispositif PIV (a) vue de profil (b) vue de dessus.

3.2.2 Etalonnage des mesures PIV

Une procédure d'étalonnage a été réalisée pour déterminer la signification de la vitesse déterminée par PIV. Elle consiste à vidanger la cellule verticale afin de générer un écoulement uniforme quasi-stationnaire, dont la vitesse sera comparée à celle obtenue par la mesure PIV. Des images acquises à deux instants lors d'une vidange (figure 3.5), montrent que la surface libre

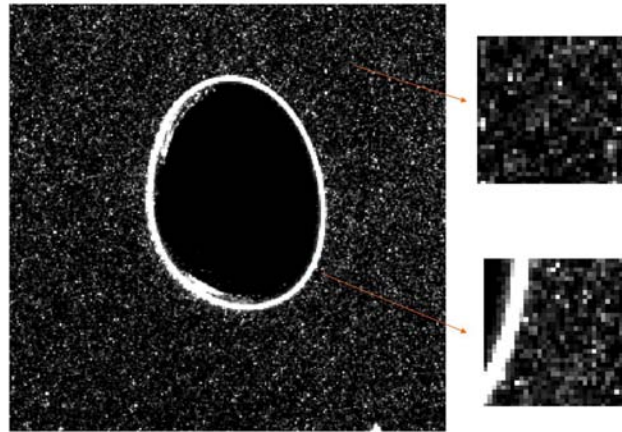


FIG. 3.4: Image pour l'analyse PIV en présence d'une bulle. ($1.55 \times 1.59 \text{ cm}$ avec $57.8 \mu\text{m}/\text{pix}$. Les zooms correspondent à une maille de calcul ($32 \times 32 \text{ pixels}$) : près et loin de l'interface

est clairement visible dans le champ de la caméra. La détection de sa position au cours du temps par analyse d'image (à intervalles réguliers, fixés par la fréquence du laser), permet de calculer sa vitesse verticale $v(y)$. On calcule alors la vitesse $\langle v \rangle$ moyennée sur l'ensemble des vitesses prélevées le long de l'interface. Les faibles variations de v liées à une mouillabilité non uniforme des plaques sont estimées grâce à l'écart-type $\langle v'^2 \rangle^{1/2}$. Les mêmes images utilisées pour mesurer v servent à calculer le champ de vitesse v_{piv} de l'écoulement sous la surface libre. Son écart type $\langle v_{piv}'^2 \rangle^{1/2}$ ainsi que sa moyenne $\langle v_{piv} \rangle$ sont calculés sur l'ensemble du champ de déplacement du liquide.

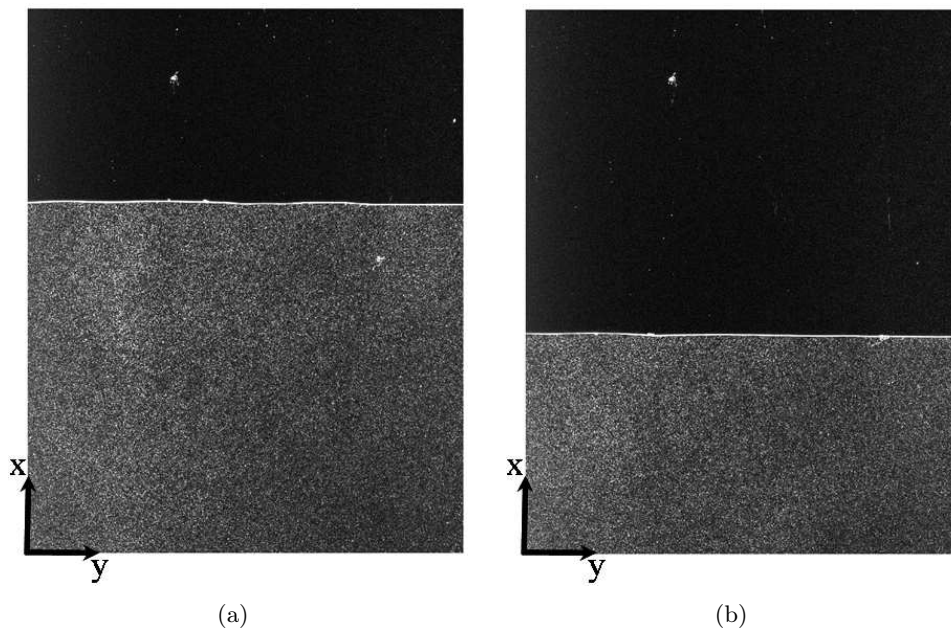


FIG. 3.5: Surface libre dans le champ de la caméra (de taille $58.9 \text{ mm} \times 73.6 \text{ mm}$) lors d'une vidange de la cellule (a) image à l'instant t_1 (b) image à l'instant t_2 .

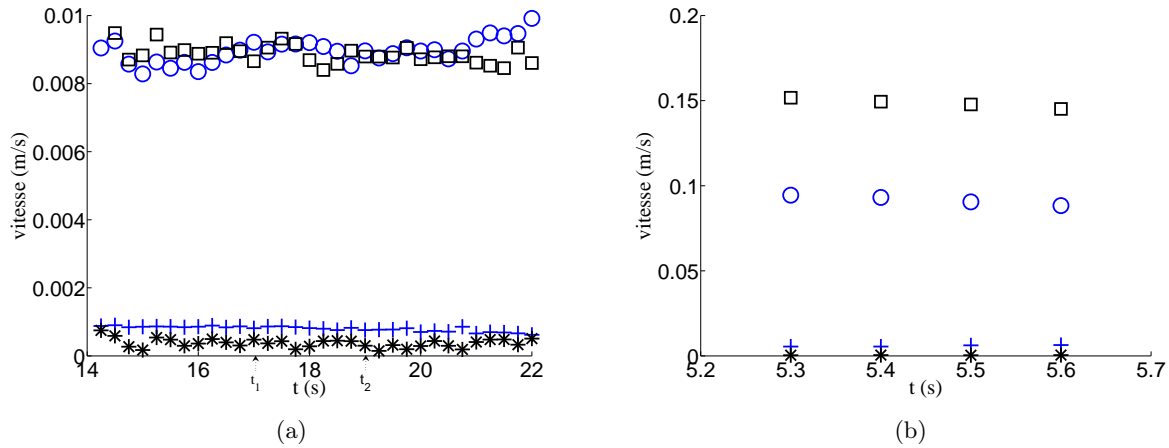


FIG. 3.6: Evolution temporelle de la vitesse de référence $\langle v \rangle$ et de la vitesse moyenne du champ PIV $\langle v_{piv} \rangle$; $\circ \langle v_{piv} \rangle$; $\square \langle v \rangle$; $+ \langle v_{piv}^2 \rangle^{1/2}$; $* \langle v^2 \rangle^{1/2}$; (a) $Re_c = 8.8$; (b) $Re_c = 150$. Les instants t_1 et t_2 correspondent aux images de la figure 3.5.

La figure 3.6 montre l'évolution temporelle des vitesses pour deux valeurs du nombre de Reynolds du canal Re_c ($Re_c = \rho \langle v \rangle e / \mu$). On observe que $\langle v_{piv} \rangle$ est égal à $\langle v \rangle$ pour une vitesse de vidange de 8.8mm/s (figure 3.6 (a)) alors que $\langle v_{piv} \rangle$ est 40% moins grande pour une vitesse de 150mm/s (figure 3.6 (b)). Dans les deux cas, les écarts types sont faibles, indiquant que les valeurs moyennes sont bien significatives. D'autre part, il est important de préciser que la durée des expériences est suffisamment grande pour que le rapport $\langle v_{piv} \rangle / \langle v \rangle$ atteigne une valeur constante.

L'évolution du rapport $\langle v_{piv} \rangle / \langle v \rangle$ en fonction du nombre de Reynolds du canal est donnée par la figure 3.7.

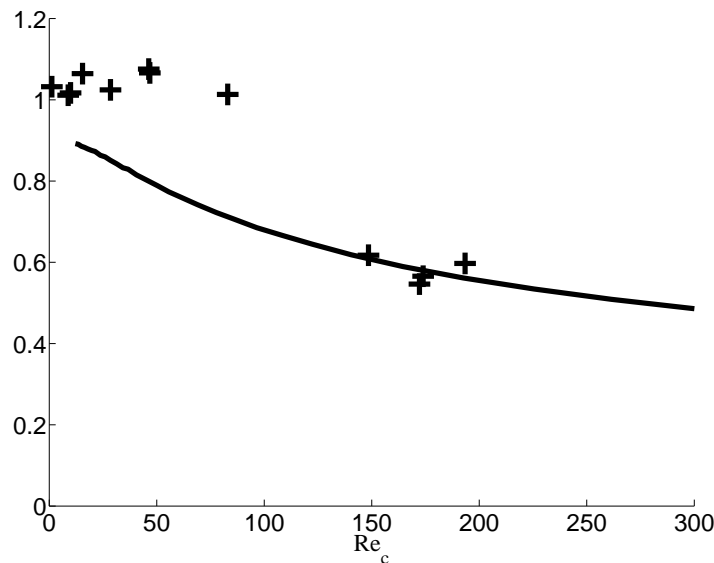


FIG. 3.7: $\langle v_{piv} \rangle / \langle v \rangle$ en écoulement stationnaire + résultats expérimentaux — prédiction théorique prenant en compte la migration des traceurs .

Sous ces conditions d'écoulement uniforme et stationnaire, l'expérience montre que la PIV mesure la vitesse moyenne de l'écoulement lorsque le nombre de Reynolds du canal est inférieur à 100. Pour des valeurs plus grandes ($Re_c > 150$), le rapport des vitesses décroît et atteint la valeur de 0.6. Le fait que la mesure PIV donne des vitesses inférieures à la vitesse moyenne du fluide peut être attribué à des effets inertiels pouvant induire une position préférentielle des traceurs dans l'écoulement. Depuis les travaux de Segré et Silberberg (1962) une attention particulière a été portée au phénomène de migration de particules de flottabilité neutre dans des écoulements cisailés. Une telle migration peut modifier l'uniformité de l'ensemencement et provoquer une accumulation des traceurs à une position d'équilibre, z_{eq} , qui dépend du nombre de Reynolds du canal. Cet équilibre résulte de la compétition de deux mécanismes antagonistes qui brisent la symétrie de l'écoulement lorsque l'on se place dans le repère de la particule. D'une part, la perturbation de l'écoulement causée par la présence de la particule est modifiée du fait de la présence des parois, ce qui génère un gradient de pression qui pousse la particule vers le centre du canal. D'autre part, la courbure du profil de vitesse suivant l'axe Oz est à l'origine d'une force de portance qui déplace la particule vers les parois (Matas J.B, 2004). En supposant que le profil de l'écoulement à travers le canal est parabolique (écoulement de Poiseuille), et que les traceurs ont tous migré à la position d'équilibre, on peut conclure que le système PIV mesure la vitesse du fluide à la position z_{eq} :

$$\langle v_{piv} \rangle = \frac{3}{2} \langle v \rangle \left(1 - 4 \left(\frac{z_{eq}}{e} \right)^2 \right) \quad (3.1)$$

Pour une vidange de vitesse $\langle v \rangle$, et en utilisant la prédiction théorique d'Asmolov (1999) donnant $z_{eq}(Re)$, nous avons obtenu l'évolution théorique du rapport $\langle v_{piv} \rangle / \langle v \rangle$ représentée par la ligne continue sur la figure 3.7. On observe que les effets inertiels de migration prédisent quantitativement la mesure PIV pour des nombres de Reynolds supérieurs à 150. Nos résultats suggèrent que pour les faibles nombres de Reynolds les effets inertiels sont négligeables et ne modifient pas la répartition uniforme initiale des traceurs. En dépit du fait que les traceurs dans une maille de calcul ont des vitesses différentes dans l'épaisseur entre plaques, la mesure PIV donne la vitesse moyenne du fluide. Pour des nombres de Reynolds plus importants ($Re_c > 150$) et à condition que les traceurs aient le temps de terminer leur migration, la vitesse moyenne du fluide peut être obtenue en utilisant la prédiction théorique d'Asmolov.

3.2.3 Mesure PIV pour des écoulements instationnaires

Nous avons vu précédemment que pour des nombres de Reynolds du canal suffisamment élevés et pour des écoulement stationnaires, la mesure par PIV ne donne pas la vitesse moyenne du fluide. Dans le cas d'écoulements instationnaires autour de bulles, la question se pose donc de savoir si la technique PIV donne accès à la vitesse moyennée dans l'épaisseur.

L'écoulement bidimensionnel dans la zone proche du nez d'une bulle est potentiel, à condition que le nombre de Reynolds soit suffisamment grand (Collins, 1965 ; Bush & Eames, 1998). Pour cette raison, nous allons comparer le champ de vitesse mesuré par PIV au champ potentiel près du nez de bulles telles que $Re > 2500$. Dans cette gamme de nombres de Reynolds, nous constaterons au chapitre suivant que les bulles ont une forme de calotte et se déplacent suivant une trajectoire rectiligne. La partie droite de la figure 3.8 montre le champ de vitesse expérimental autour d'une bulle de diamètre $d = 16.9mm$ et de vitesse $U = 0.173m/s$ ($Re = 2924$). Le champ potentiel autour du cercle de même courbure que celle du nez de la bulle et se déplaçant à la vitesse U est représenté sur la partie de gauche. On peut voir de cette manière qu'il y a un bon accord entre le champ théorique et le champ expérimental. Une comparaison quantitative est donnée sur la

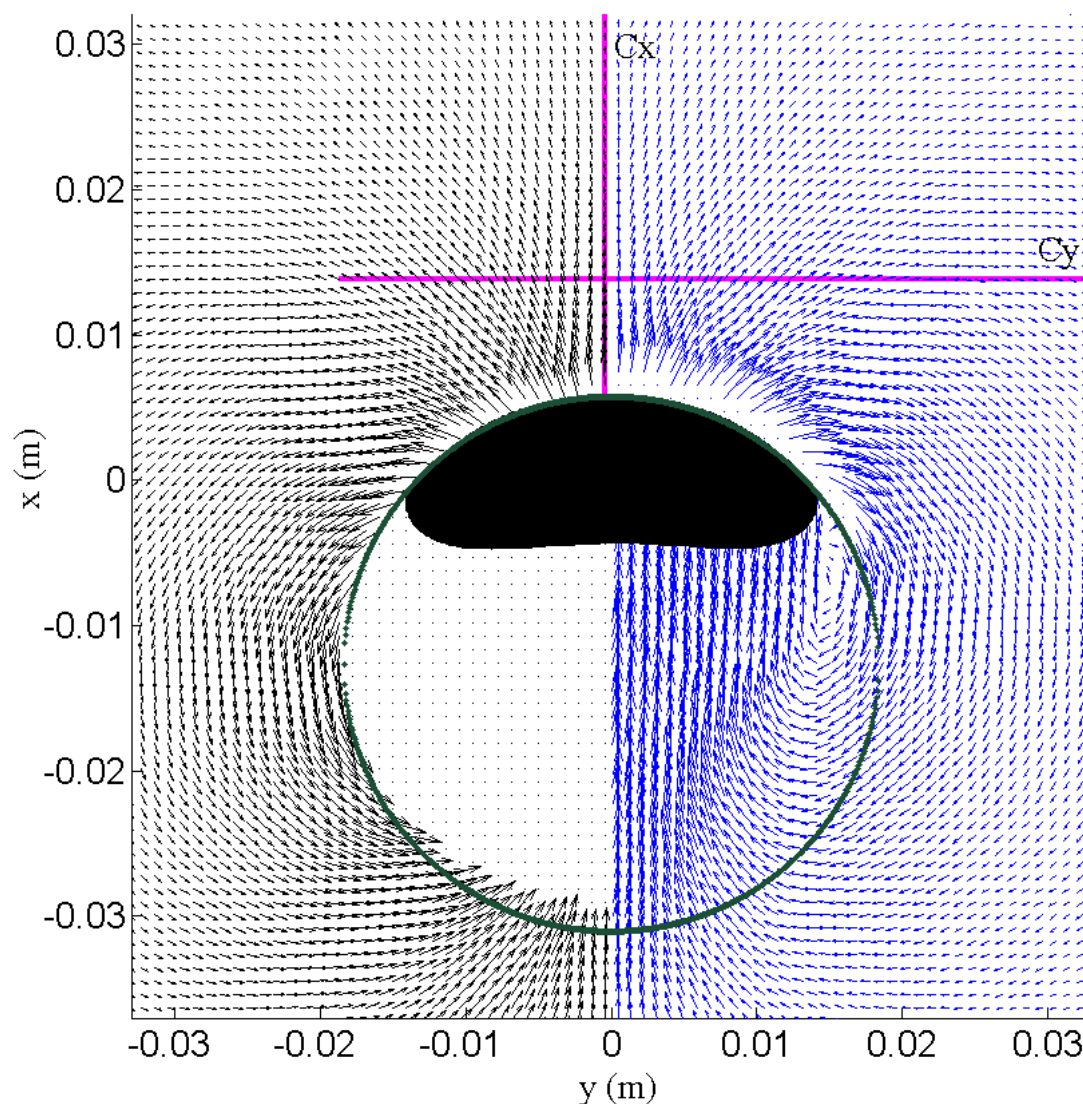
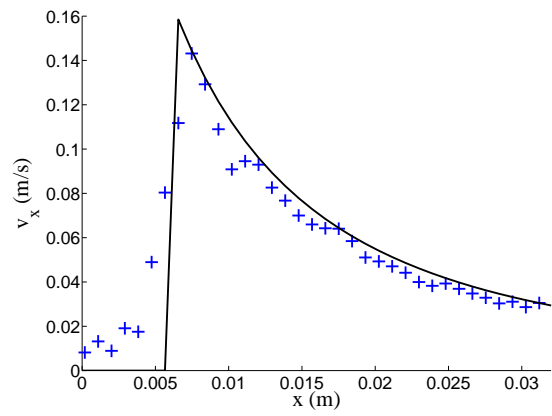


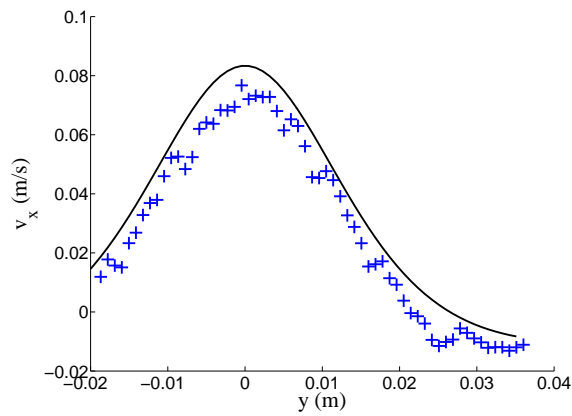
FIG. 3.8: Champ de vitesse autour d'une bulle se déplaçant dans la cellule 2D ($Re = 2924$). A droite : mesure PIV. A gauche : écoulement potentiel bidimensionnel autour du cercle.

figure 3.9 : les profils des 2 composantes de vitesse sont tracés suivant les lignes Cx et Cy tracées sur la figure 3.8. Ceci confirme l'excellent accord entre les résultats théoriques et expérimentaux.

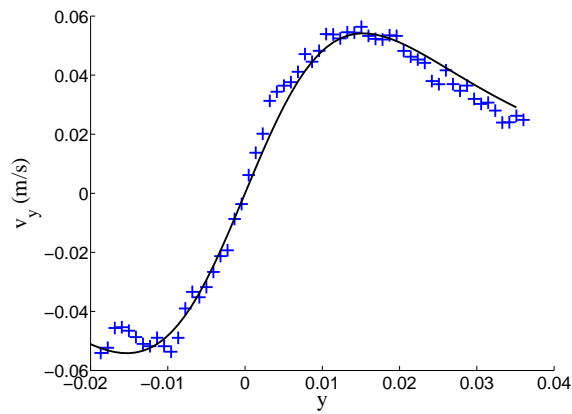
Pourtant, comme le gradient de vitesse dans l'épaisseur a une influence sur la mesure PIV, le fait que l'écoulement potentiel décrive si bien le champ expérimental paraît étonnant. En effet, ici $Re_c = 169$ et on s'attendrait à ce que les particules migrent vers une position d'équilibre donnant lieu à une ségrégation. Ceci n'a pas lieu et s'explique si l'on compare les échelles de temps du problème qui sont : i) le temps durant lequel le liquide subit la perturbation induite par le déplacement de la bulle (d/U) et ii) celui que met le profil de Poiseuille pour se développer (e^2/ν). Comme $e^2/\nu \cong 10d/U$, le profil de vitesse dans l'épaisseur du canal reste plat, à l'exception de la fine couche limite aux parois. En l'absence de gradient de vitesse, les traceurs ne migrent pas et sont transportés par l'écoulement à une vitesse quasi égale à la vitesse moyenne dans la section. Par conséquent, il n'y a plus d'ambiguïté : la PIV mesure bien la vitesse de l'écoulement bidimensionnel. De plus le rapport entre les 2 temps caractéristiques peut s'écrire sous la forme du



(a)



(b)



(c)

FIG. 3.9: Profils de vitesse. (a) Composante verticale de la vitesse suivant la ligne Cx ; (b) Composante verticale de la vitesse suivant la ligne Cy ; (c) Composante horizontale de la vitesse suivant la ligne Cy . Les lignes Cx et Cy sont tracées sur la figure 3.8.

nombre adimensionnel $Re (e/d)^2$ qui va augmenter lorsque Re va décroître (cf chapitre 4). Ainsi, le raisonnement précédent restera valable pour toute notre gamme de nombres de Reynolds.

La qualification minutieuse de notre méthodologie et de la signification de nos mesures PIV nous ont amenés, de façon fortuite, à mesurer directement un effet rarement observé et difficile à mettre en évidence qu'est l'effet Segré-Silberberg.

3.3 Fluorescence Induite par Laser dans un Plan

La PLIF (Planar Laser Induced Fluorescence) est une technique de mesure connue permettant de mesurer dans un plan la concentration d'un constituant présent dans un fluide. Ce constituant est une molécule ayant des propriétés de fluorescence nommée fluorophore. Nous verrons ici une mise en oeuvre moins courante de cette technique : la mesure de la concentration d'un constituant qui inhibe la fluorescence du fluorophore (méthode dite quenching en anglais).

3.3.1 Qu'est ce que la fluorescence ?

Principe général

Lorsque que l'on éclaire une solution contenant un fluorophore avec une lumière de longueur d'onde ν_s , une partie de l'énergie est absorbée. La conséquence de cette absorption est que les molécules de fluorophore constituant le milieu se retrouvent dans un état excité S_1 , c'est à dire à un niveau d'énergie électronique supérieur à l'état fondamental S_0 (figure 3.10). Le retour à l'état S_0 se fait suivant différents processus qui sont de nature radiative ou pas. Le processus radiatif correspondant à l'émission de lumière à la longueur d'onde ν_f est appelé fluorescence.

Comme le montre la figure 3.10 l'émission radiative correspondant à la fluorescence ne se fait pas directement du niveau excité le plus élevé, mais à partir d'un niveau inférieur qui est atteint par conversion interne. L'énergie lumineuse étant proportionnelle à la fréquence et à la constante de Planck h , la lumière de fluorescence a donc une fréquence plus faible que celle de la lumière absorbée. Cette diminution de la fréquence (ou augmentation de la longueur d'onde) est à l'origine d'une différence entre la courbe d'absorption et d'émission du fluorophore appelée décalage de Stokes. L'intérêt de ce décalage est de pouvoir filtrer la lumière incidente afin de ne conserver que la lumière de fluorescence dont l'intensité est liée à la concentration en fluorophore.

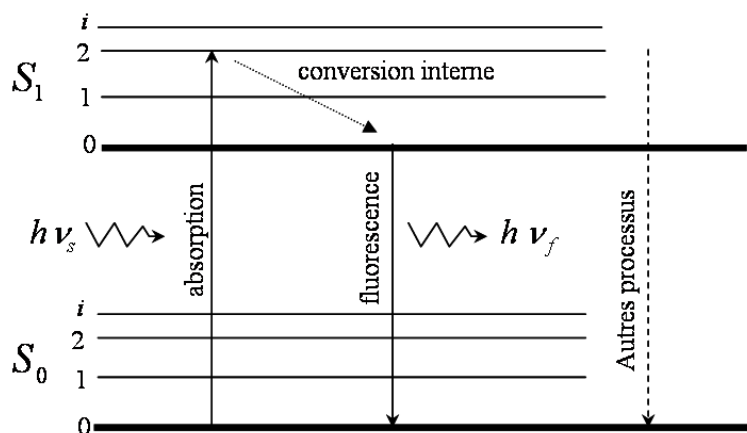


FIG. 3.10: Diagramme de Jablonski (cf Albani)

Temps de vie de fluorescence et inhibition dynamique

Après excitation, les molécules mettent un certain temps à retourner à l'état fondamental. Si l'on considère une population de N molécules de fluorophore à l'état excité à l'instant t , la vitesse à laquelle cette population décroît peut se modéliser par (Albani, 2001) :

$$\frac{dN}{dt} = -(k_r + k_{nr}) N \quad (3.2)$$

où k_r et k_{nr} sont les constantes de dépeuplement relatives respectivement aux processus radiatifs et non radiatifs. La population de molécules excitées décroît donc de manière exponentielle, et le temps de vie de fluorescence $\langle \tau \rangle$ défini par $1/(k_r + k_{nr})$ est le temps de relaxation. L'ordre de grandeur du temps de vie est la dizaine de nanosecondes.

Dans certains cas, la collision du fluorophore avec des molécules appelées inhibiteur modifie la vitesse de dépeuplement. Ce processus non radiatif, appelé inhibition dynamique, va s'ajouter aux autres processus. On a alors la loi de dépeuplement suivante :

$$\frac{dN}{dt} = -(k_r + k_{nr} + k_q [Q]) N \quad (3.3)$$

où $[Q]$ est la concentration de la molécule inhibitrice dans la solution et k_q la constante biomoléculaire d'inhibition.

Le temps de vie de fluorescence est donc diminué en apparence et vaut alors :

$$\langle \tau_q \rangle = \frac{1}{k_r + k_{nr} + k_q [Q]} \quad (3.4)$$

Intensité de fluorescence et relation de Stern-Volmer

Le nombre de photons émis par la population de molécules excitées est lui aussi égal à N . L'intensité lumineuse reçue pendant un intervalle de temps δt est donc définie par :

$$I = \frac{1}{\delta t} \int_0^{\delta t} N(t) dt \quad (3.5)$$

Le calcul des intensités lumineuses de fluorescence perçues en l'absence (I_0) et en présence de l'inhibiteur (I) à la concentration $[Q]$ peut être mené pour un intervalle de temps δt très court. On montre aisément que ce rapport vérifie la relation suivante, qui porte le nom d'équation de Stern-Volmer :

$$\frac{I}{I_0} = \frac{1}{1 + K_{sv} [Q]} \quad (3.6)$$

Ce rapport suit une évolution non linéaire en fonction de la concentration de l'inhibiteur, et fait intervenir la constante de Stern-Volmer $K_{sv} = k_q/(k_r + k_{nr})$. Cette constante correspond au produit entre la constante biomoléculaire d'inhibition k_q et le temps de vie de fluorescence en l'absence d'inhibiteur $\langle \tau \rangle = 1/(k_r + k_{nr})$. Cette équation de Stern-Volmer est utilisée, lorsqu'on connaît K_{sv} , grâce à un étalonnage par exemple, pour déterminer la concentration $[Q]$ à partir des mesures de I_0 et de I .

3.3.2 Description du système PLIF utilisé pour cette étude.

Le système laser/caméra est disposé de la même manière que pour la mesure PIV : le laser (Quantel 2x200mJ) émet un faisceau laser horizontal qui est décalé d'un angle d'environ 40° par rapport à un plan vertical Oxz (figures 3.11(a) et (b)), afin de ne pas saturer la caméra dont l'axe optique est normal au plan de la cellule (figure 3.11 (b)). Deux lentilles cylindriques permettent d'élargir le faisceau laser afin d'éclairer la cellule sur une bande verticale (figure 3.11 (a)). La lumière du laser de longueur d'onde 532nm excite les molécules de fluorophore en solution dans le liquide. Le fluorophore utilisé est un complexe de Ruthénium dont la formule est : tris (4.7 diphenyl-1, 10-phenanthroline) Ruthénium (II) bis(perchlorate)(CAS : 75213-31-9), également utilisé par Dani, Guiraud et Cockx (2007) pour des mesures de champ de concentration autour d'une bulle non confinée. Ce fluorophore est soluble dans l'eau en présence d'une faible quantité d'alcool. L'oxygène dissous est un inhibiteur de la fluorescence de ce complexe de Ruthénium. Cette propriété est exploitée dans ce travail pour mesurer les concentrations en oxygène. D'autres traceurs présentant une inhibition de la fluorescence par l'oxygène existent (Roy et Duke 2000), mais les propriétés de fluorescence de la molécule que nous utilisons, ainsi que son coût raisonnable sont à l'origine de notre choix technique. Comme on le verra plus loin, ce fluorophore a la propriété intéressante d'absorber de la lumière et de ré-émettre à des longueurs d'onde suffisamment décalées pour que l'on puisse bien séparer la lumière laser d'excitation et la lumière de fluorescence. La lumière de fluorescence émise est filtrée au moyen d'un filtre passe haut placé devant l'objectif (85mm de focale) de la caméra (sencicam PCO, 1376x1040). Grâce à un système d'injection raccordé aux tubes capillaires, il est possible d'envoyer de l'azote ou de l'oxygène pur dans la solution (figure 3.11 (a)). L'injection de bulles d'azote avant toute mesure du transfert autour de bulles d'oxygène permet d'enlever l'oxygène préalablement contenu dans la solution. De cette manière, c'est uniquement l'inhibition de la fluorescence provoquée par l'oxygène transféré par les bulles d'oxygène qui sera exploitée.

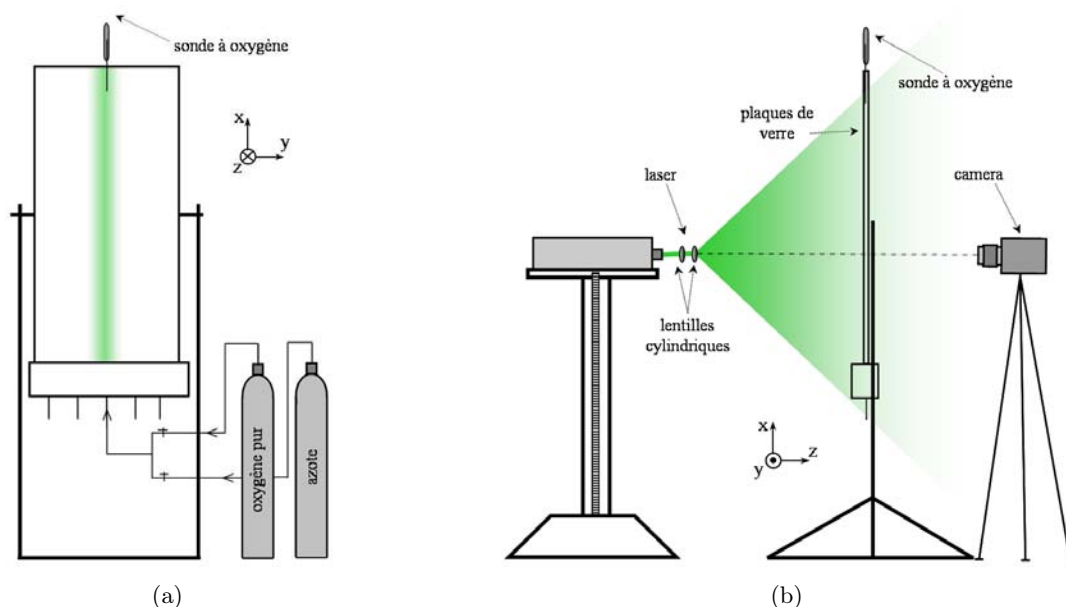


FIG. 3.11: Schéma du dispositif PLIF (a) vue de face (b) vue de profil.

Dans l'épaisseur entre les plaques on peut considérer que tous les points reçoivent la même

intensité de lumière issue du laser car l'épaisseur de la cellule est très faible et le coefficient d'atténuation de la lumière est également très faible pour l'eau. En effet, même pour de l'eau trouble le coefficient d'absorption à $530nm$ est de l'ordre de $0.5m^{-1}$. La loi de Beer-Lambert donne donc une absorption lumineuse à la traversée de la cellule $(I - I_0)/I_0$ de 5.10^{-4} seulement. Pour la même raison, les contributions à l'intensité globale de fluorescence sont équivalentes pour tous les points sur une même normale aux plaques, puisque pour de l'eau trouble le coefficient d'absorption à $600nm$ vaut $c(600nm) \approx 0.4m^{-1}$. La cellule bidimensionnelle se comporte donc comme un système optiquement mince.

Les propriétés de fluorescence du complexe de Ruthenium que nous avons utilisé sont caractérisées par des spectres d'absorption et d'émission reportés sur les figures 3.12, 3.13 et 3.14. Ces spectres ont été mesurés au laboratoire des Interactions Moléculaires et Réactivité Chimique et Photochimique de Toulouse (UMR 5623) durant cette thèse. Sur ces figures toutes les courbes ont été obtenues à partir d'une solution aqueuse contenant 25 mg/L de complexe de Ruthenium, environ 9% volumique d'éthanol, et environ 9mg/L d'oxygène dissous (équilibre avec l'air). Sur la figure 3.14 seulement une des courbes correspond à un échantillon dénué d'oxygène dissous.

La figure 3.12 montre le spectre d'absorption de cette solution. On voit que, lorsque l'échantillon est éclairé par une lumière comportant des longueurs d'onde comprises entre 320 et 600nm, il absorbe beaucoup d'énergie pour les longueurs d'onde proches de 450nm.

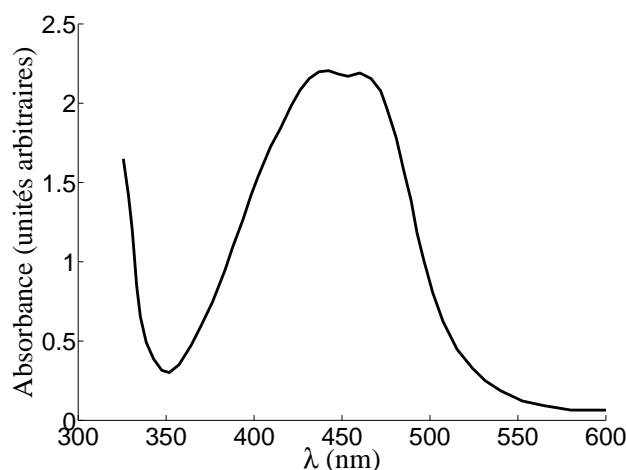


FIG. 3.12: Spectre d'absorption du tris (4.7 diphenyl-1, 10-phenanthroline) Ruthénium (II) bis(perchlorate) (solution en équilibre avec l'air).

Si on éclaire l'échantillon avec une lumière centrée sur une longueur d'onde λ_{ex} , choisie proche de 450nm, on enregistre un spectre d'émission donnant l'intensité de la fluorescence émise sur toute une gamme de longueurs d'onde (figure 3.13 : courbes de droite). On constate que la fluorescence émise comporte des longueurs d'onde allant de 550 à 750 nm (au moins), avec un pic marqué à 620nm environ. La hauteur de ce pic dépend de λ_{ex} , et, parmi les 3 valeurs de λ_{ex} testées (420, 450 et 480nm), c'est $\lambda_{ex} = 450nm$ qui engendre la fluorescence la plus intense.

Nous avons cherché à savoir si l'énergie absorbée par l'échantillon est restituée essentiellement en fluorescence sur tout l'intervalle des longueurs d'onde pouvant exciter le fluorophore. En effet un autre phénomène, radiatif ou non, peut utiliser une partie de l'énergie, dans une gamme plus ou moins étendue de l'intervalle $[320nm; 600nm]$. Sur la figure 3.13 la courbe de gauche, appelée spectre d'excitation, a été obtenue en mesurant l'énergie de fluorescence émise par l'échantillon

à 600nm, et en la représentant en fonction de la longueur d'onde d'excitation. On voit bien que l'énergie de fluorescence émise à 600nm suit une courbe homothétique au spectre d'absorption. L'énergie absorbée est donc transformée en fluorescence dans les mêmes proportions sur l'intervalle [320nm; 600nm]. Il n'y a donc pas de phénomène parasite à la fluorescence.

Enfin, on remarque sur la figure 3.13 un décalage de longueurs d'ondes confortable entre le spectre d'excitation et les spectres d'émissions, avec un faible recouvrement. Le décalage de Stokes vaut environ 175nm.

Sur la figure 3.14 on peut comparer les spectres d'émission avec une excitation à 450nm réalisés en présence et en absence d'oxygène dissous. L'effet inhibiteur de l'oxygène est bien visible.

Dans nos expériences, nous avons utilisé un laser à 532 nm. La longueur d'onde d'excitation n'est donc pas optimale, mais elle s'est révélée satisfaisante pour réaliser des mesures de l'inhibition en utilisant le laser dans la gamme haute des puissances délivrables.

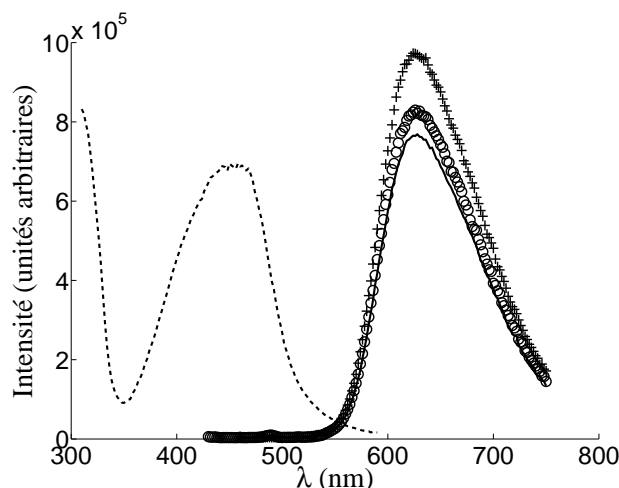


FIG. 3.13: Spectres d'émission et d'excitation du tris(4,7-diphényl-1,10-phenanthroline) ruthénium(II) bis(perchlorate) (solution en équilibre avec l'air); - - spectre d'excitation pour $\lambda_{em}=600nm$; + spectre d'émission pour $\lambda_{ex}=450nm$; o spectre d'émission pour $\lambda_{ex}=420nm$; — spectre d'émission pour $\lambda_{ex}=480nm$.

3.3.3 Analyse des conditions d'éclairage et du signal de fluorescence

Dans cette partie nous commençons par décrire et caractériser le signal de fluorescence induit par la lumière du laser.

Fluctuations temporelles du laser

La figure 3.15 est une image produite par la lumière de fluorescence dans la bande éclairée par le laser pour une solution désoxygénée contenant un mélange homogène d'eau, d'alcool et de complexe de Ruthénium. Les profils de niveaux de gris (NG) montrent que l'intensité de fluorescence fluctue spatialement dans tout le champ de visualisation (figure 3.16). L'intensité du laser ne se répartit donc pas de façon homogène dans le volume de mesure. D'autre part, il y a également une fluctuation temporelle de l'intensité locale. La figure 3.16 illustre cela : en effet, si l'on compare des profils de niveaux de gris entre deux images consécutives d'une séquence, ceux-ci ne se superposent pas. Puisque le Ruthénium dissous dans le liquide a une concentration

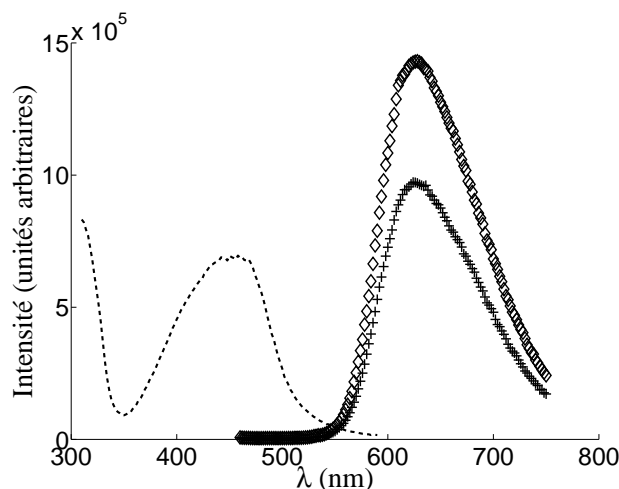


FIG. 3.14: Effet inhibiteur de la présence d'oxygène. - - spectre d'excitation du tris (4,7 diphényl-1, 10-phenanthroline) ruthénium (II) bis(perchlorate) pour $\lambda_{em}=600nm$; + spectre d'émission pour $\lambda_{ex}=450nm$ (solution avec oxygène dissous); ◇ spectre d'émission pour $\lambda_{ex}=450nm$ (solution sans oxygène dissous).

uniforme dans tout le canal et que le champ de visualisation est suffisamment bas par rapport à la surface libre pour que la concentration en oxygène dissous reste localement nulle, nous pouvons affirmer que les fluctuations d'intensité sont liées à une qualité médiocre de notre éclairage laser. On notera que ces fluctuations spatio-temporelles pour un éclairage en volume, ont déjà été observées par Mainhagu, Oltean, Golfier et Bues (2007). Nous avons vérifié que ces fluctuations ne proviennent pas d'une fluctuation de l'énergie globale tir à tir. La variation d'énergie totale du signal de fluorescence E estimée à partir de la somme de tout les niveaux de gris de l'image est représentée en fonction du temps sur la figure 3.17. Les fluctuations représentent moins de 2.5% de la valeur moyenne de E sur la séquence. Ainsi, malgré les fluctuations spatio-temporelles locales, l'énergie totale du laser se conserve à chaque tir. L'éclatement du faisceau laser pour générer un éclairage en volume de la cellule est certainement à l'origine de ces conditions de bruit.

Les fluctuations temporelles de l'éclairage nous ont obligé à renoncer à des mesures à partir d'images instantanées. Nous nous sommes posé la question de savoir si on peut cependant définir un signal de fluorescence moyen reproductible. Nous avons donc calculé des moyennes de n images consécutives pour les comparer entre elles. Lorsque n augmente, les images moyennes convergent, et l'on peut considérer que, pour $n > 15$, elles sont identiques. Ce résultat est illustré par la figure 3.18 qui montre la reproductibilité des profils de niveaux de gris de deux images moyennes pour $n = 15$. Dans tout ce qui va suivre, nous travaillerons donc toujours à partir d'images moyennes, puisque elles seules ne dépendent plus de la fluctuation temporelle de répartition de l'intensité lumineuse. La notation NG désignant le niveau de gris sera conservée, mais elle s'appliquera uniquement aux images moyennées dans le temps.

Linéarité de la réponse en fluorescence vis à vis de l'excitation laser

Avant d'étalonner le système en fonction de la concentration en oxygène dissous, nous nous sommes assurés que nous travaillons bien dans un régime où le signal de fluorescence varie linéairement avec l'intensité de la lumière laser (Albani, 2001). En ouvrant le diaphragme de la caméra au maximum, et en conservant le filtre passe-haut, nous avons pu visualiser une

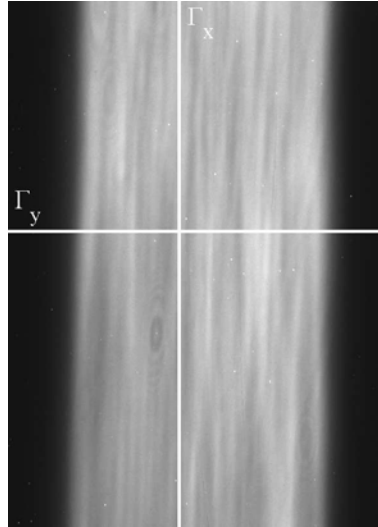


FIG. 3.15: Image de fluorescence pour une solution désoxygénée d'eau distillée contenant 12.5mg/L de complexe de Ruthénium et 9% volumiques d'alcool.

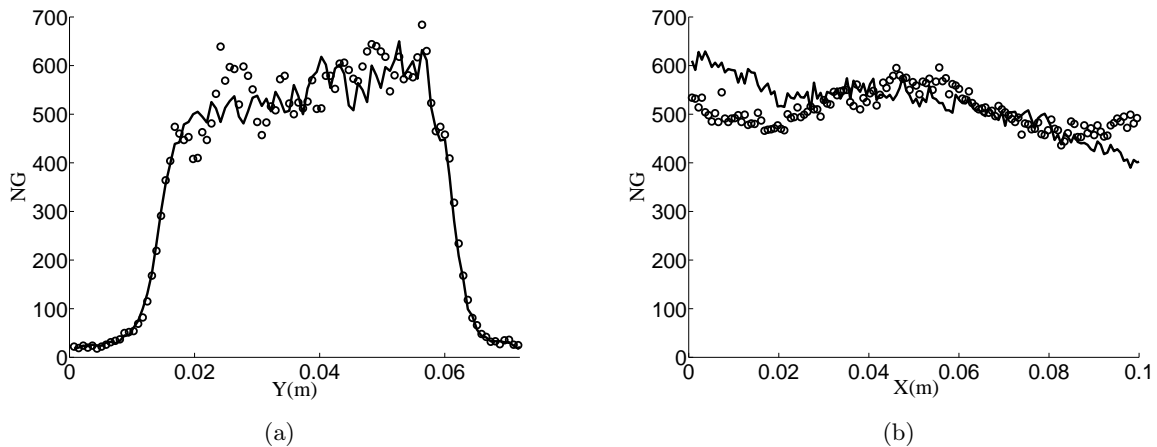


FIG. 3.16: Variation des niveaux de gris entre deux images instantanées consécutives séparée de 0.1s : (a) profil de NG suivant la ligne Γ_y (b) profil de NG suivant la ligne Γ_x ; — image à $t = 1s$; \circ image à $t = 1.1s$. Les lignes Γ_y et Γ_x sont représentées sur la figure 3.15

lumière qui contient le signal de fluorescence et une partie résiduelle de la lumière laser non entièrement filtrée. Nous avons ainsi mesuré le niveau de gris moyen de ces images. Pour chaque niveau d'énergie du tir laser, nous avons tout d'abord calculé le niveau de gris moyen d'image en l'absence de fluorophore $\langle NG_l \rangle$. Pour obtenir un signal représentatif de l'énergie du laser, le niveau de gris moyen des capteurs correspondant au bruit de la caméra $\langle NG_0 \rangle$ doit être retranché. Ce bruit est estimé en enregistrant une image avec un cache sur la caméra. Le niveau de gris correspondant uniquement à la lumière du laser est donc :

$$\langle \tilde{NG}_l \rangle = \langle NG_l \rangle - \langle NG_0 \rangle \quad (3.7)$$

Une prise d'images a été répétée en présence de fluorophore pour les mêmes réglages d'énergie du laser. Dans ce cas, les niveaux de gris sont notés $\langle NG_f \rangle$. Comme une partie de la lumière laser

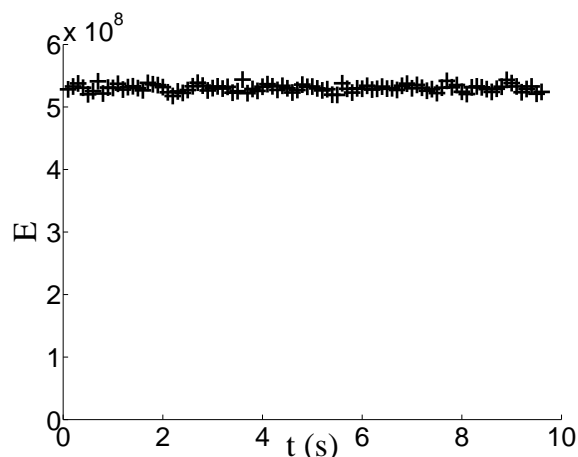


FIG. 3.17: Variation de la somme des niveaux de gris de chaque image E en fonction du temps .

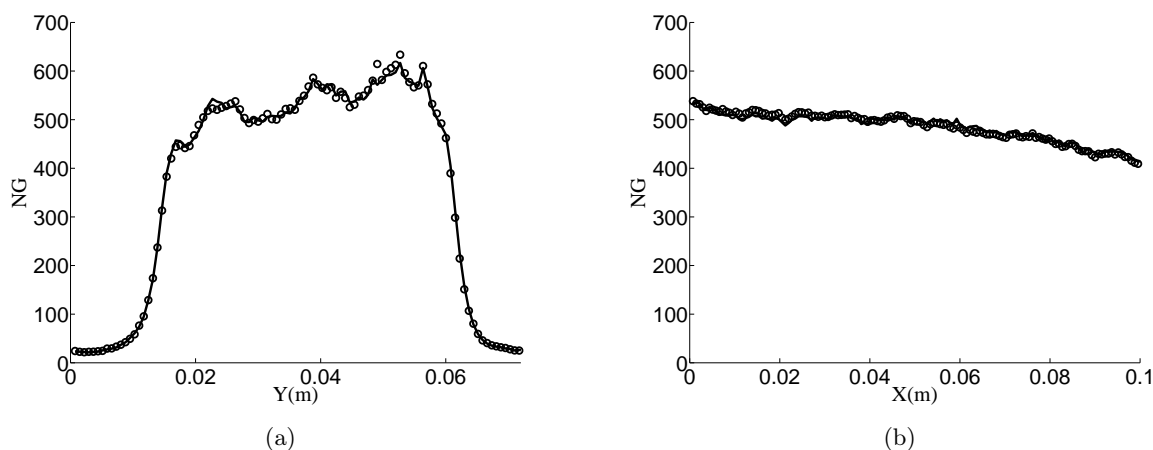


FIG. 3.18: Comparaison des niveaux de gris entre deux images moyennes : (a) suivant la ligne Γ_y ; (b) suivant la ligne Γ_x ; — moyenne pour 15 images ($n=1-15$); \circ moyenne pour 15 images ($n=15-30$). Les lignes Γ_y et Γ_x sont représentées sur la figure 3.4.

n'a pas été filtrée, le niveau de gris correspondant uniquement à la lumière émise par fluorescence vaut :

$$\langle \tilde{N}G_f \rangle = \langle NG_f \rangle - \langle NG_l \rangle \quad (3.8)$$

où le niveau de gris moyen des capteurs $\langle NG_0 \rangle$ disparaît de manière implicite.

La figure 3.19 montre que l'évolution de $\langle \tilde{N}G_f \rangle$ en fonction de $\langle \tilde{N}G_l \rangle$ est bien linéaire.

3.3.4 Détermination du champ de concentration en oxygène dissous

Étalonnage dans le cas d'une concentration en oxygène uniforme dans la cellule

Rappelons qu'ici l'inhibiteur de la fluorescence du Ruthénium est l'oxygène. Par conséquent il faut pouvoir relier l'intensité du signal de fluorescence à la concentration d'oxygène dissous $[O_2]$. Nous avons donc réalisé un étalonnage de la manière suivante : (i) l'injection d'oxygène par

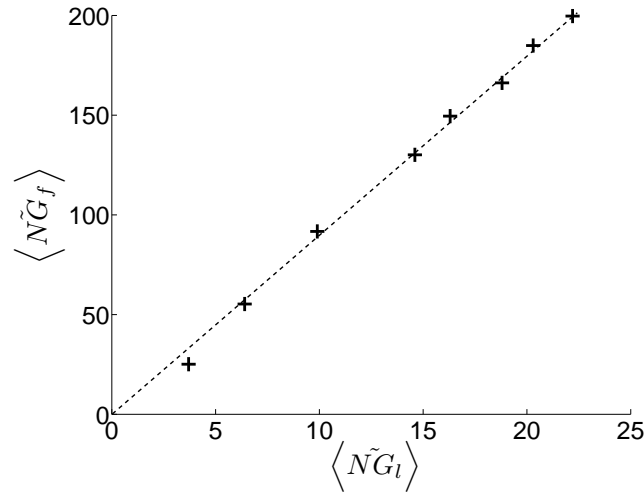


FIG. 3.19: Comparaison entre l'intensité de la lumière laser et celle de la fluorescence pour une solution contenant 12.5mg/L de complexe de Ruthénium et 9% d'alcool . + résultats expérimentaux.

les capillaires permet d'obtenir différentes concentrations uniformes mesurées au moyen d'une sonde oxymétrique ; (ii) pour chaque concentration, le signal de fluorescence est enregistré sur une séquence d'images. La figure 3.20 montre l'évolution en fonction de $[O_2]$ du rapport I_0/I entre l'intensité de fluorescence sans inhibition ($[O_2]=0\text{mg/L}$), et l'intensité lorsque il y a inhibition. Les valeurs reportées ont été obtenues par moyenne sur tout le champ. Les points expérimentaux montrent une évolution linéaire en fonction de $[O_2]$ donnant accès à la constante de Stern-Volmer K_{SV} . Ces étalonnages ont été réalisés pour différentes concentrations en Ruthénium et en alcool. On peut remarquer que la concentration en Ruthénium ne modifie pas l'efficacité de l'inhibition par l'oxygène puisque K_{SV} reste la même (à concentration d'alcool identique). En revanche, la présence d'alcool nécessaire à la dissolution du Ruthénium dans l'eau a une influence évidente sur le rendement de fluorescence. En effet, pour une même concentration en fluorophore, doubler la concentration en éthanol revient presque à doubler K_{SV} . De la même manière, pour une concentration d'éthanol d'environ 20% (volumiques) nous obtenons une constante de Stern Volmer proche de celle trouvée par A. Dani (2007) pour une concentration en alcool comparable et une concentration en fluorophore 15 fois plus faible. Par conséquent, afin de tenir compte de la variation de concentration en éthanol entre plusieurs séries de mesure, nous avons réalisé un étalonnage pour chacune de ces séries. Nous avons également veillé à limiter l'évaporation de l'éthanol pendant une série de mesure. Nous avons vérifié par pesée d'un volume de référence que le mélange eau-éthanol garde la même composition à 1% près sur une journée d'expériences. Nous avons effectué l'ensemble de nos mesures avec une concentration du complexe de Ruthénium égale à 12.5mg/L et une concentration en alcool de 9%. La constante de Stern-Volmer que nous avons utilisée vaut donc 0.27L/mg.

Comme l'étalonnage a été effectué en utilisant l'intensité moyenne sur tout le champ de visualisation, nous avons voulu vérifier qu'il est possible de remonter à la concentration locale en oxygène dissous en chaque pixel à partir de cet étalonnage. En d'autres termes, il s'est agi de vérifier si un étalonnage fait en un point quelconque du champ donnerait la même relation que celle de la figure 3.20. Dans nos conditions normales de mesure, le diaphragme de la caméra est peu ouvert, on a $\langle \tilde{N}G_l \rangle = \langle \tilde{N}G_0 \rangle$ et le signal local de fluorescence est $\tilde{N}G_f(x, y, [O_2]) = \tilde{N}G_f(x, y, [O_2]) - \langle \tilde{N}G_0 \rangle$. Sa valeur moyenne dans tout le champ est notée $\langle \tilde{N}G_f \rangle$. Nous avons

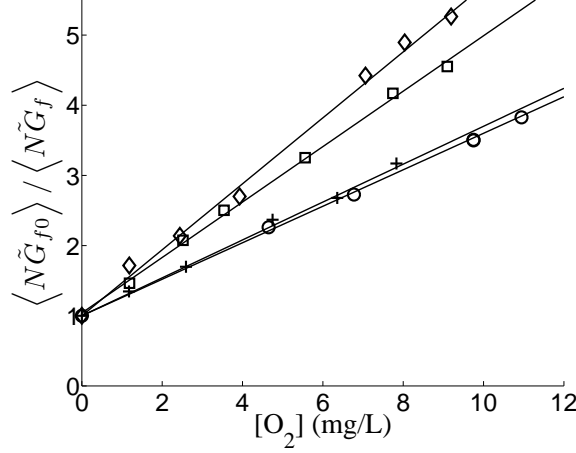


FIG. 3.20: Etalonnage en concentration d'oxygène. \diamond $[Ru]=25\text{mg/L}$ et 20% d'éthanol; $+$ $[Ru]=25\text{mg/L}$ et 9% d'éthanol; \circ $[Ru]=12.5\text{mg/L}$ et 9% d'éthanol; \square Dani A. (2007) $[Ru]=1.6\text{mg/L}$ et 16.7%.

comparé le signal de fluorescence $N\tilde{G}_f(x, y, [O_2])$ normalisé par sa valeur moyenne dans tout le champ $\langle N\tilde{G}_f \rangle$ pour différents essais avec des concentrations en oxygène différentes mais uniformes dans toute la cellule. Même s'il varie d'un point à un autre le signal normalisé ne dépend pas de la concentration (figure 3.21) et on a pour des concentrations $[O_2]_1$ et $[O_2]_2$ quelconques :

$$\frac{N\tilde{G}_{f1}}{\langle N\tilde{G}_{f1} \rangle} = \frac{N\tilde{G}_{f2}}{\langle N\tilde{G}_{f2} \rangle} \quad \forall [O_2] \quad (3.9)$$

Ce rapport est d'ailleurs égal à celui obtenu en l'absence d'oxygène. En notant $NG_{f0} = NG_f(x, y, [O_2] = 0)$ on obtient ainsi :

$$\frac{NG_{f0} - \langle NG_0 \rangle}{NG_f - \langle NG_0 \rangle} = \frac{\langle N\tilde{G}_{f0} \rangle}{\langle N\tilde{G}_f \rangle} \quad (3.10)$$

Par conséquent, on vérifie que lorsque la concentration en oxygène dissous est uniforme entre les plaques, la relation de Stern-Volmer peut être appliquée au signal lumineux dans tout le domaine d'investigation pour obtenir le champ de concentration en oxygène dissous :

$$\frac{NG_{f0} - \langle NG_0 \rangle}{NG_f - \langle NG_0 \rangle} = 1 + K_{sv} [O_2] \quad (3.11)$$

Modification de la fluorescence au passage d'une bulle

La figure 3.22 montre l'image brute d'une bulle d'azote en ascension dans la fenêtre d'investigation. Cette image permet de visualiser les variations d'intensité lumineuse autour d'une bulle sans transfert d'oxygène aux interfaces. On reconnaît sur cette image une bande verticale fluorescente intense au centre de la fenêtre liée aux hétérogénéités spatiales de l'éclairage issu du laser. On remarque que le contour de la bulle est très brillant : les rayons lumineux issus du

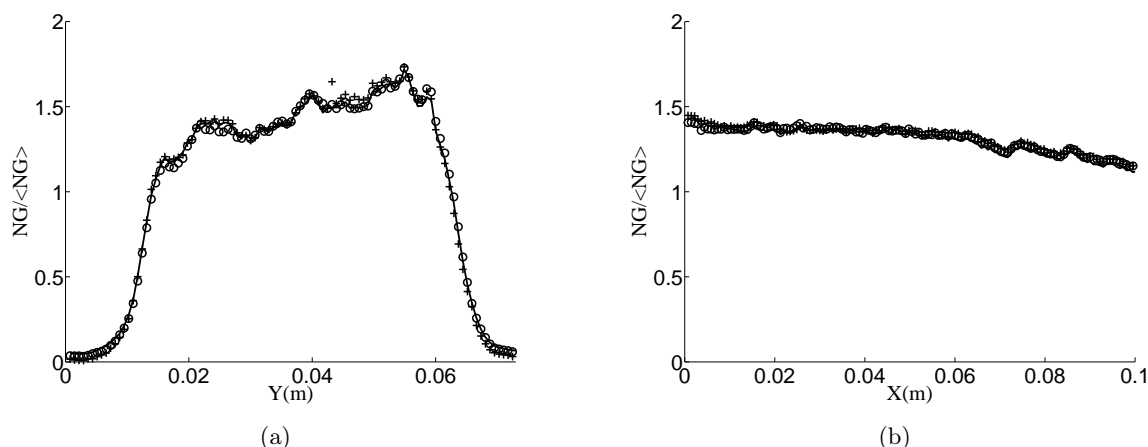


FIG. 3.21: Variation des niveaux de gris pour deux images moyennes normalisées (a) suivant la ligne Γ_y ; (b) suivant la ligne Γ_x ; — $[O_2] = 0mg/L$; + $[O_2] = 2.41mg/L$; o $[O_2] = 8.5mg/L$. Les lignes Γ_y et Γ_x sont représentées sur la figure 3.15.

laser, qui frappent l'interface dans cette zone courbée, subissent des déviations et des réflexions multiples. En ces points l'intensité lumineuse est très forte, et n'est pas totalement filtrée par le filtre passe-haut de la caméra. Un rayon dévié par l'interface est également visible.

La figure 3.23 montre des images instantanées où l'on voit quatre bulles d'oxygène pur, de tailles différentes, se déplaçant dans de l'eau préalablement désoxygénée. Outre les phénomènes optiques déjà signalés pour l'image précédente, on remarque ici un sillage sombre derrière les bulles : il s'agit de zones dont la fluorescence est inhibée par la présence d'oxygène dissous. Ces traces ne sont pas nettes sur les images brutes, du fait des niveaux de gris contrastés entre le contour de la bulle et les zones autour et des fortes hétérogénéités de l'éclairage laser. Pour s'affranchir des variations temporelles de l'éclairage, nous avons du utiliser des images moyennées sur 1,5 ou 2 secondes (15 ou 20 images successives). Le dépôt d'oxygène dissous derrière les bulles est très rapidement figé dans l'espace après le passage de la bulle, comme on le verra au chapitre 4. De sorte qu'une prise de moyenne sur les images du sillage lointain des bulles n'induit pas d'effet d'intégration temporelle du champ de concentration en oxygène dissous. On divise ces images moyennées par l'image de fond moyenne, pour minimiser les hétérogénéités spatiales de l'éclairage.

Ainsi par exemple, la figure 3.24(a) montre une image brute (non moyennée), prise après le passage des 4 bulles de l'image 3.23; la figure 3.24(b) a été obtenue en divisant la moyenne des 15 images suivantes par l'image de fond moyenne. On constate sur cette image que le champ de concentration en oxygène est bien net et qu'il est a priori quantitativement exploitable.

Interprétation quantitative de la trace en oxygène dissous laissée derrière une bulle

On voit sur l'image 3.24(b) que la trace en oxygène dissous laissée derrière une bulle est composée de zones plus ou moins intenses qui peuvent résulter (i) d'hétérogénéités d'un champ de concentration uniforme dans l'épaisseur entre les plaques mais qui évolue dans le plan Oxy ou (ii) de la superposition de différentes couches de concentration en oxygène distribuées dans l'épaisseur entre les plaques. L'analyse théorique sur le transfert de masse autour de bulles confinées, menée au chapitre 2, a mis en évidence deux mécanismes de transfert distincts : le transfert dans les minces films de liquide placés entre les interfaces et les plaques, et le transfert à travers

l'interface périphérique de la bulle. On doit donc s'attendre à ce que les profils de concentration dans la direction z , qui résultent de ces deux types de transfert, puissent être non uniformes. Cela complique l'interprétation des mesures d'intensité en mesures de concentration en oxygène dissous. En effet, nous avons expérimentalement accès à l'intensité de fluorescence totale émise en chaque point $I(x, y)$. Cette intensité résulte des contributions de tous les points fluorescents présents dans l'interstice entre les plaques. La loi de Stern-Volmer (relation 3.6) n'étant pas linéaire, elle ne permet de relier l'intensité de fluorescence mesurée $I(x, y)$ et la concentration moyenne en oxygène entre les plaques $C_m(x, y)$ que lorsque celle-ci est uniformément répartie en z . Les hétérogénéités de la concentration dans l'interstice ne nous permettent pas d'appliquer de façon directe notre relation d'étalonnage pour transformer les intensités lumineuses moyennes en concentrations moyennes dans l'interstice.

On peut cependant tenter d'adopter des hypothèses de travail pour interpréter les mesures. Ces hypothèses prennent en compte la spécificité des transferts d'oxygène autour de bulles bidimensionnelles. Nous verrons au chapitre 5 qu'il est raisonnable de supposer que la trace d'oxygène derrière la bulle est constituée, d'une part de 2 zones fines proches des plaques, qui sont la mémoire des films et sont épaisses d'une dizaine de microns et riches en oxygène issu des films, et d'autre part d'une zone parallèle aux plaques, distante de chaque plaque d'une dizaine de microns, et comportant également de l'oxygène dissous, issu de la périphérie de la bulle.

Dans une volonté de simplification du problème, on supposera que ces différentes couches comportant de l'oxygène dissous sont elles-mêmes homogènes dans la direction normale aux plaques. Cette hypothèse sera discutée au chapitre 5.

On représente alors la répartition d'oxygène dans l'interstice entre les plaques, en un point de coordonnées x et y , par le schéma général de la figure 3.25.

La concentration moyenne en ce point est

$$C_M = (aA + (e - a)B)/e \quad (3.12)$$

Dans la zone comprise entre $z = 0$ et $z = a$, la concentration est homogène de valeur A et on peut utiliser la relation de Stern-Volmer : l'intensité de fluorescence délivrée par cette zone sera

$$\frac{I_A}{I_0} = \int_0^a \frac{1}{1 + K_{SV}A} dz = \frac{a}{1 + K_{SV}A} \quad (3.13)$$

De même pour la zone voisine on aura :

$$\frac{I_B}{I_0} = \frac{e - a}{1 + K_{SV}B} \quad (3.14)$$

L'intensité de fluorescence totale $I = (I_A + I_B)$ mesurée au point (x, y) vérifie donc la relation générale suivante

$$\frac{I}{I_0} = \frac{a}{1 + K_{SV}A} + \frac{e - a}{1 + K_{SV}B} \quad (3.15)$$

Cette intensité totale I correspond à la concentration moyenne C_M dans l'interstice. Ainsi lorsqu'on mesure une intensité de fluorescence I au point (x, y) , on dispose d'un système de 2 équations (3.12 et) comportant 4 inconnues : a , A , B et C_M pour interpréter les mesures. Pour obtenir la valeur de la concentration moyenne C_M au point de mesure, il faudra donc formuler des hypothèses sur l'épaisseur de la couche a et sur une des concentrations (A ou B), ou alors sur les concentrations A et B .

Cette démarche sera appliquée et discutée pour l'interprétation quantitative des images de traces d'oxygène dissous derrière les bulles et pour obtenir des champs de concentration au chapitre 5.

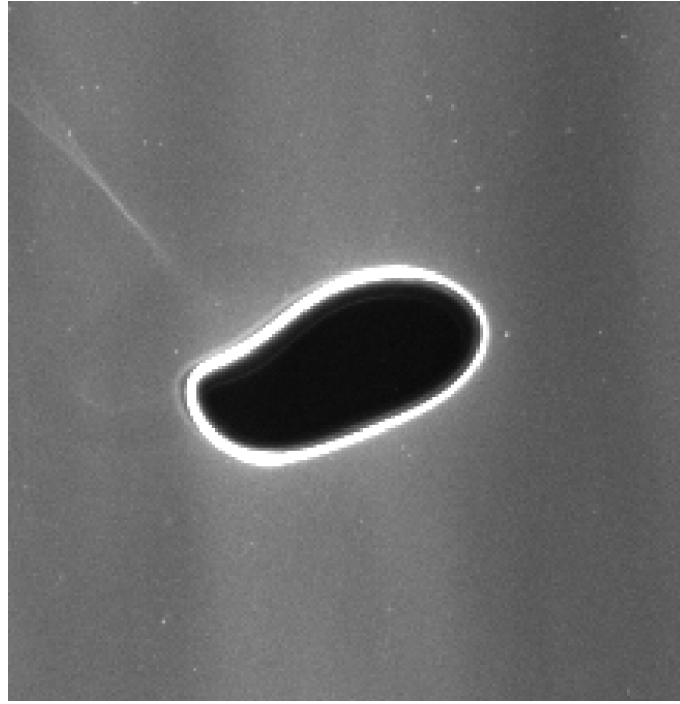


FIG. 3.22: Image d'une bulle d'azote.

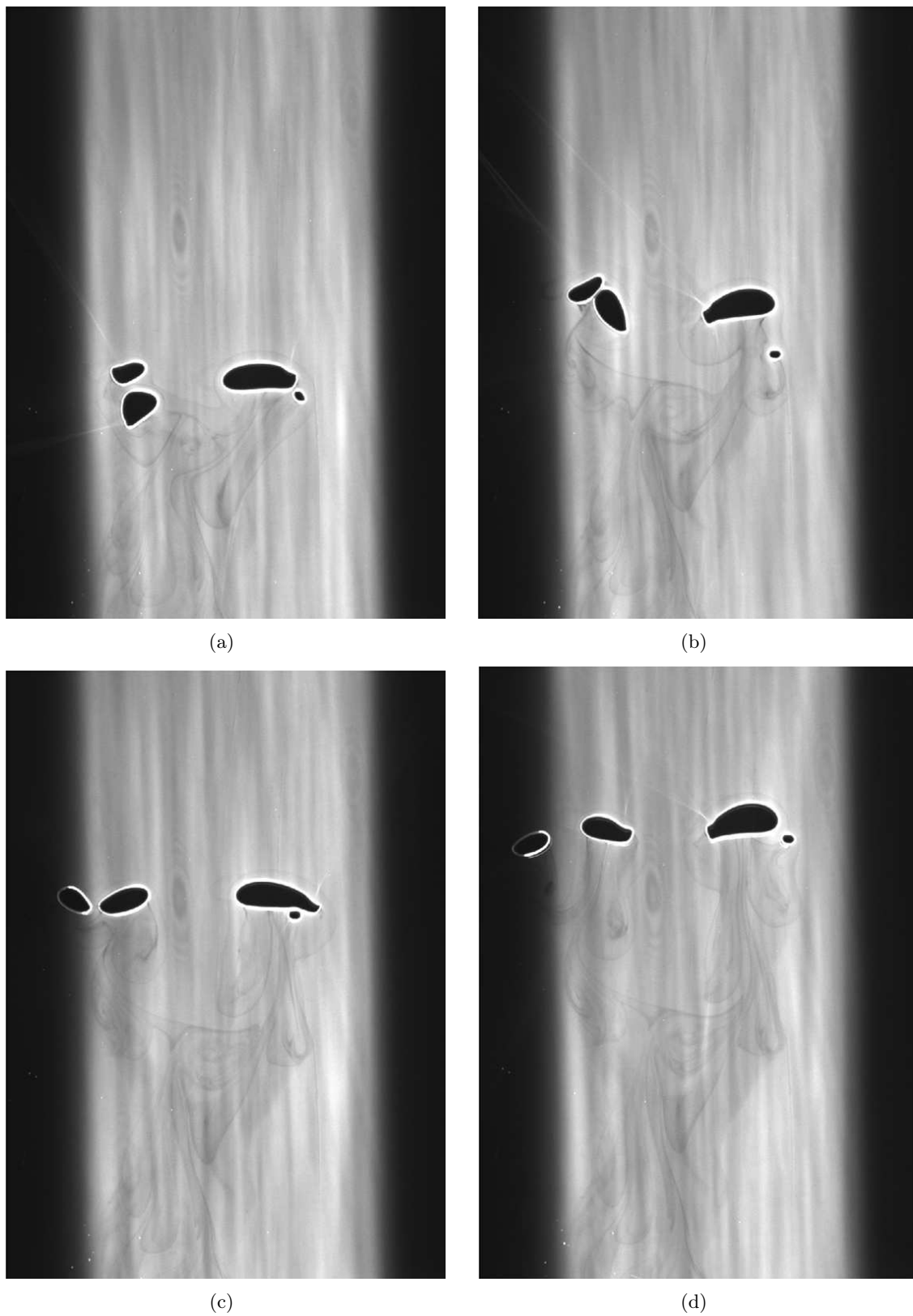
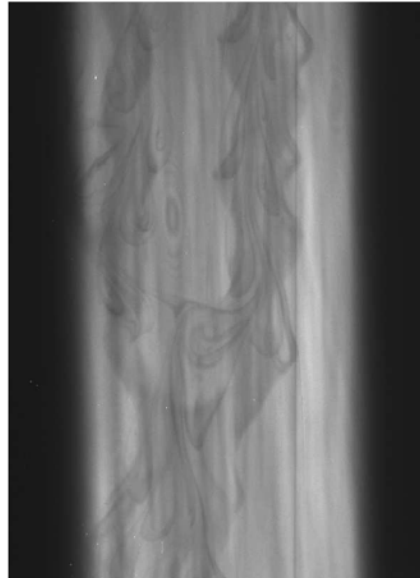


FIG. 3.23: Séquence d'images brutes d'un groupe de 4 bulles de tailles différentes. Chaque image est séparée de 0.1s.



(a)



(b)

FIG. 3.24: Amélioration des images pour la mesure par PLIF. (a) Image brute après le passage des bulles, (b) Image moyennée avec 15 prises de vue, divisée par le fond moyen.

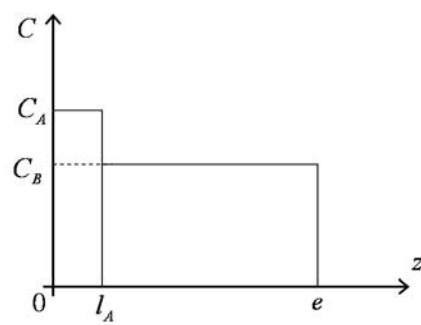


FIG. 3.25: Répartition schématique de la concentration en oxygène dissous dans l'épaisseur entre les plaques

Chapitre 4

Hydrodynamique de la bulle entre les plaques

4.1 Présentation des essais expérimentaux

L'étude expérimentale a été menée pour une gamme de nombres d'Archimède très large allant de $Ar = 50$ jusqu'à $Ar = 15000$. Les fluides étudiés ici sont de l'eau distillée et de l'air. D'un point de vue expérimental, nous avons fait varier le nombre d'Archimède en injectant des bulles de différents volumes pour différentes inclinaisons des plaques. Les nombres adimensionnels du problème e/d , Bo et \tilde{Bo} (voir p 32) sont représentés sur les figures 4.1, 4.2 et 4.3 en fonction de Ar .

On note sur la figure (4.1) que e/d varie avec Ar et n'est pas toujours négligeable devant l'unité, notamment aux faibles nombres d'Archimède où les bulles sont donc faiblement aplaties par le confinement entre les plaques et pour lesquelles il n'existe pas à proprement parler de films entre l'interface et les parois. La gamme des nombres de Bond est également assez large (figure 4.2), mais on aura souvent $Bo > 1$, ce qui signifie que les bulles seront déformées par la gravité.

Sur les figures 4.1, 4.2 et 4.3 on remarquera que la majorité des points expérimentaux correspondent au cas des plaques verticales ($\alpha = 0^\circ$) ou faiblement inclinées ($\alpha = 20^\circ$). Puisque $\cos(\alpha=20^\circ) \cong 0.94$, les points réalisés pour ces deux inclinaisons décrivent quasiment la même courbe dans l'espace des paramètres. En revanche, peu de mesures ont été faites pour les angles $\alpha = 40^\circ$ et $\alpha = 60^\circ$. Ainsi, même si les résultats sont systématiquement présentés pour toutes les inclinaisons, l'effet de α (qui est rappelons le est un paramètre indépendant du problème) ne sera pas étudié dans ce travail. Nous traiterons donc ici uniquement le cas vertical.

Pour cette large gamme de nombres d'Archimède, nous étudierons des bulles ayant des formes et des trajectoires variées. La figure 4.4 représente des séquences d'images prises par ombroscopie. On y observe des bulles dont la forme évolue en fonction du nombre d'Archimède : allant du disque jusqu'à des calottes en passant par l'ellipsoïde de plus en plus aplati quand Ar augmente. On remarque également que la forme des bulles évolue au cours du temps le long de la trajectoire. Les oscillations de forme peuvent être complexes avec des séquences originales comme à $Ar = 4190$ où la symétrie par rapport à la direction de la gravité effective est observée sur une période du mouvement mais avec des variations fortes de courbure, ou encore à $Ar = 6040$ où la bulle subit des variations d'élongation transversale très fortes.

Les mesures PIV nous donnent accès aux champs de vitesse et de vorticit  autour de la bulle. Nous avons représent  ces champs pour 4 bulles de volumes diff rents sur les figures 4.5, 4.6, 4.7

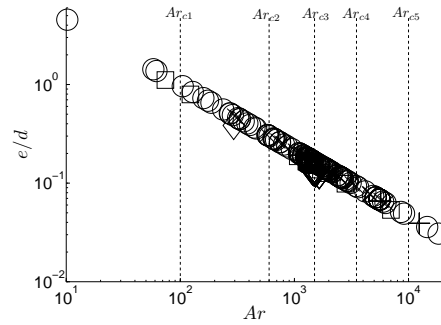


FIG. 4.1: Evolution de e/d en fonction de Ar pour la campagne de mesures. \circ $\alpha = 0^\circ$; \times $\alpha = 0^\circ$ solution avec rhodamine ; $+$ $\alpha = 20^\circ$; \square $\alpha = 40^\circ$; \diamond $\alpha = 60^\circ$.

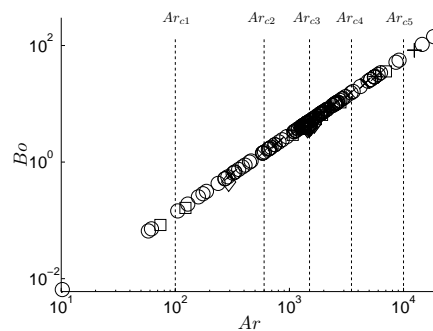


FIG. 4.2: Evolution de Bo en fonction de Ar (légende figure 4.1).

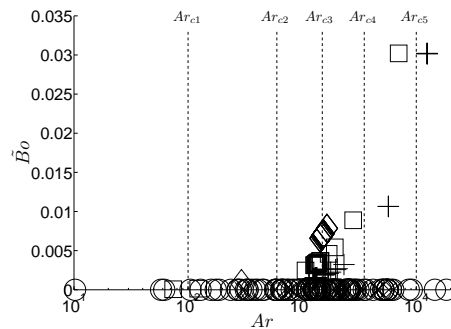


FIG. 4.3: Evolution de \tilde{B}_o en fonction de Ar (légende figure 4.1).

et 4.8. Sur ces figures nous avons également reporté la trajectoire des bulles et leur évolution de forme le long de cette trajectoire. Ces figures montrent que le sillage des bulles pour $Ar = 220$, $Ar = 1450$ et $Ar = 3000$ présente une allée de tourbillons alternés contrarotatifs, alors qu'à $Ar = 7000$ deux tourbillons contrarotatifs sont disposés symétriquement de part et d'autre de la bulle. On observe également que la taille et la forme de ces tourbillons changent d'une bulle à une autre. La simple observation comparative des formes de trajectoires et des champs de vitesse témoigne de la problématique essentielle de ce travail qui a donc consisté à analyser le couplage entre la dynamique du sillage d'une bulle bidimensionnelle et ses oscillations de trajectoire et de forme à grand nombre d'Archimède.

On sait que l'état des interfaces et donc l'hydrodynamique de la bulle sont sensibles à une présence éventuelle de contaminants dans l'eau. Or, le milieu liquide n'est pas exactement le même

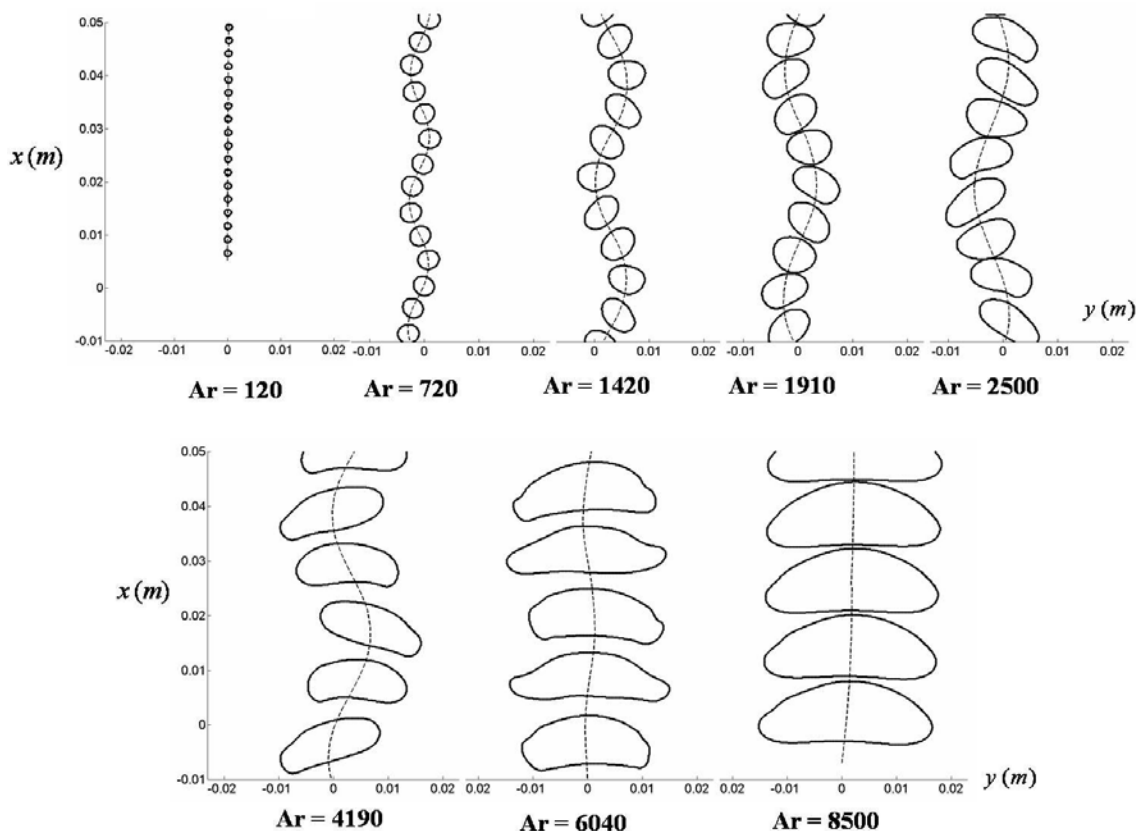


FIG. 4.4: Illustration de l'évolution des formes et des trajectoires pour différents nombres d'Archimède à $\alpha = 0$. (abscisses et ordonnées en m)

dans nos expériences d'ombroscopie et dans nos expériences de PIV, puisque nous avons ajouté des traceurs fluorescents pour la mesure PIV. Ces traceurs fluorescents de taille micrométrique pouvant contaminer l'interface, nous avons voulu vérifier qu'ils n'avaient pas d'influence sur l'hydrodynamique. Nous avons donc réalisé une campagne de mesure par ombroscopie dans laquelle la phase liquide est identique à celle des mesures PIV. Nous avons ainsi vérifié que les traceurs fluorescents n'ont pas d'influence décelable sur l'hydrodynamique des bulles.

4.2 Description des lois horaires

Afin d'étudier la déformation et la trajectoire des bulles ainsi que leur mouvement de rotation autour de leur barycentre, il est nécessaire d'introduire des grandeurs spécifiques. La détection de la surface projetée de la bulle S dans le plan des plaques, nous permet de calculer son barycentre G de coordonnées $\vec{x}_G = 1/n \sum_n^{k=1} \vec{x}_k$ à partir des n points détectés comme appartenant à une bulle. La description du mouvement de la bulle se fera au moyen de la vitesse de G de composantes V_x et V_y qui sert également à calculer l'angle β_v entre le vecteur vitesse et l'axe Ox (figure 4.9). La forme sera caractérisée à partir de la matrice d'inertie M_I de cette surface. La matrice est définie à partir des moments et produits d'inertie pondérés par une masse volumique unité. Dans la base de projection (x, y) , on calcule donc $I_x = 1/n \sum_n^{k=1} (y_k - y_G)^2$ et $I_y = 1/n \sum_n^{k=1} (x_k - x_G)^2$ ainsi que le produit d'inertie $I_{xy} = 1/n \sum_n^{k=1} (x_k - x_G)(y_k - y_G)$. On a alors la matrice d'inertie qui s'écrit :

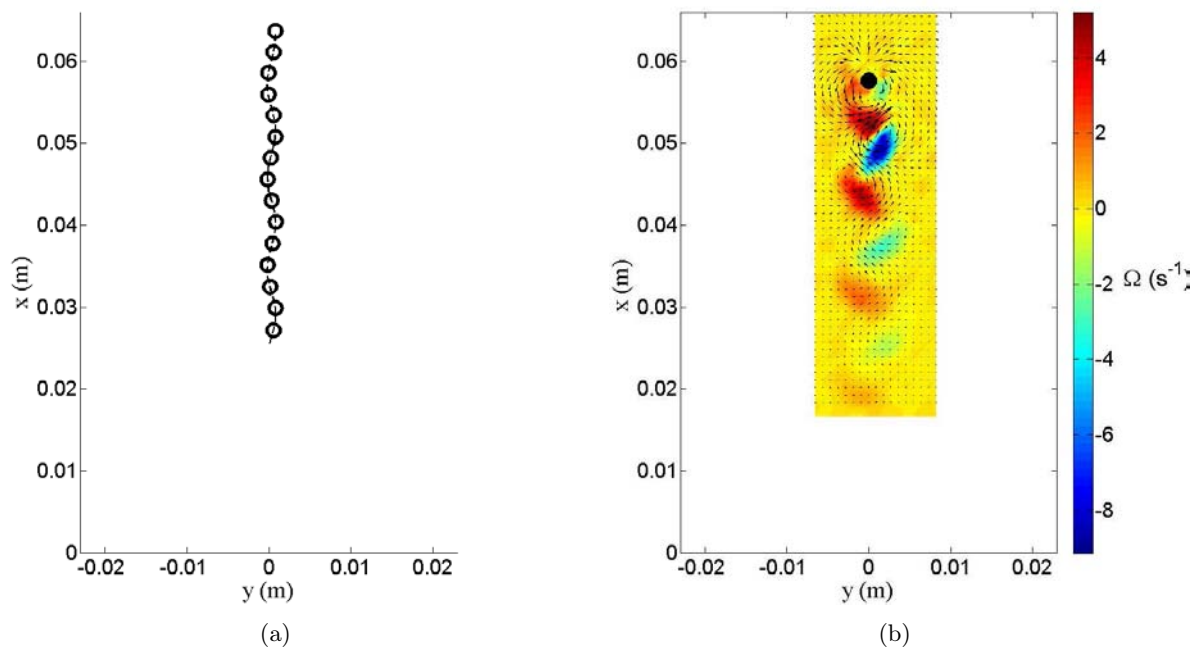


FIG. 4.5: Bulle en ascension entre les plaques pour $e/d=0.625$, $Ar=220$ et $Bo=0.34$ ($\alpha = 0^\circ$). (a) forme et trajectoire; (b) champ de vitesse et de vorticit .

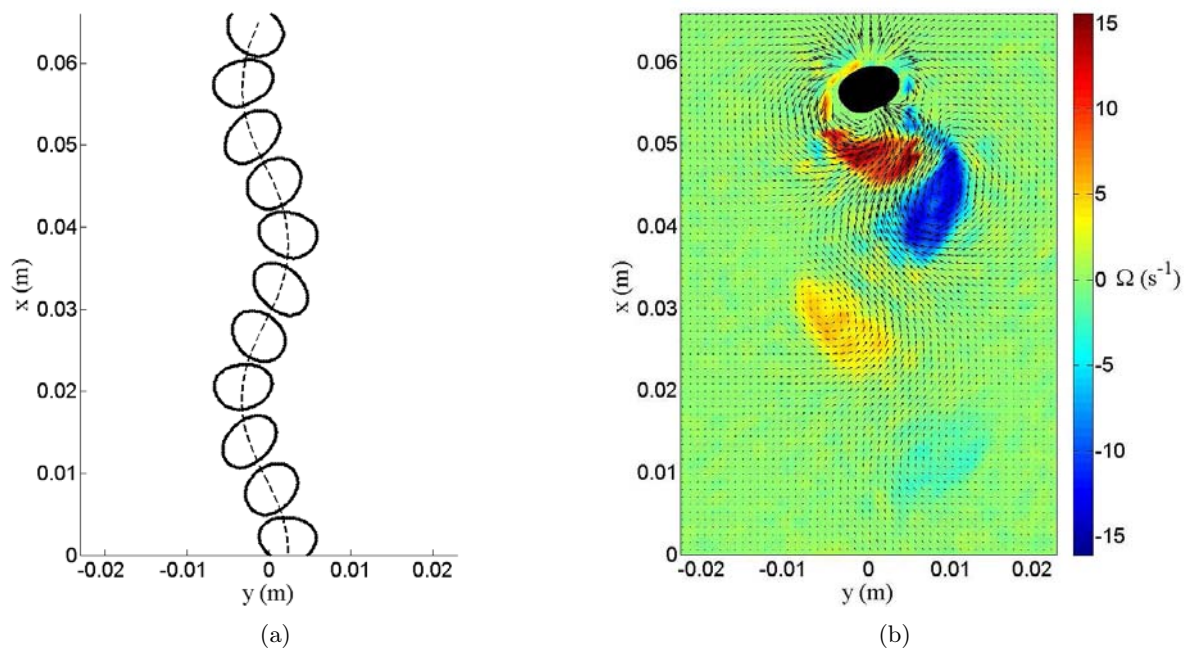


FIG. 4.6: Bulle en ascension entre les plaques pour $e/d=0.164$, $Ar=1450$ et $Bo=5$ ($\alpha = 0^\circ$). (a) forme et trajectoire; (b) champ de vitesse et de vorticit .

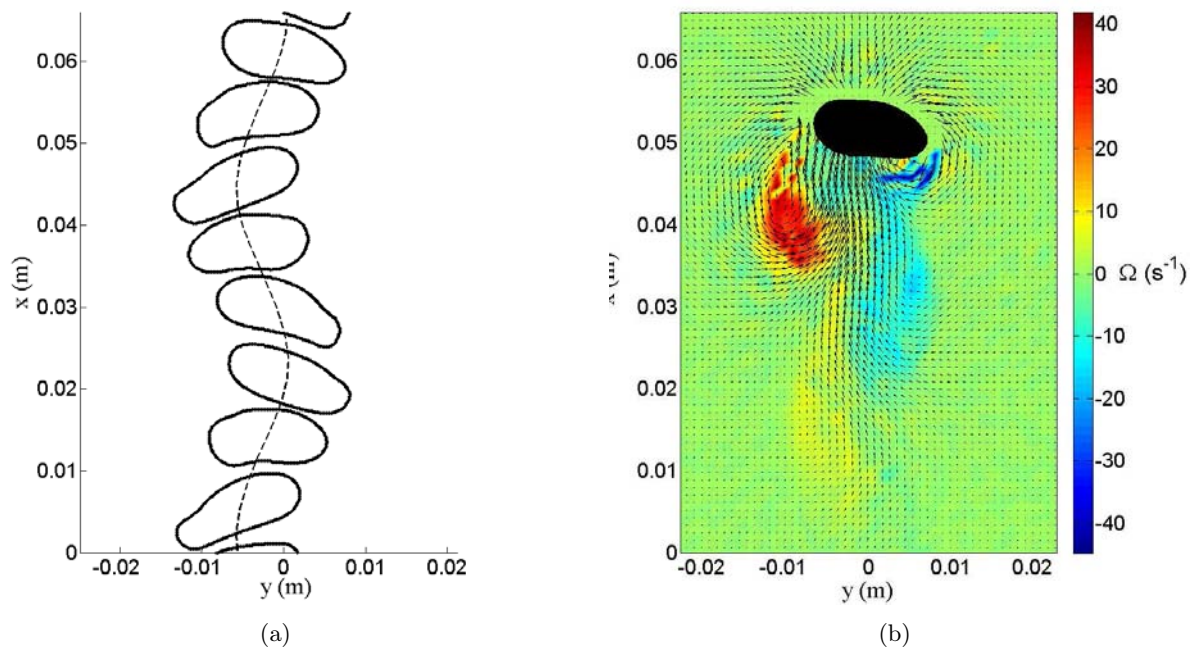


FIG. 4.7: Bulle en ascension entre les plaques pour $e/d=0.103$, $Ar=3000$ et $Bo=12.5$ ($\alpha = 0^\circ$). (a) forme et trajectoire; (b) champ de vitesse et de vorticité.

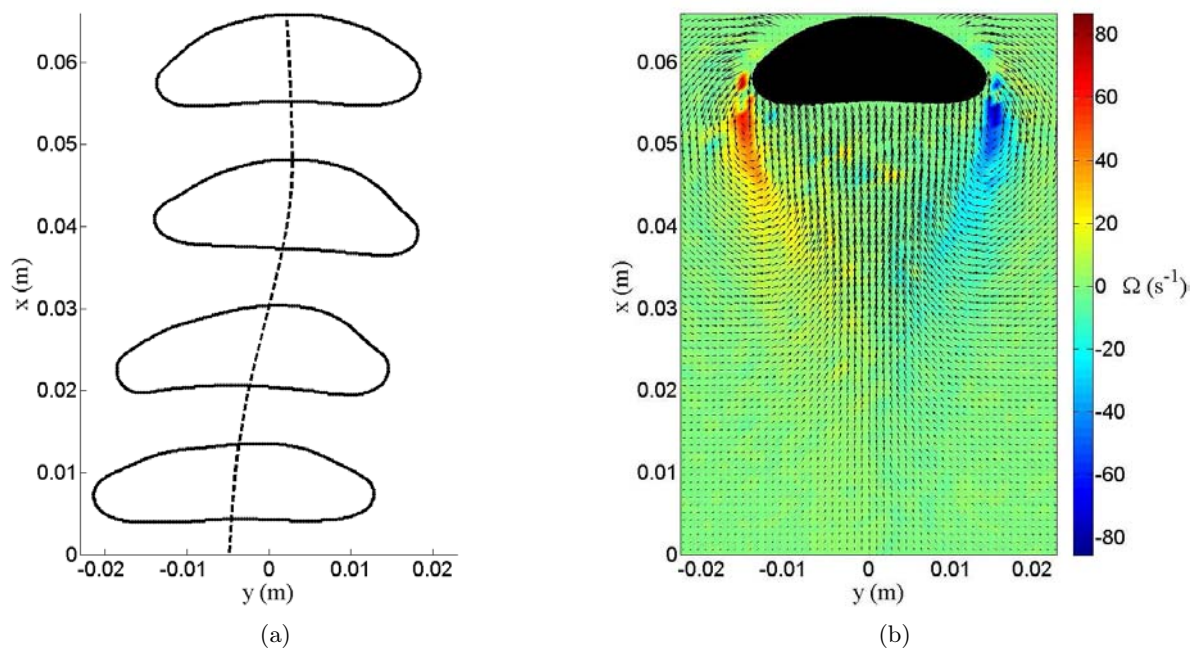


FIG. 4.8: Bulle en ascension entre les plaques pour $e/d=0.059$, $Ar=7000$ et $Bo=39.3$ ($\alpha = 0^\circ$). (a) forme et trajectoire; (b) champ de vitesse et de vorticité.

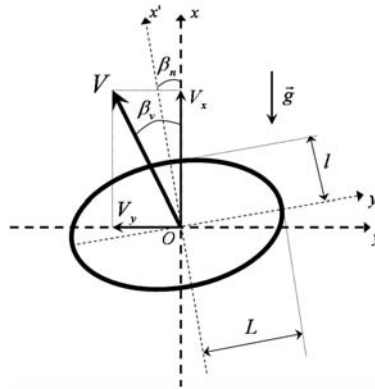


FIG. 4.9: Paramètres de forme et de trajectoire pour une bulle ellipsoïdale inclinée d'un angle β_n par rapport à l'axe vertical et de vitesse V .

$$M_I = \begin{pmatrix} I_x & -I_{xy} \\ -I_{xy} & I_y \end{pmatrix}_{Oxy} = \begin{pmatrix} I'_x & 0 \\ 0 & I'_y \end{pmatrix}_{Ox'y'} \quad (4.1)$$

Ici $Ox'y'$ est le repère principal de la matrice d'inertie. On l'identifie par diagonalisation de M_I , ce qui nous permet de définir l'inclinaison de la bulle en introduisant le paramètre β_n qui est l'angle entre l'axe Ox et l'axe Ox' du repère principal (figure 4.9). La forme de la bulle sera décrite par le paramètre $\lambda = \sqrt{I'_x/I'_y}$. Pour une bulle dont la forme est proche d'un ellipsoïde, λ s'interprète comme le rapport entre le grand axe de l'ellipse L , et son petit axe l (figure 4.9). Dans le cas d'un cercle, il est bien évident que $\lambda = 1$. L'écart de ce paramètre à l'unité témoigne donc d'un aplatissement. Pour des formes plus complexes que les ellipses la description de la forme par la seule grandeur λ est certainement perfectible, mais nous verrons que ce paramètre qui rend compte de l'élongation globale, est suffisant pour caractériser l'essentiel de la dynamique.

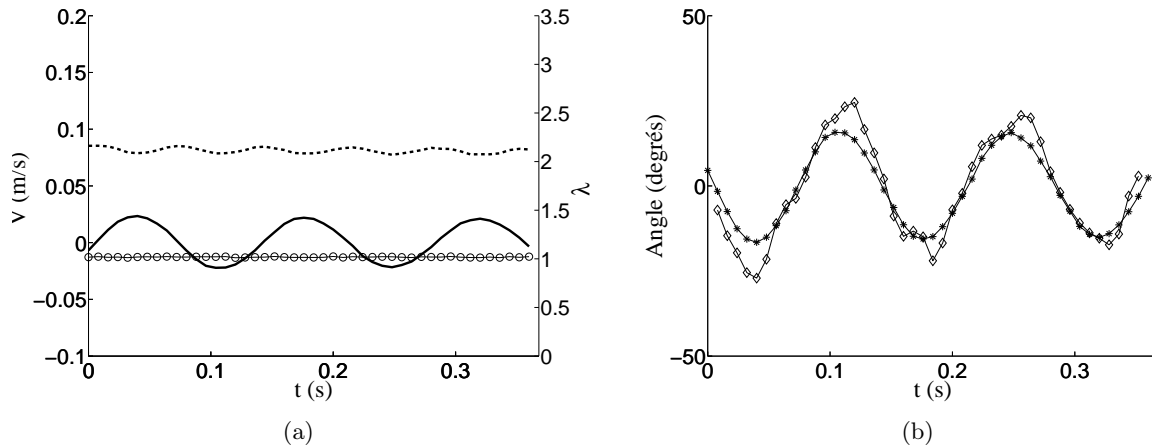


FIG. 4.10: Evolution des paramètres au cours du temps pour une bulle telle que $e/d=0.625$, $Ar=220$ et $Bo=0.34$ ($\alpha = 0^\circ$) : (a) Vitesse et rapport de forme ; - $-V_x$; $-V_y$; \circ - λ ; (b) inclinaisons ; \diamond - β_n ; $*$ - β_v .

Les figures 4.10 à 4.13 présentent les évolutions temporelles des paramètres V_x , V_y , λ , β_v et β_n qui décrivent la forme et la trajectoire des bulles décrites sur les figures 4.5 à 4.8. Pour

les plus petites bulles de diamètres 1.6, 6.1 et 9.7mm, les signaux sont périodiques. Pour le cas $d = 1.6mm$ (figure 4.10 (a)), le paramètre λ n'oscille cependant pas. En dessous d'une certaine taille, en effet, la tension superficielle impose une forme constante qui, en projection, est celle d'un disque ($\lambda=1$). Pour d'autres raisons, au dessus d'une certaine taille, de l'ordre de 16 à 17mm, les oscillations de la trajectoire et de la déformation disparaissent (figure 4.13 (a)). Lorsqu'il y a oscillation, la fréquence fondamentale des signaux ressort très nettement, et pour les bulles telles que $d \approx < 7mm$, l'évolution des paramètres est quasiment sinusoïdale. Une première observation montre que la vitesse axiale $V_x(t)$ a une fréquence double de celle de la vitesse transversale $V_y(t)$. Ce résultat classique s'explique du fait de la symétrie suivant l'axe vertical de la trajectoire. Le paramètre de déformation λ oscille avec une pulsation de 2ω et l'inclinaison de la bulle β_n ainsi que celle du vecteur vitesse β_v à la pulsation ω . Aussi, on peut affirmer que la déformation et l'oscillation du mouvement sont synchrones. Nous nous intéresserons dans la suite à l'évolution en fonction du nombre d'Archimède de la pulsation ω , des amplitudes des signaux et de leurs déphasages. Ces amplitudes et déphasages qui permettent de décrire le mouvement général de la bulle sont obtenus en lissant les enregistrements expérimentaux par les lois horaires suivantes :

$$V_x = U + \tilde{V}_x \cos(2\omega t + \phi_{ux}) \quad (4.2)$$

$$V_y = \tilde{V}_y \cos(\omega t + \phi_{uy}) \quad (4.3)$$

$$\lambda = \lambda_m + \tilde{\lambda} \cos(2\omega t + \phi_\lambda) \quad (4.4)$$

$$\beta_n = \tilde{\beta}_n \cos(\omega t + \phi_{\beta_n}) \quad (4.5)$$

$$\beta_v = \tilde{\beta}_v \cos(\omega t + \phi_{\beta_v}) \quad (4.6)$$

Pour des nombres d'Archimède élevés, certains signaux temporels s'écartent de pures formes sinusoïdales, dans ces cas particuliers nous définirons des amplitudes à partir des valeurs crête-à-crête.

4.3 Analyse physique et régimes d'écoulements

4.3.1 Grandeurs moyennes

Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, la bulle peut avoir un mouvement oscillatoire et une interface de forme variable au cours du temps. Avant d'étudier en détails l'évolution de ces instabilités de mouvement et de forme, nous allons nous intéresser aux grandeurs moyennes des paramètres lorsqu'on observe la bulle sur un nombre entier de périodes nT . La taille du champ nous permet de visualiser 2 ou 3 périodes du mouvement pour l'ensemble des bulles étudiées exceptées les plus larges, pour lesquelles on observe entre 1 et 2 périodes. Les grandeurs moyennes considérées sont le rapport de forme moyen λ_m et la vitesse moyenne U définis par :

$$\lambda_m = \frac{1}{nT} \int_0^{nT} \lambda dt \quad (4.7)$$

$$U = \frac{1}{nT} \int_0^{nT} V_x dt \quad (4.8)$$

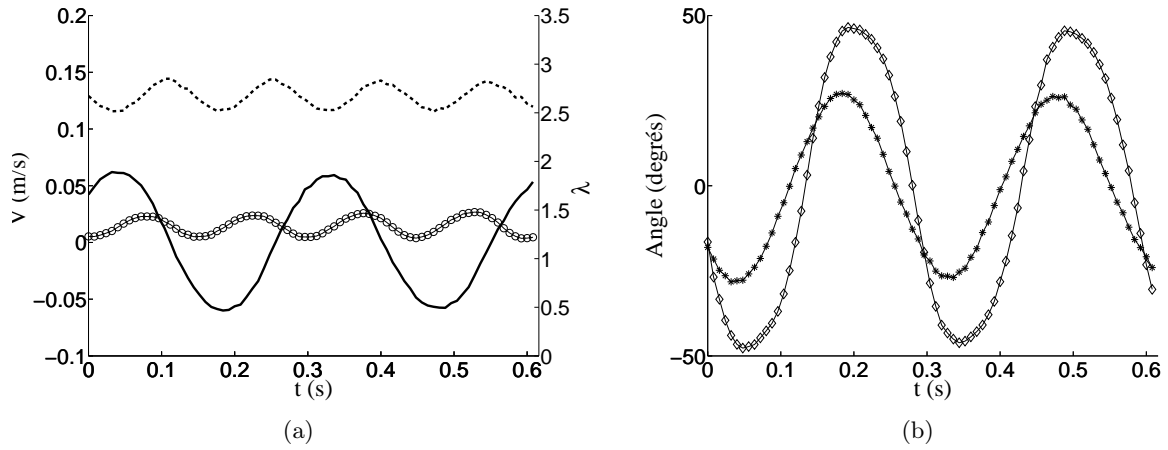


FIG. 4.11: Evolution des paramètres au cours du temps pour une bulle telle que $e/d=0.164$, $Ar=1450$ et $Bo=5$ ($\alpha = 0^\circ$) : (a) Vitesse et déformation; $-V_x$; $-V_y$; \circ - λ ; (b) inclinaisons; \diamond - β_n ; $*$ - β_v .

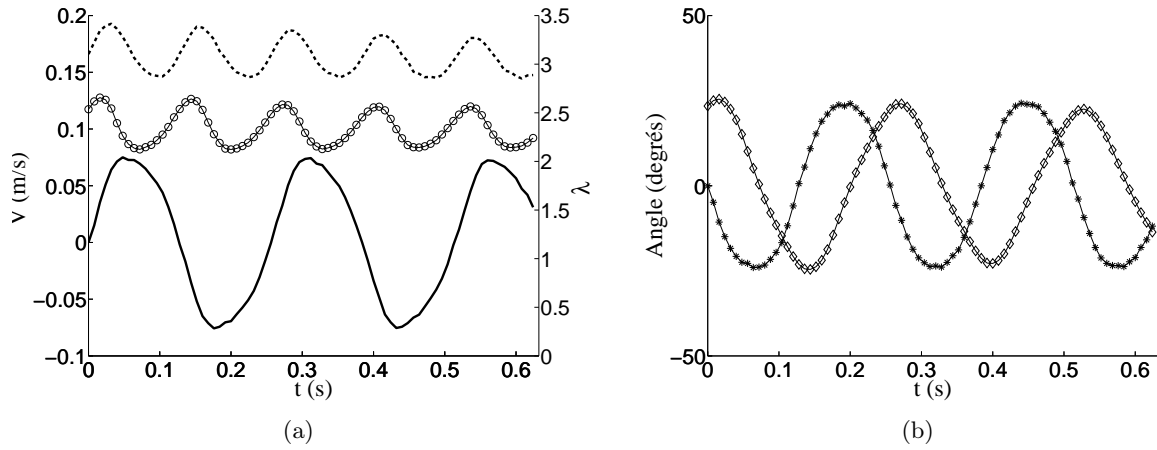


FIG. 4.12: Evolution des paramètres au cours du temps pour une bulle telle que $e/d=0.103$, $Ar=3000$ et $Bo=12.5$ ($\alpha = 0^\circ$) : (a) Vitesse et rapport de forme; $-V_x$; $-V_y$; \circ - λ ; (b) inclinaisons; \diamond - β_n ; $*$ - β_v .

Les oscillations que nous avons observées loin de la zone d'injection permettent de définir des grandeurs moyennes reproductibles indépendantes du développement initial de la trajectoire.

Formes moyennes

Le paramètre λ_m qui caractérise la forme moyenne autour de laquelle l'interface de la bulle oscille est représenté en fonction de Ar sur la figure 4.14. Pour $Ar < 600$, λ_m est égal à 1, indiquant que la forme moyenne des bulles en projection dans le plan des plaques est un disque de diamètre d . La bulle représentée en figure 4.5(a) pour $Ar = 220$ illustre ce régime. Nous notons que le nombre de Bond pour ces bulles est inférieur à 1 (figure 4.2), signe que l'effet de la gravité n'est pas suffisant pour déformer l'interface. Au delà de $Ar = 600$, λ_m augmente indiquant que les bulles deviennent tout d'abord ellipsoïdales et sont de plus en plus applaties suivant leur grand axe, pour évoluer ensuite vers des formes plus complexes également applaties. Pour des

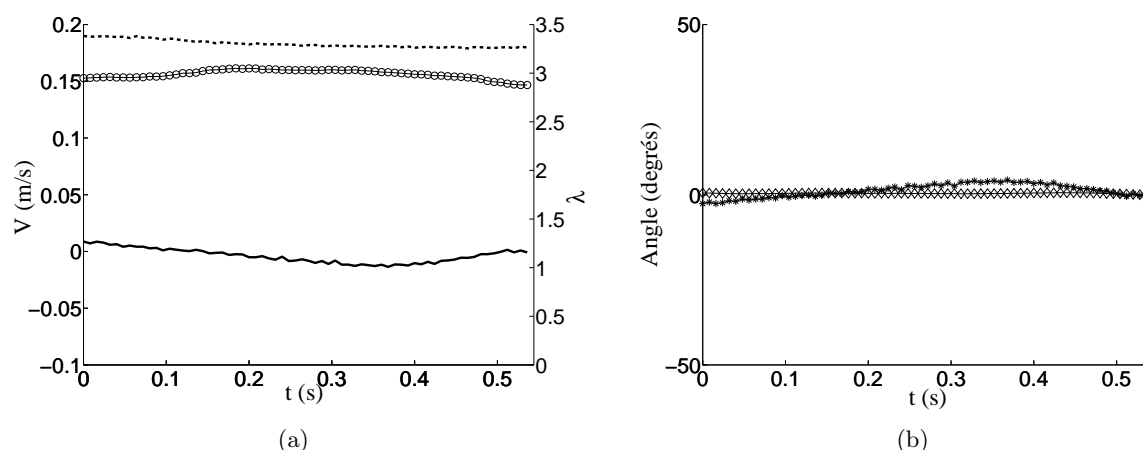


FIG. 4.13: Evolution des paramètres au cours du temps pour une bulle telle que $e/d=0.059$, $Ar=7000$ et $Bo=39.3$ ($\alpha = 0^\circ$). : (a) Vitesse et rapport de forme; - $-V_x$; - $-V_y$; \circ - λ ; (b) inclinaisons; \diamond - β_n ; $*$ - β_v .

valeurs du nombre d'Archimède supérieures à environ 3500, les valeurs de λ_m saturent autour de 3. Si l'on observe la forme des bulles pour de telles valeurs du nombre d'Archimède on s'aperçoit que la symétrie avant-arrière des formes est rompue, que l'interface arrière devient concave et que les bulles ont toutes une forme de calotte (voir les bulles pour $Ar = 6040$ et $Ar = 8500$ de la figure 4.4). La saturation de λ_m s'explique donc par une évolution homothétique de la forme des calottes aux plus forts nombres d'Archimède. La génération de bulles stables de tailles supérieures à 3cm environ, associées à des nombres d'Archimède encore plus grands, s'est avérée impossible dans notre installation. Ces bulles se rompaient la plupart du temps avant d'atteindre le haut de la cellule. Nous retiendrons comme spécificité de cette étude les changements importants des formes moyennes dans la gamme des nombres d'Archimède explorés.

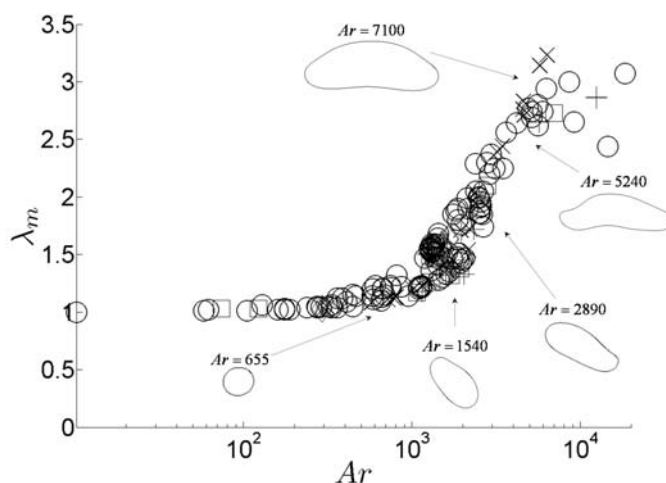


FIG. 4.14: Evolution du paramètre de forme moyenne λ_m en fonction de Ar . (différentes inclinaison des plaques : \circ $\alpha = 0^\circ$; \times $\alpha = 0^\circ$ solution avec rhodamine; $+$ $\alpha = 20^\circ$; \square $\alpha = 40^\circ$; \diamond $\alpha = 60^\circ$)

Vitesses moyennes

La vitesse moyenne d'ascension des bulles est le résultat d'un équilibre spécifique qui peut mettre en jeu des forces de frottement dans les films et sur la surface périphérique de la bulle contournée par l'écoulement. Nous avons tracé sur la figure 4.15 l'évolution du nombre de Reynolds $Re = Ud/\nu$ en fonction du nombre d'Archimède. Pour Ar variant de 0 à environ 5000, l'évolution de Re est linéaire avec une pente de 1/2. Au-delà, la droite d'équation $Re = 0.5Ar$ surestime les points expérimentaux, mais il existe toujours une relation affine entre Re et Ar de pente légèrement plus faible. En explicitant les expressions de Re et Ar , la relation $Re \cong 0.5Ar$ permet de montrer que U est une vitesse gravitationnelle s'écrivant

$$U \cong 0.5\sqrt{g \cos\alpha d} \quad (4.9)$$

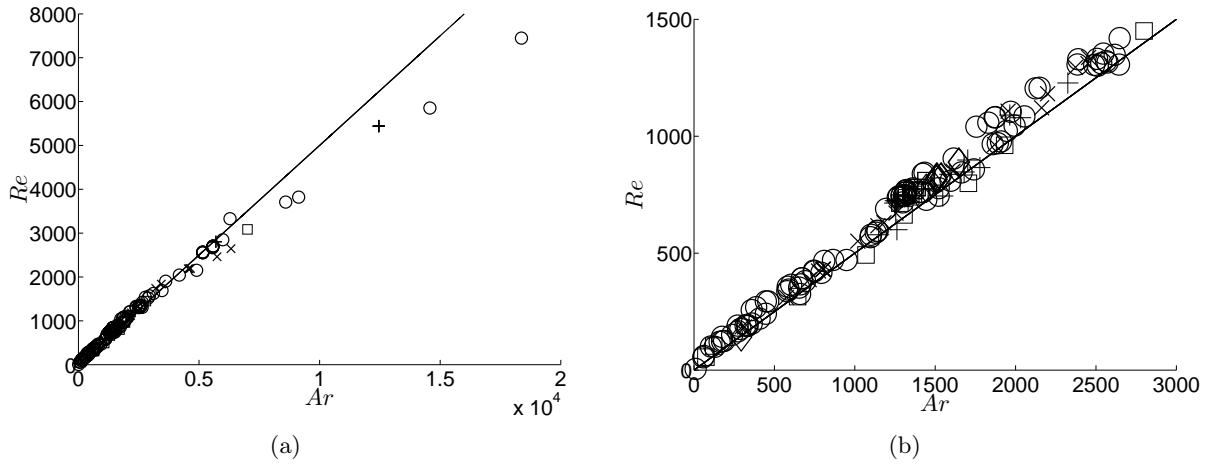


FIG. 4.15: Re en fonction de Ar pour différentes inclinaison des plaques. \circ $\alpha = 0^\circ$; \times $\alpha = 0^\circ$ solution avec rhodamine; $+$ $\alpha = 20^\circ$; \square $\alpha = 40^\circ$; \diamond $\alpha = 60^\circ$.

La loi de vitesse trouvée expérimentalement permet de discuter le bilan des forces pour le mouvement moyen selon la direction x . Il s'écrit

$$-\rho g \cos\alpha \mathbf{V} + \frac{1}{2}\rho C_D U^2 e d + 2\xi\mu \frac{U}{h} S_f = 0 \quad (4.10)$$

où \mathbf{V} est le volume de la bulle, S_f la surface du film et C_D le coefficient de traînée correspondant à l'écoulement périphérique. Le paramètre ξ est un indicateur binaire de la contamination de l'interface : valant 1 dans le cas d'une interface avec condition de non glissement et 0 lorsqu'il y a glissement. Les trois termes de cet équilibre des forces exercées sur la bulle sont (de gauche à droite) la poussée d'Archimède, la force de traînée issue de l'écoulement en contact avec la périphérie de la bulle, et la force s'opposant au mouvement exercée par les films de liquide. On estime la contrainte associée à cette force par $\mu U/h$ où h est l'épaisseur des films liquides entre la bulle et les plaques.

Pour des bulles propres, les interfaces sont mobiles de sorte que le film liquide ne joue aucun rôle dans le bilan des forces. On a donc $\xi = 0$ et l'équation 4.10 se simplifie en :

$$-\rho g \cos\alpha \mathbf{V} + \frac{1}{2}\rho C_D U^2 e d = 0 \quad (4.11)$$

Si l'on estime le volume par $\pi d^2 e/4$, cette équation est équivalente à la loi expérimentale donnée par la relation 4.9 à condition que $C_D = 2\pi$.

Pour des bulles contaminées, les interfaces peuvent être immobiles (condition de non glissement), on a alors $\xi \neq 0$ dans l'équation 4.10. La prise en compte du frottement dans les films avec $\xi = 1$ donne alors une loi de vitesse en contradiction avec les résultats expérimentaux. On peut donc conclure que les films ne contribuent pas de manière significative à la force de traînée totale qui s'exerce sur la bulle, et que les interfaces sont vraisemblablement mobiles.

En utilisant l'estimation du volume par la relation 2.3, et en remplaçant la loi de vitesse trouvée expérimentalement (relation 4.9) dans l'équation 4.11, on trouve une évolution du coefficient de traînée moyen en fonction de Ar . Ce coefficient de traînée est représenté sur la figure 4.16 qui montre qu'il varie peu et converge vers la valeur constante 2π lorsque Ar augmente (et que e/d décroît). Cette valeur est en accord avec les résultats expérimentaux de Bessler et Littman (1987) obtenus pour des bulles bidimensionnelles en forme de calottes à grands nombres d'Archimède et de Bond. Notre étude étend donc leur résultat à une gamme plus étendue de nombres de Bond, incluant à la fois des bulles de forme ellipsoïdale et des calottes.

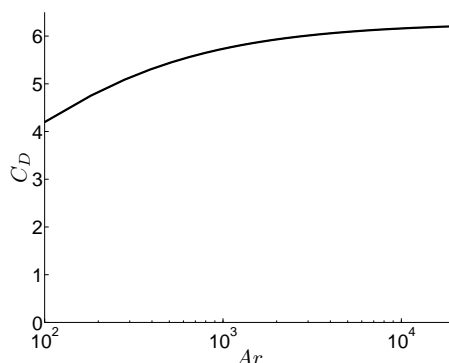


FIG. 4.16: Variation du coefficient de traînée de la bulle déterminé à partir de la loi de vitesse expérimentale.

Nous avons essayé de comprendre l'origine de la faible déviation de la loi expérimentale $Re(Ar)$ par rapport à $Re = 0,5Ar$ aux grands nombres d'Archimède.

Pour cela nous avons commencé par examiner les conséquences des changements de forme. En effet, le résultat donné par l'équation 4.9 est similaire à la loi de vitesse d'ascension de bulles à calottes sphériques, qui dans le cas tridimensionnel, est proportionnelle à la racine carrée du rayon de courbure au point d'arrêt. Si l'on suppose : (i) que la courbure de l'interface est imposée par la gravité, (ii) que la pression à l'intérieur de la bulle est constante, et (iii) que l'écoulement proche du point d'arrêt est potentiel, l'utilisation du théorème de Bernoulli sur la ligne de courant passant à la surface de la bulle donne une loi de vitesse très proche des résultats expérimentaux (Davies et Taylor 1950). Dans le cas de calottes bidimensionnelles les travaux de Collins (1965) montrent de même que la vitesse de la bulle s'écrit :

$$U_{th} = 0.5\sqrt{g \cos\alpha r_n} \quad (4.12)$$

où r_n est le rayon de courbure au nez. Pour pouvoir comparer l'expression théorique de la relation (4.12) avec nos résultats expérimentaux, il faut exprimer le rayon de courbure au nez d'une bulle en fonction des grandeurs du problème. Pour $Ar < 3000$ le contour des bulles peut être

raisonnablement décrit par une ellipse (voir figure 4.4). Ainsi, en assimilant la surface projetée S de la bulle à celle d'une ellipse de même aire et de rapport entre le grand axe L et le petit axe l donné par λ_m , on obtient une estimation du rayon de courbure au nez r_n de la bulle r_n qui s'écrit

$$r_n \cong K^2 d \quad (4.13)$$

où

$$K = (\lambda_m^3/4)^{1/4} \quad (4.14)$$

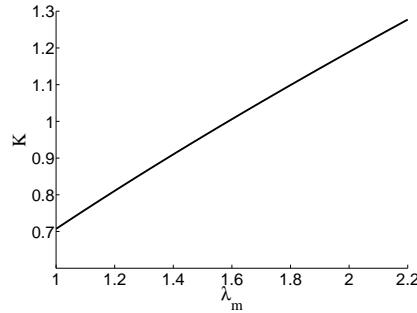


FIG. 4.17: Variation du coefficient K avec la déformation moyenne λ_m pour $10 < Ar < 3000$.

Cette estimation de r_n permet de ré-écrire la loi (4.12) pour la vitesse sous la forme

$$U_{th} = 0.5K \sqrt{g \cos \alpha d} \quad (4.15)$$

Pour $Ar < 3000$ les valeurs de K données par la relation 4.14 sont tracées sur la figure 4.17. Elles sont comprises entre 0.7 et 1.27 ce qui implique que les vitesses calculées à partir de l'expression théorique de Collins sont proches de nos valeurs expérimentales. L'autre gamme de nombres d'Archimède dans laquelle il est possible d'estimer la courbure au nez de la bulle correspond à $Ar > 7000$. Les bulles ont alors une forme de calotte hémicylindrique (figure 4.4) pour laquelle on peut prendre $K = (2/\pi (\gamma - \sin \gamma))^{-1/4}$ où l'angle γ est défini sur la figure 4.18. Pour l'ensemble des calottes on mesure $\gamma \approx 5\pi/8$ comme dans l'expérience de Collins (1965). Le coefficient K est donc égal à 1.23, ce qui implique que $U_{th} \approx U$. A la précision des mesures près, le changement de pente de $Re(Ar)$ dans nos mesures ne s'explique donc pas par un changement de forme et de rayon de courbure au nez.

L'atténuation de la vitesse aux grands Ar par rapport à la loi expérimentale $Re \approx 0.5Ar$ pourrait être le signe d'une contamination faible des interfaces. Nous n'avons pas les moyens d'entrer dans une discussion de la physique des interfaces et notamment des temps caractéristiques associés à la capture de contaminants. On peut simplement constater qu'une rigidification partielle et minimale des films, que l'on représenterait par un coefficient ξ faible devant 1 dans l'équation 4.10, apporterait la faible correction recherchée pour les grands nombres d'Archimède.

4.3.2 Oscillations de trajectoire et de forme

Dans cette partie, nous discutons les résultats expérimentaux que nous avons obtenus sur les instationnarités des mouvements des bulles. Les oscillations de trajectoire et de forme de bulles libres d'évoluer dans l'espace tridimensionnel à grand nombre de Reynolds ont donné lieu

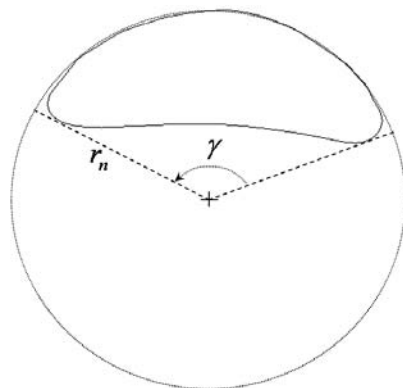


FIG. 4.18: Définition de l'angle γ à partir du contour d'une bulle pour $Ar = 14132$, $Bo = 107$, $e/d = 0.036$.

à diverses investigations tant expérimentales (Lunde et Perkins, 1998 ; Ellingsen et Risso, 2001 ; Shew et Pinton, 2006) que numériques (Magnaudet et Mougin, 2006) qui ont mis en évidence le rôle prépondérant du couplage avec les instabilités du sillage. Par contre, en situation confinée dans une cellule de Hele-Shaw, les oscillations du mouvement des bulles ont été peu étudiées. Bush et Eames (1998) donnent une description qualitative sommaire des régimes d'oscillations observables pour des nombres adimensionnels semblables aux nôtres. Et Kelley et Wu (1997) ont limité leur étude à la détermination du seuil critique d'instabilité des trajectoires de bulles 2D circulaires pour des faibles nombres de Bond.

La dynamique des bulles que nous explorons est caractérisée par des nombres de Bond et d'Archimède évoluant dans de larges gammes. Dans ces conditions nous allons observer l'apparition de divers régimes dynamiques très contrastés où les différents degrés de liberté du mouvement des bulles voient leurs amplitudes éventuellement amplifiées ou atténuées. Des couplages entre les oscillations de trajectoire et de forme sont présents, mais ils évoluent selon les régimes. Il est donc nécessaire pour appréhender les mécanismes dominants d'examiner simultanément, dans des régimes ciblés, les évolutions des divers paramètres que sont la fréquence, les amplitudes et déphasages. Nous présentons donc tout d'abord un commentaire général des évolutions de ces paramètres en fonction du nombre d'Archimède pour désigner les limites des régimes que nous avons identifiés. Nous analyserons ensuite en détails chacun de ces régimes.

On définit le nombre de Strouhal $St = \frac{\omega d}{U}$ qui rend compte sous forme adimensionnelle de la pulsation des oscillations ω . L'évolution de St avec le nombre d'Archimède est représentée sur la figure 4.19(a). Ce nombre de Strouhal est nul aux valeurs extrêmes du nombre d'Archimède, et évolue de manière continue entre $Ar_{c1} = 10^2$ et $Ar_{c5} = 10^4$ environ. Lorsque Ar est plus petit ou supérieur à ces valeurs limites des régimes de trajectoires rectilignes sans oscillations de forme des bulles sont observés. Mais pour des nombres d'Archimède intermédiaires, des oscillations couplées du mouvement du barycentre de la bulle, de sa rotation et de sa forme existent. Dans ces régimes oscillants, le nombre de Strouhal évolue avec Ar de la valeur unité caractéristique des instabilités de sillage d'un corps de section circulaire à des valeurs plus élevées allant jusqu'à 3. Nous avons là une signature du couplage entre l'instabilité du sillage et les oscillations de la bulle. Cette évolution est très liée aux changements de la forme moyenne des bulles qui s'écarte du cylindre quand Ar augmente (figure 4.19(b)). Les lâchers tourbillonnaires sont en effet sensibles à l'aplatissement moyen de ces dernières. Nous discuterons cela ultérieurement.

Sur les figures 4.20(a), (b) et (c) sont reportées les évolutions des amplitudes des oscillations de vitesse longitudinale et transversale, ainsi que l'amplitude de l'inclinaison du vecteur vitesse

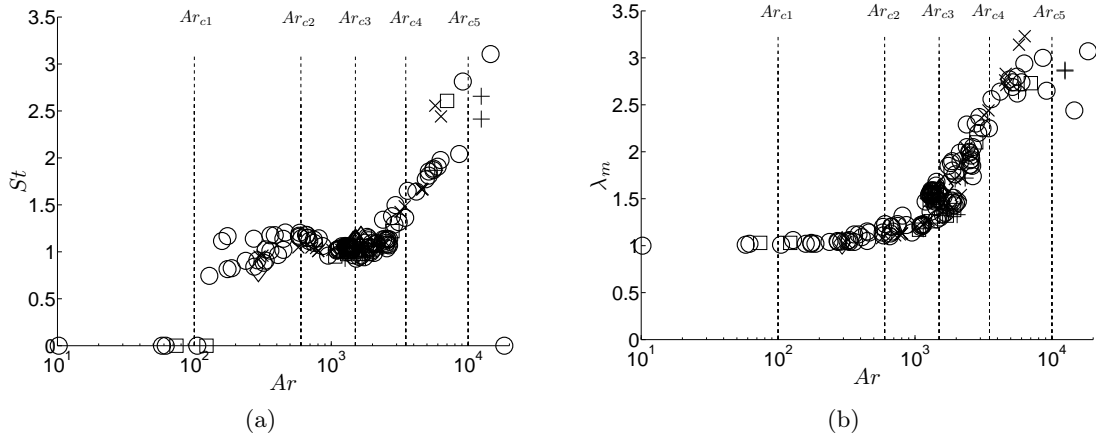


FIG. 4.19: Evolution des fréquences et de la forme moyenne en fonction de Ar . (a) Nombre de Strouhal St ; (b) Paramètre de forme moyenne λ_m . (\circ $\alpha = 0^\circ$; \times $\alpha = 0^\circ$ solution avec rhodamine; $+$ $\alpha = 20^\circ$; \square $\alpha = 40^\circ$; \diamond $\alpha = 60^\circ$).

$\tilde{\beta}_v$. A la dispersion des mesures près, on observe des évolutions complexes des oscillations de trajectoire avec le nombre d'Archimède puisque l'amplitude de ces oscillations n'évolue pas de façon monotone. L'amplitude \tilde{V}_y est supérieure à \tilde{V}_x , mais toutes deux évoluent de manière similaire. A ce stade de notre analyse nous notons qu'apparaît un seuil critique Ar_{c1} de l'ordre de 100 au-delà duquel les trajectoires deviennent instables; et que les oscillations de trajectoire sont amplifiées jusqu'à un deuxième nombre d'Archimède noté Ar_{c2} de l'ordre de 600. Au delà de Ar_{c2} , plutôt que d'observer une poursuite de l'amplification ou une saturation des amplitudes du mouvement, on observe une décroissance brutale et simultanée des oscillations \tilde{V}_x/U , \tilde{V}_y/U et $\tilde{\beta}_v$. Cette décroissance se poursuit jusqu'à $Ar_{c3} = 1500$ environ. Dans la gamme des nombres d'Archimède compris entre 1500 et $Ar_{c4} = 3500$ environ le mouvement oscillant est amplifié de nouveau, avant d'aborder un régime au-delà de Ar_{c4} où les oscillations de vitesse vont s'atténuer jusqu'à disparaître pour des Ar supérieurs au dernier nombre d'Archimède de transition que nous avons défini : $Ar_{c5} = 10^4$.

La forme des bulles ne se met à osciller qu'à partir de Ar_{c3} (figure 4.21(a)). La gamme des nombres d'Archimède proches de Ar_{c3} correspond à une gamme où le nombre de Bond croît rapidement avec Ar (figure 4.2), où la tension superficielle, qui jusque là rendait les bulles peu déformables, devient désormais insuffisante pour stabiliser la forme des bulles. La mesure des amplitudes λ est assez bruitée, mais on peut cependant percevoir des changements de pente sur son évolution en fonction de Ar qui sont localisés autour des nombres d'Archimède de transition déjà définis. Au delà de Ar_{c5} les oscillations de forme ont disparu.

Dans les régimes où les bulles ont une trajectoire oscillante, le couplage de leur dynamique avec les instabilités du sillage engendre également un mouvement de rotation oscillant autour de leur barycentre. L'amplitude de ce mouvement $\tilde{\beta}_n$ suit une évolution $\tilde{\beta}_n(Ar)$ moins complexe que les amplitudes du mouvement en translation ou de déformation. On observe simplement que l'inclinaison extrême des bulles pendant une oscillation croît avec Ar jusqu'à environ Ar_{c2} pour diminuer ensuite. Le déphasage entre l'inclinaison de la trajectoire $\beta_v(t)$ et l'orientation de la bulle $\beta_n(t)$ est noté $\phi_{\beta_{nv}}$. Il est reporté en fonction de Ar sur la figure 4.21. Ce déphasage est égal à 0 pour $Ar < Ar_{c3}$, il augmente ensuite pour saturer à une valeur de l'ordre de 2 au delà de Ar_{c4} . L'évolution monotone de $\phi_{\beta_{nv}}$ pour $Ar_{c3} < Ar < Ar_{c4}$ est similaire à celle observée pour le déphasage de corps rigides mobiles de révolution aplatis quand leur rapport de forme augmente (Fernandes, Ern, Risso et Magnaudet, 2005; Fernandes, Risso, Ern et Magnaudet, 2007). Dans

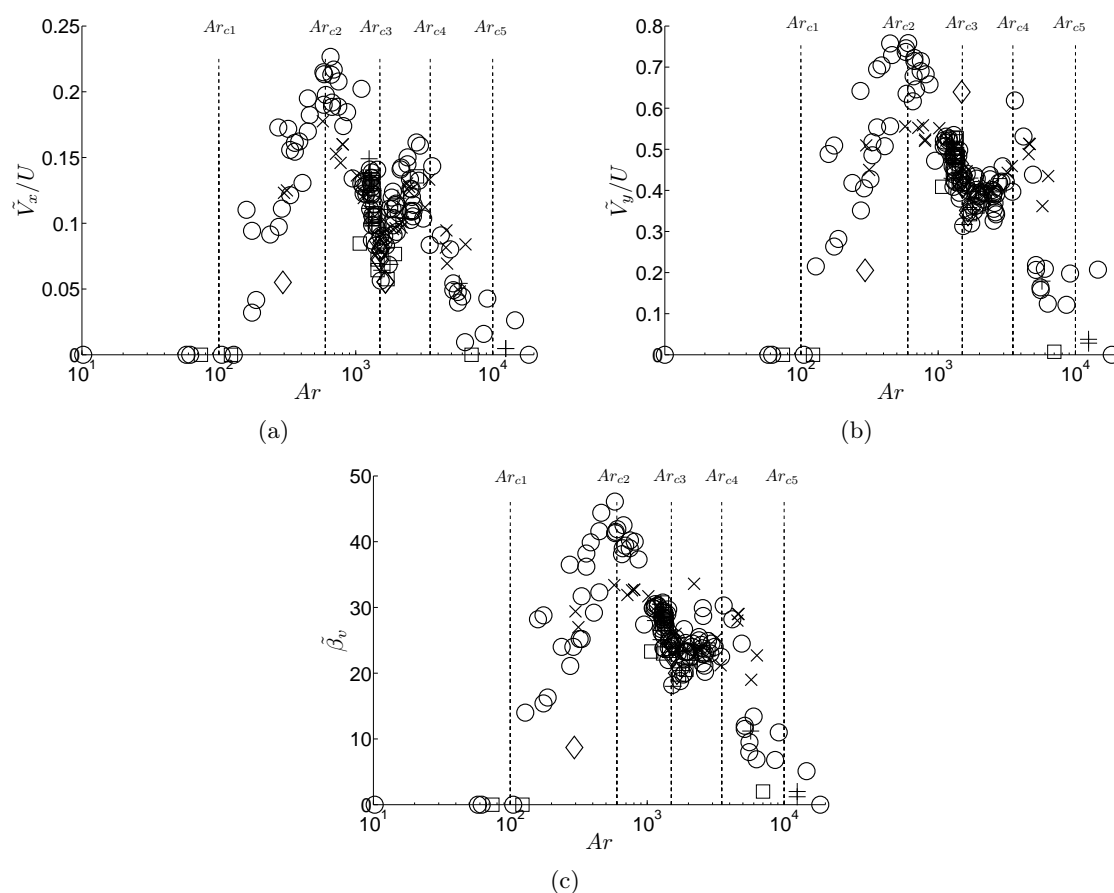


FIG. 4.20: Evolution des amplitudes du mouvement barycentrique en fonction de Ar . (a) Amplitude des oscillations de vitesse axiale \tilde{V}_x/U ; (b) Amplitude des oscillations de vitesse transversale \tilde{V}_y/U ; (c) Amplitude de l'inclinaison du vecteur vitesse $\tilde{\beta}_v$. (\circ $\alpha = 0^\circ$; \times $\alpha = 0^\circ$ solution avec rhodamine ; $+$ $\alpha = 20^\circ$; \square $\alpha = 40^\circ$; \diamond $\alpha = 60^\circ$).

cette étude le rapport de forme des corps solides évolue à Ar fixé. Le rapport de forme de nos bulles λ_m évolue en même temps que Ar (figure 4.19(b)) en raison de la déformation imposée par la gravité, mais il semble que, comme dans le cas des corps rigides aplatis, le rapport de forme moyen du corps impose le déphasage $\phi_{\beta_{vn}}$.

Revenons sur l'analyse des différents régimes d'oscillations que nous avons mis en évidence. Pour faciliter la discussion nous avons construit une figure résumant les évolutions des principales grandeurs caractéristiques des oscillations (St , λ_m , $\tilde{\lambda}$, \tilde{V}_y/U , $\tilde{\beta}_n$ et $\phi_{\beta_{vn}}$) en prenant soin de schématiser ces évolutions dans chaque régime (figure 4.22). Le lecteur pourra, pour plus de commodité, s'y reporter chaque fois que nous ferons appel aux figures 4.19 à 4.21 qui représentent les données expérimentales réelles.

Régime $Ar < Ar_{c1}$ et seuil d'apparition des oscillations

En dessous de $Ar_{c1} \approx 110$ il n'existe aucune oscillation ni de trajectoire, ni de forme. La valeur critique Ar_{c1} au-delà de laquelle une instabilité de trajectoire apparaît peut être comparée aux valeurs déterminées par Kelley et Wu (1997) pour des nombres de Bond similaires. Les résultats expérimentaux de Kelley et Wu permettent de tracer l'évolution de Ar_c en fonction du paramètre e/d (figure 4.23). Leur dispositif expérimental, dont la géométrie est similaire à notre cellule

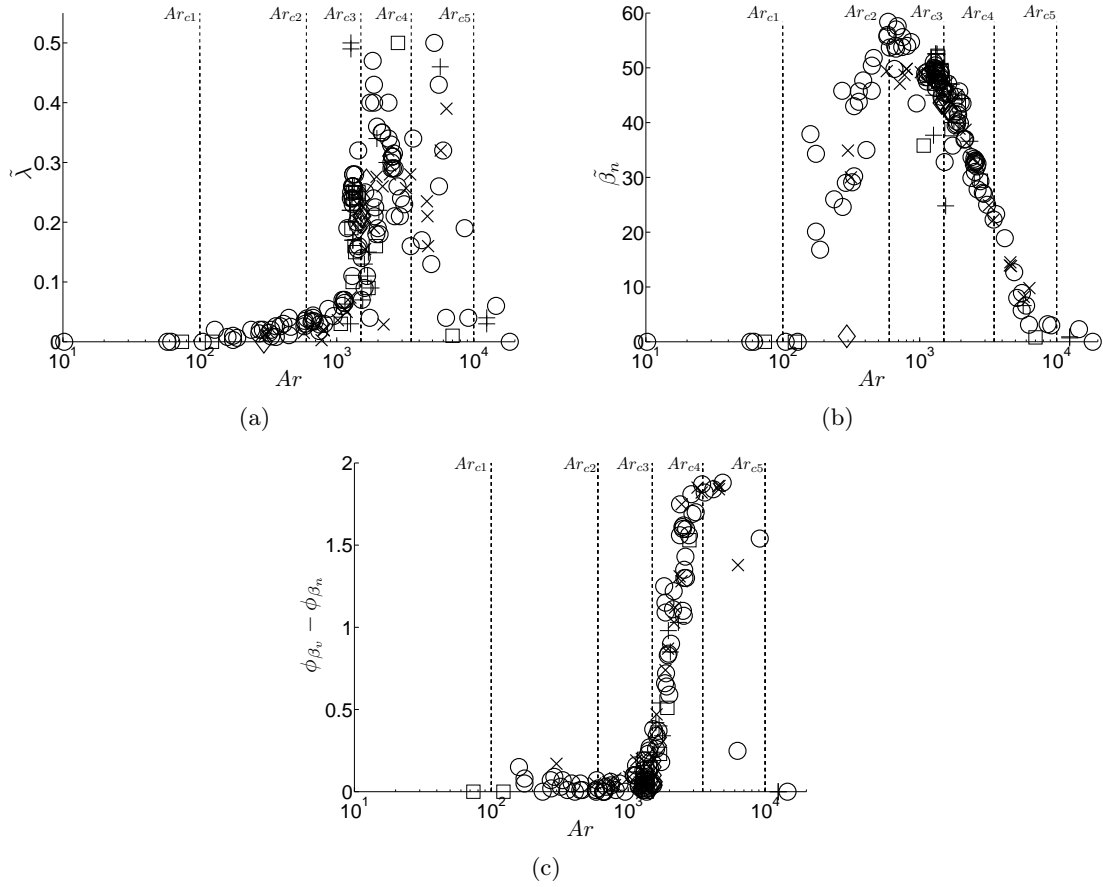


FIG. 4.21: (a) Amplitude des oscillations de la déformation $\tilde{\lambda}$; (b) Amplitude des oscillations de l'inclinaison de la bulle $\tilde{\beta}_n$; (c) déphasage entre β_v et β_n . (\circ $\alpha = 0^\circ$; \times $\alpha = 0^\circ$ solution avec rhodamine; $+$ $\alpha = 20^\circ$; \square $\alpha = 40^\circ$; \diamond $\alpha = 60^\circ$).

bidimensionnelle, permet d'injecter des bulles de même volume, indépendamment de l'inclinaison du dispositif. Cela leur a permis de faire varier Ar tout en gardant le rapport e/d constant et de rechercher le seuil d'instabilité à e/d fixé. Leurs résultats montrent que Ar_c diminue lorsque e/d augmente. Dans notre cas, e/d et Ar n'évoluent pas indépendamment (figure 4.1), et pour $Ar \approx Ar_{c1}$ nos bulles ne sont pas aplatis mais sphériques ($e/d \cong 1$). On observe sur la figure 4.23 que notre valeur de Ar_{c1} s'inscrit néanmoins dans la tendance de Ar_c à décroître lorsque e/d augmente.

Régime $Ar_{c1} < Ar < Ar_{c2}$

Dans ce régime, l'instabilité du sillage est déclenchée et excite des oscillations de trajectoire et d'orientation des bulles qui vont être amplifiées avec l'écart au seuil d'instabilité (figures 4.20 et 4.21(b)). La valeur de λ_m reste proche de 1 ($1 < \lambda_m < 1.1$ sur la figure 4.19(b)), le nombre de Bond est limité (figure 4.2), et les bulles au final ne présentent pas d'oscillations de forme dans le plan (x, y) autour de la forme moyenne circulaire ($\tilde{\lambda} < 0.05$ sur la figure 4.21(a)). La figure 4.20(a) nous montre que le nombre de Strouhal augmente dans ce régime de façon comparable à ce que l'on peut observer pour une bulle libre de se mouvoir dans l'espace tridimensionnel (Clift, Grace et Weber, 1978). Mais c'est en fait un régime complexe qui se met en place, parce que les valeurs de e/d restent importantes (supérieures à 0,3 comme on peut le voir sur la figure 4.1).

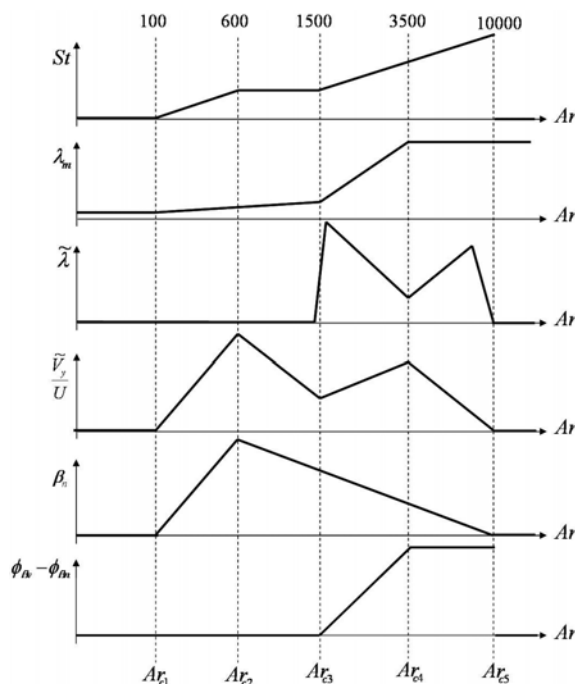
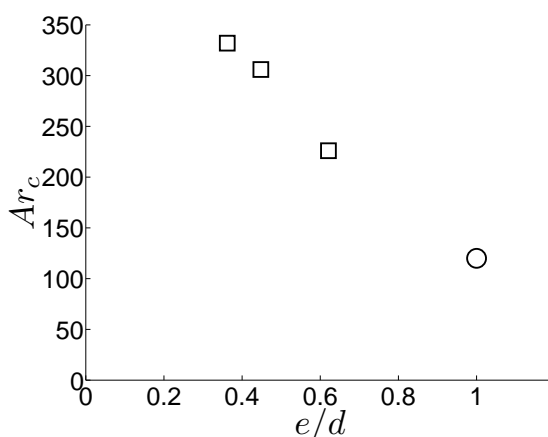


FIG. 4.22: Schéma de l'évolution des paramètres d'oscillations.

FIG. 4.23: Evolution du Nombre d'Archimède critique en fonction du rapport e/d . □ résultats expérimentaux de Kelley et Wu (1997); ○ résultats de la présente étude.

Dans ces conditions, l'écoulement évolue certainement, lorsque le nombre d'Archimède augmente de ses plus faibles valeurs jusqu'à Ar_{c2} , entre un écoulement tridimensionnel autour d'une bulle sphérique entre deux plaques et un écoulement au caractère bidimensionnel bien affirmé.

Régime $Ar_{c2} < Ar < Ar_{c3}$

Désormais les valeurs de e/d sont suffisamment faibles pour que l'écoulement puisse être considéré comme bidimensionnel ($e/d < 0,25$), c'est-à-dire pour que les vitesses perpendiculaires aux plaques soient négligeables. Les formes moyennes projetées des bulles sont des ellipses peu déformées, et ces bulles sont peu sujettes à des oscillations de forme ($1 < \lambda_m < 1,3$ sur la figure 4.19(b) et $\tilde{\lambda} < 0,1$ sur la figure 4.21(a)). Le nombre de Strouhal est remarquablement constant dans ce

régime (4.19(a)) où la forme moyenne des bulles évolue très peu. C'est le signe que l'instabilité est maîtrisée par le sillage. Ce couplage avec la dynamique du sillage était attendu pour des bulles à grand nombre de Reynolds, mais, ce qui est particulier à notre régime bidimensionnel, c'est la décroissance marquée de l'amplitude des oscillations des vitesses \tilde{V}_x/U et \tilde{V}_y/U (figure 4.20) quand les nombres de Reynolds ou d'Archimède augmentent. On peut également noter que l'amplitude de l'inclinaison reste presque constante, voire commence à décroître (4.21(b)). L'atténuation des oscillations de trajectoire s'explique, comme on le montrera à partir des mesures PIV, par le frottement exercé par les plaques sur l'écoulement bidimensionnel. Ce frottement limite l'activité tourbillonnaire produite dans le sillage, qui va donc être de moins en moins apte à entretenir les oscillations de trajectoire. Le nombre de Strouhal restant constant dans ce régime, le temps caractéristique T entre deux lâchers tourbillonnaires croît de manière proportionnel avec Ar . On verra que le temps de vie d'un tourbillon τ_t est par contre fixe et de l'ordre d'une seconde dans nos expériences. Dans ces conditions lorsque le nombre d'Archimède augmente on vérifie que le rapport τ_t/T diminue et la capacité des tourbillons à exciter les oscillations du mouvement de la bulle s'amenuise.

Régime $Ar_{c3} < Ar < Ar_{c4}$

Dès Ar_{c3} , ce régime est marqué par l'apparition subite d'une déformation moyenne notable et d'oscillations de forme importantes, qui resteront présentes jusqu'à la disparition totale de toute oscillation au delà de Ar_{c5} (figure 4.21(a)). Pour ce régime, la forme moyenne des bulles reste néanmoins une ellipse très aplatie de rapport de forme important ($1,5 < \lambda_m < 2,5$ cf figure 4.19(b)).

Le nombre de Bond ayant fortement augmenté, la gravité impose désormais un aplatissement moyen des bulles. L'augmentation de λ_m avec Ar est liée au fait que plus la taille des bulles est grande plus la gravité et l'inertie du fluide déforment la bulle. De plus, comme nous l'avons discuté dans le chapitre 2, la variation du champ de pression autour de la bulle cause préférentiellement une déformation de l'interface dans le plan des plaques. Par conséquent, les fortes valeurs de $\tilde{\lambda}$ s'expliquent par des variations locales de pression provoquées par l'activité tourbillonnaire du sillage qui deviennent du même ordre de grandeur que les variations imposées par la gravité et l'inertie moyenne.

L'augmentation du rapport de forme se traduit par une augmentation du nombre de Strouhal de manière comparable à ce qui est observé pour des corps mobiles (Fernandes, Risso, Ern et Magnaudet, 2007). Le rapport de forme de nos bulles λ_m évoluant en même temps que Ar , il est intéressant de se demander si, comme dans l'étude des corps mobiles pour lesquels Ar pouvait être fixé indépendamment de λ_m , l'instabilité du mouvement est maîtrisée par la forme du corps. En nous inspirant de ce travail, nous avons normalisé St par $\sqrt{\lambda_m}$. La figure 4.24 montre que cette normalisation est également adaptée dans notre cas puisque nous observons que $St/\sqrt{\lambda_m}$ ne dépend plus de Ar dans le présent régime. Cela met en lumière qu'une échelle de vitesse pour les oscillations $\omega.d$ pourrait être $U^* = U\sqrt{\lambda_m}$. Nous avons donc utilisé cette échelle de vitesse pour normaliser l'amplitude des oscillations du mouvement \tilde{V}_y . La figure 4.25 montre que les valeurs de $\tilde{V}_y/\omega d$ sont presque constantes pour $Ar_2 < Ar < Ar_3$, ce qui confirme l'importance de la déformation moyenne qui modifie l'échelle de vitesse pour les oscillations. La légère diminution de $\tilde{V}_y/\omega d$ avec Ar traduit certainement l'effet du frottement aux parois qui est toujours spécifique à notre étude. De façon similaire à ce qui est observé pour des corps mobiles, l'augmentation de λ_m et le changement de forme de la bulle qui lui est associé expliquent l'augmentation du déphasage $\phi_{\beta_{nv}}$. Les rapports de forme ne sont pas définis de la même manière dans les deux études, et ils ne varient pas dans la même gamme. Malgré tout, il est possible de comparer les

évolutions du déphasage quand le rapport de forme évolue en traçant ce déphasage en fonction de $c_1\lambda_m$ où $c_1 = 1$ pour les corps rigides et $c_1 = 3$ pour nos bulles (figure 4.26). Ce coefficient c_1 rend compte des écarts de définition ou de signification des rapports de forme pour le problème 3D associé à des disques rigides et le problème 2D du mouvement des bulles. Il est remarquable que, malgré les différences évidentes entre des disques épais en ascension dans un fluide non confiné et des bulles entre deux plaques, on observe que les mêmes lois d'échelle régissent les oscillations du mouvement et de l'orientation. Le rapport de forme apparaît donc comme essentiel dans ces régimes.

La décroissance perceptible de l'amplitude des oscillations de forme avec Ar peut trouver une explication complémentaire avec la dépendance des coefficients de masse ajoutée vis-à-vis de λ_m . En effet, le coefficient de masse ajoutée en translation suivant le petit axe d'une ellipse C_M augmente fortement avec λ_m . Si les oscillations de trajectoire et de forme échangent de l'énergie avec et via les mouvements du fluide dans le sillage, lorsque les bulles sont de plus en plus aplaties la part énergétique à dépenser à la mise en mouvement de fluide devient de plus en plus importante, ce qui pourrait expliquer en partie la décroissance des oscillations de forme. Le même raisonnement permet d'expliquer la décroissance de l'amplitude de l'inclinaison de la bulle quand Ar augmente. Le coefficient de masse ajoutée en rotation étant aussi une fonction croissante de λ_m (Lamb, 1932, Art. 373).

Régime $Ar_{c4} < Ar < Ar_{c5}$

Les bulles, dans ce régime, sont très allongées et très déformées avec une valeur de λ_m constante et égale à 3 indépendamment du nombre d'Archimède (figure 4.19(b)). Les amplitudes de leurs oscillations de forme sont difficiles à appréhender à cause de la non-reproductibilité des mesures, dont nous ignorons la raison. Nous nous gardons donc bien de l'interpréter (figure 4.21(a)). La diminution des amplitudes des vitesses, qui est quant à elle incontestable, est vraisemblablement liée à la transition de forme qui s'accompagne aux plus forts nombres d'Archimède - pour lesquels les oscillations de forme sont également atténuées - d'un changement de structure du sillage. Le déphasage est quand à lui désormais constant pour ces bulles de formes très aplaties.

Régime $Ar > Ar_{c5}$

On observe des calottes dont la forme moyenne n'évolue plus ($\lambda_m \cong 3$). Aucune oscillation n'est plus observée.

L'originalité et la diversité des couplages entre les oscillations du mouvement et de la forme des bulles causent l'existence de différents régimes. L'examen de la dynamique des sillages va jeter un éclairage complémentaire sur leur dynamique.

4.4 Perturbation de vitesse dans le liquide

4.4.1 Evolution de la structure du sillage avec le nombre d'Archimède

Les champs de vitesse obtenus par PIV, permettent de mettre en évidence deux structures bien différentes de sillages dans la gamme des nombres d'Archimède explorée.

On observe jusqu'à $Ar \approx 3500$ des sillages constitués de deux allées de tourbillons contrarotatifs disposés de manière alternée de part et d'autre de la trajectoire de la bulle (figure 4.27). Ces tourbillons sont répartis périodiquement, et la distance entre deux tourbillons tournant dans le même sens correspond à la longueur d'onde de la trajectoire de la bulle. Les lignes de courant

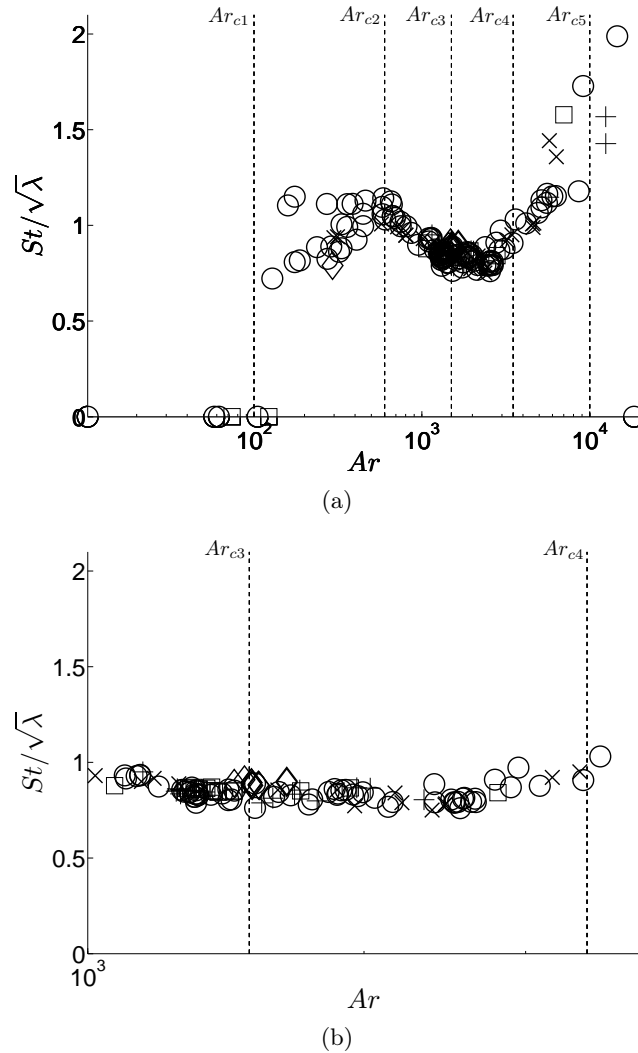


FIG. 4.24: (a) Variation du nombre de Strouhal normalisé par $\sqrt{\lambda}$. (b) Détail de (a) pour $Ar_2 < Ar < Ar_3$ (\circ $\alpha = 0^\circ$; \times $\alpha = 0^\circ$ solution avec rhodamine; $+$ $\alpha = 20^\circ$; \square $\alpha = 40^\circ$; \diamond $\alpha = 60^\circ$).

représentées sur la figure 4.28 montrent clairement la disposition des tourbillons indiqués par les lignes fermées. L'intensité de la vorticit  est  galement montr e sur la figure 4.29. Si on revient sur les figures 4.5, 4.6 et 4.7, on peut observer comment  volue l'all e tourbillonnaire en fonction du nombre d'Archim de. On peut voir notamment que les tourbillons s' tirent et que leur taille relative diminue quand Ar augmente. Les sillages observ s ici ressemblent singulièrement   ceux observ s derri re des cylindres solides rigides en ascension par Ern et al. (2007). Ces auteurs ont montr  que le rapport entre la taille du tourbillon et celle du corps mobile diminuait lorsque le corps devenait plus mince, et que cette  volution  tait li e   la variation du type de mouvement caract ris  par $\phi_{\beta_{vn}}$. Les analogies entre bulles 2D et corps mobiles observ es sur les param tres r gissant le mouvement des bulles, se retrouvent donc aussi dans la structure du sillage. Cette structure est donc vraisemblablement d pendante du rapport de forme moyen λ_m qui est lui-m me une fonction croissante de Ar dans cette gamme de Ar . Pour $Ar < 3500$ environ, la dynamique de la bulle est donc le r sultat d'un couplage  troit entre les instabilit s du sillage qui donnent lieu   des lâchers de tourbillons et les degr s de libert  du mouvement de la bulle

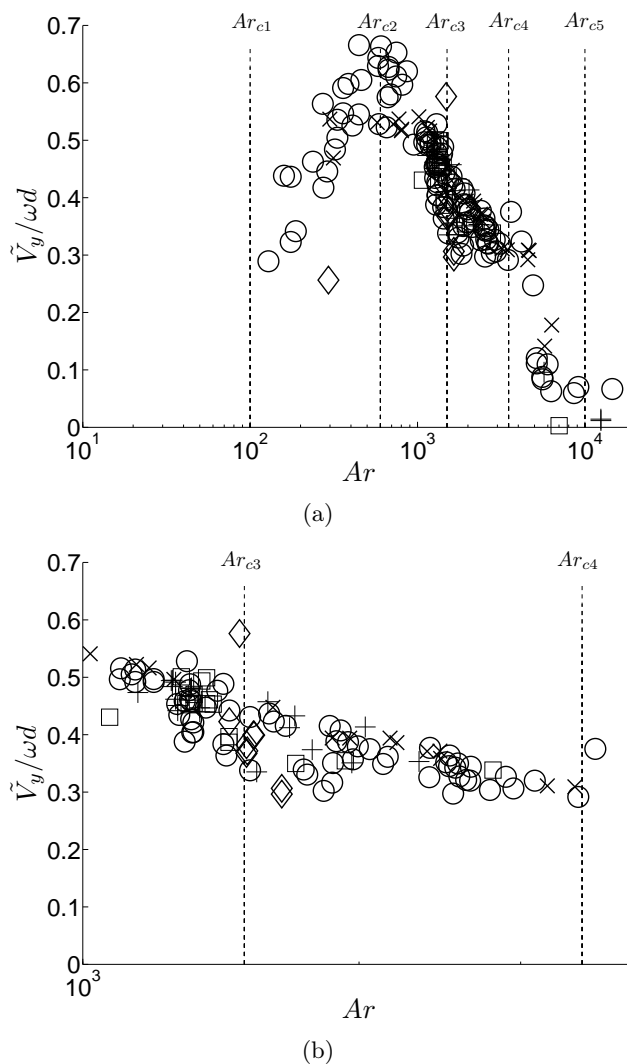


FIG. 4.25: (a) Amplitude de la vitesse axiale normalisée par ωd (b) Détail de (a) pour $Ar_2 < Ar < Ar_3$. (\circ $\alpha = 0^\circ$; \times $\alpha = 0^\circ$ solution avec rhodamine; $+$ $\alpha = 20^\circ$; \square $\alpha = 40^\circ$; \diamond $\alpha = 60^\circ$.)

en translation, rotation et déformation.

Le sillage de bulles telles que $Ar > 6000$ est totalement différent. Il présente une importante région constituée de fluide qui suit la bulle dans son déplacement (figure 4.30). Cette région apparaît clairement lorsque l'on trace les lignes de courant dans le repère de la bulle (figure 4.31 (b)). On met en effet en évidence deux zones de recirculation disposées de part et d'autre de l'axe de symétrie de la bulle. Le champ de vorticit e repr esent e sur la figure 4.32 montre la pr esence d'une forte vorticit e localis ee pr es des zones de courbure maximale de l'interface de la bulle. Contrairement aux sillages d ecrits pr ec edemment, la forte vorticit e de ces deux zones ne produit pas de structures coh erentes pouvant se d etacher de la bulle. Le sillage est stationnaire, ce qui explique que la bulle monte sans oscillations.

Le changement de structure du sillage avec Ar est li e   l' volution de la forme moyenne des bulles mais aussi aux effets sp ecifiques du confinement que nous allons maintenant discuter.

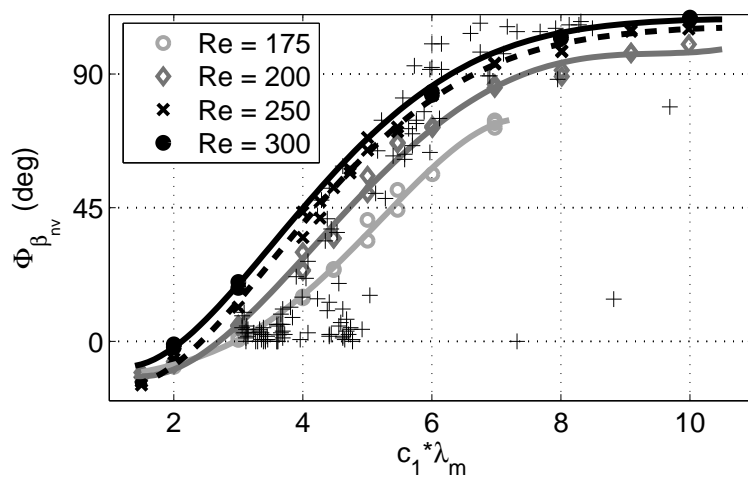


FIG. 4.26: Comparaison entre les déphasages $\phi_{\beta_{vn}}$ de bulles bidimensionnelles déformées et de corps rigides aplatis. (traits : corps rigides $175 < Re < 300$, $c_1 = 1$ (Fernandez et al., 2005); + : présente étude $\alpha = 0^\circ$, $c_1 = 3$)

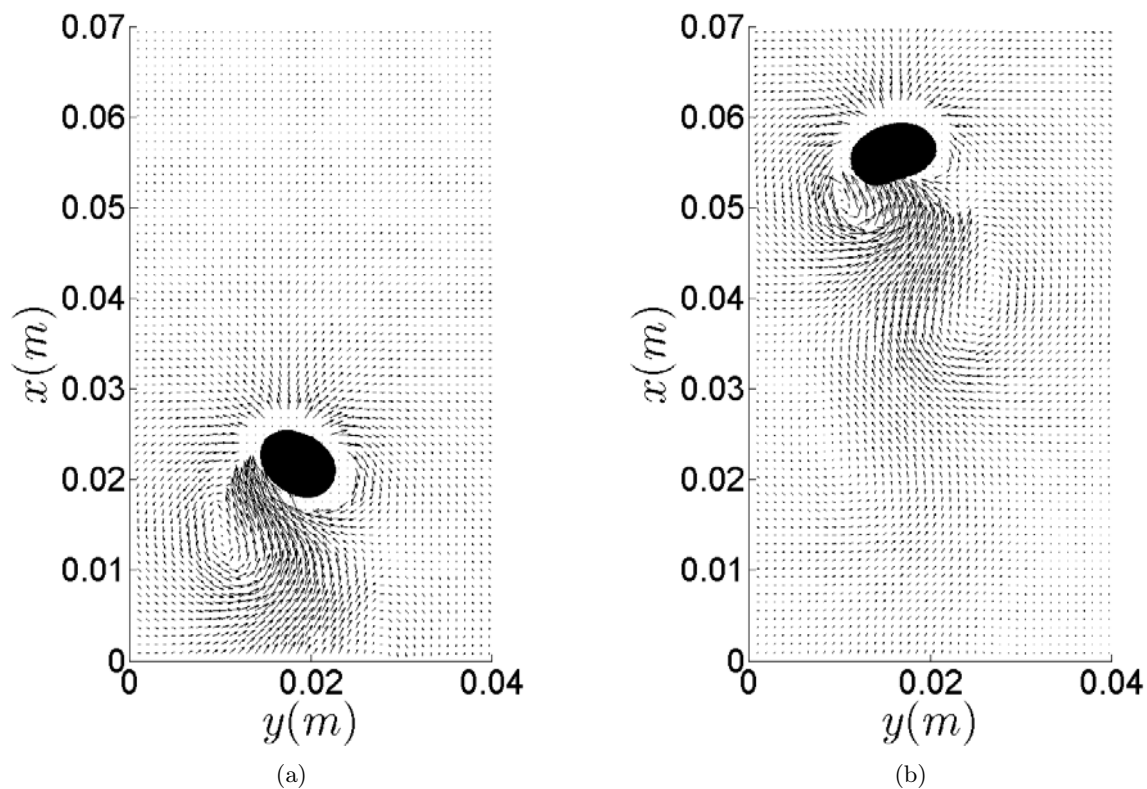
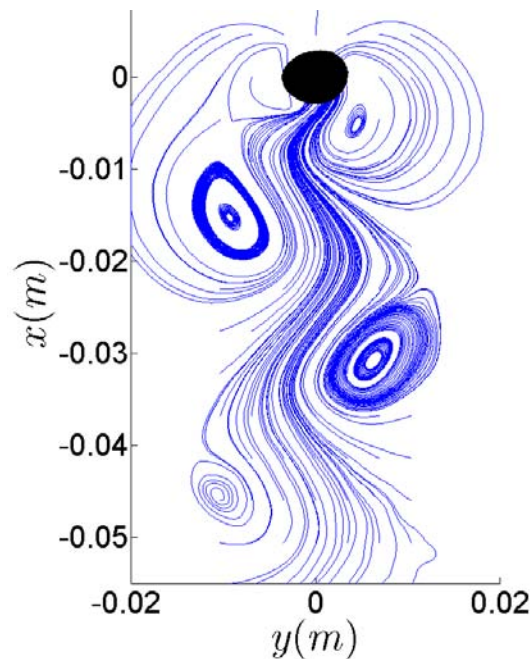
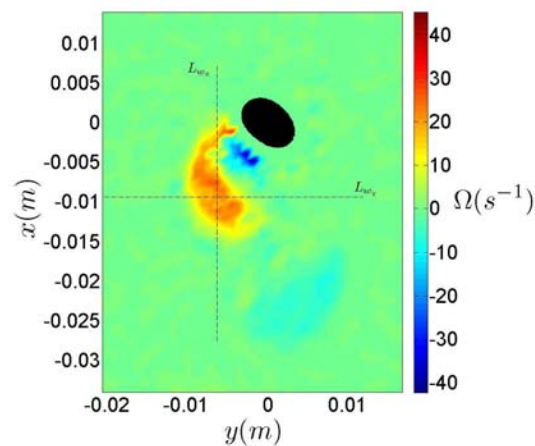


FIG. 4.27: Champ de vitesse pour une bulle à $Ar = 2100$. (a) instant t (b) instant $t + 0.25s$.

FIG. 4.28: Lignes de courant autour d'une bulle à $Ar = 2100$.FIG. 4.29: Champ de vorticit  $\Omega(x, y)$, $Ar = 2100$.

4.4.2 Att nuation de la perturbation de vitesse

Nous nous int ressons maintenant   l' volution de la perturbation de vitesse apr s le passage de la bulle. Dans le cas des sillages pr sentant une all e tourbillonnaire, nous examinerons comment la taille, la position, ainsi que la vorticit  moyenne des tourbillons  voluent au cours du temps. Pour les plus grosses bulles qui pr sentent un sillage attach  sym trique, nous regarderons l' volution de la vitesse instantan e dans le sillage.

Afin de d crire le sillage instationnaire des bulles, nous avons mesur  la vitesse de d placement $V_{\Omega}(t)$ des tourbillons, leur taille $d_{\Omega}(t)$, et leur intensit  moyenne $\Omega_m(t)$. Nous avons d fini ces grandeurs   partir du champ de vorticit  $\Omega(x, y)$. Nous avons tout d'abord proc d    la d tection des tourbillons qui ont  t  identifi s aux r gions connexes du champ de vorticit  o  sa valeur

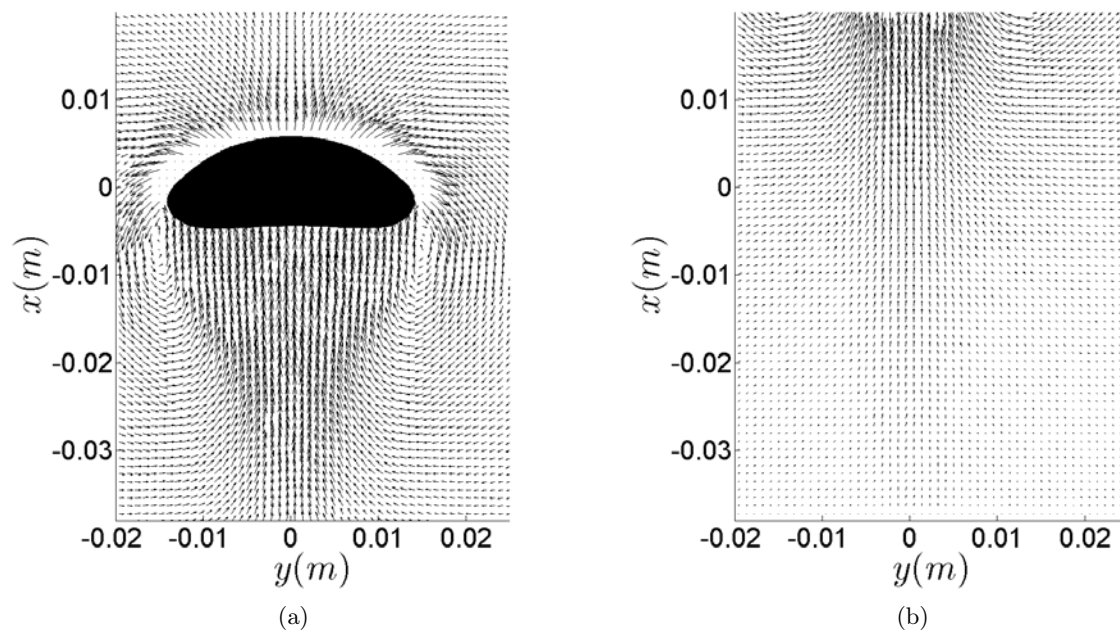


FIG. 4.30: Champ de vitesse pour une bulle à $Ar = 6850$. (a) instant t (b) instant $t + 0.25s$.

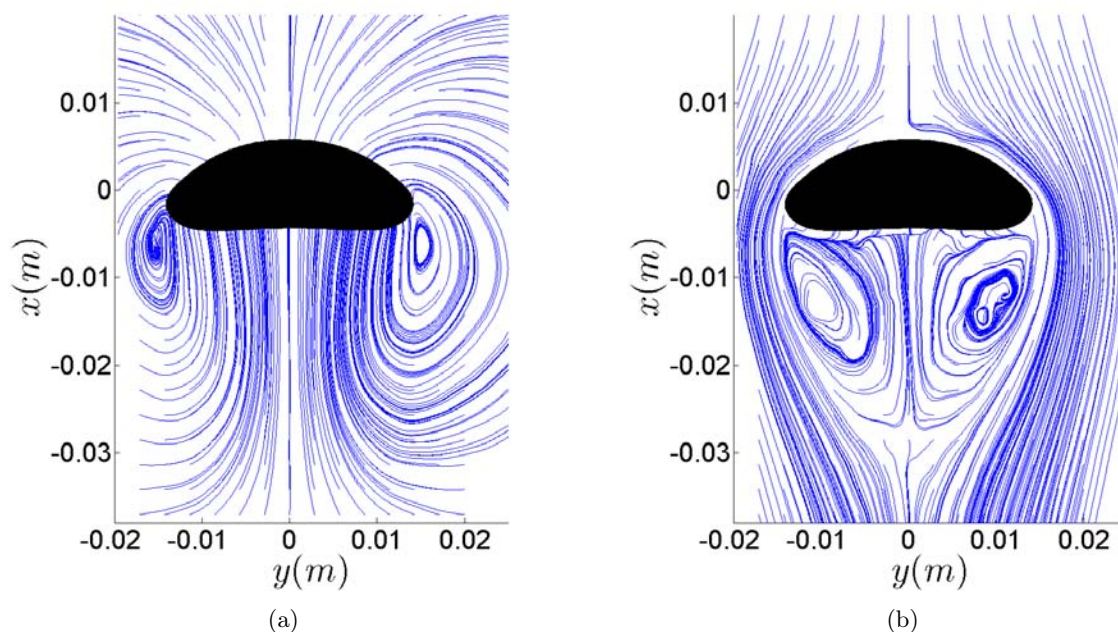
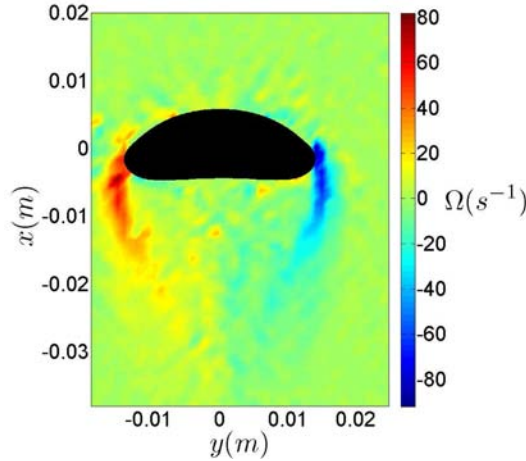


FIG. 4.31: Lignes de courant autour d'une bulle à $Ar = 6850$. (a) dans le repère de la cellule bidimensionnelle (b) dans le repère de la bulle

absolue dépasse le bruit ambiant. Sur la figure 4.29 on identifie ainsi une zone tourbillonnaire autour du point $(x = -1cm; y = -0,5cm)$. Les profils de vorticit e pr elev es dans le voisinage de ce point montrent qu'il est ais e d'identifier les limites du tourbillon par simple application d'un seuil puisque la distribution de vorticit e pr esente des fronts raides (figure 4.33). En g en eral nous avons choisi pour chaque tourbillon un seuil adapt e qui vaut $1/4$ de la valeur maximale de sa vorticit e Ω . A partir de la surface S_Ω obtenue par application de seuil, nous avons calcul e le

FIG. 4.32: Champ de vorticit  $\Omega(x, y)$, $Ar = 6850$.

diam tre  quivalent des tourbillons $d_\Omega = 2\sqrt{S_\Omega/\pi}$. Nous avons  galement d fini la position d'un tourbillon par les coordonn es de son barycentre de vorticit  x_Ω , y_Ω . La vitesse de d placement des tourbillons est donn e par l' volution des positions $(x_\Omega(t), y_\Omega(t))$ obtenues en enregistrant plusieurs champs PIV apr s le passage d'une bulle. L'origine des temps est d finie par extrapolation comme l'instant o  le centre du tourbillon x_Ω aurait la m me c te axiale que le centre de la bulle.

La figure 4.34 montre que l'intensit  des tourbillons d cro t de mani re exponentielle avec le temps quel que soit le nombre d'Archim de entre 700 et 3300 et que la constante de temps caract ristique de la d croissance est ind pendante de Ar . Ce comportement est un r sultat qui indique que la d croissance rapide des tourbillons s'explique par le frottement aux parois qui s'exerce sur eux. On peut  crire une  quation de la vorticit  Ω associ e   l' coulement bidimensionnel   partir du bilan de quantit  de mouvement moyenn  dans l' paisseur (cf  quation 2.10). Si on n glige la diffusion dans le plan des plaques il s' crit :

$$\rho \frac{\partial \vec{V}_m}{\partial t} + \frac{6}{5} \rho (\vec{V}_m \cdot \vec{\nabla}) \vec{V}_m = -\vec{\nabla} P - \frac{12\mu}{e^2} \vec{V}_m \quad (4.16)$$

En n gligeant l' cart du pr facteur $6/5$   la valeur unit  et en prenant le rotationnel de cette  quation on obtient l' quation de la vorticit  :

$$\frac{d\Omega}{dt} = -\frac{12\nu}{e^2} \Omega \quad (4.17)$$

o  d/dt est la d riv e mat rielle.

Lorsqu'on suit un tourbillon le long de sa trajectoire on a donc une att nuation exponentielle de la vorticit  :

$$\Omega(t) = \Omega(0) \exp\left(-\frac{t}{\tau_\Omega}\right) \quad (4.18)$$

o  $\tau_\Omega = \frac{e^2}{12\nu}$ et ν est la viscosit  cin matique de l'eau.

La décroissance observée expérimentalement a un temps caractéristique du même ordre de grandeur $\tau_\Omega \approx \frac{e^2}{6\nu}$, qui est bien indépendant de Ar , mais qui est différent de celui prédit en supposant que le profil de vitesse dans l'espace entre les plaques est parabolique. Pour aller plus loin dans l'analyse il faudrait donc rediscuter nos hypothèses.

La figure 4.35 donne l'évolution de la taille des tourbillons au cours du temps. Elle montre, qu'après une phase de formation, ils gardent une taille constante. Le frottement du fluide aux parois limite tellement la durée de vie des tourbillons, qu'ils n'ont pas le temps de diffuser dans le plan comme nous l'avions supposé. L'échelle de longueur qui normalise les tailles des tourbillons indépendamment du nombre d'Archimède est $d/\sqrt{\lambda} = l$, où l est la longueur du petit axe de l'ellipse de même matrice d'inertie que la bulle. L'apparition de cette échelle de longueur particulière est liée au fait que la vorticité maximale est produite par le contournement de la bulle dans la zone de courbure maximale.

Malgré une certaine dispersion des points expérimentaux, on observe sur la figure 4.36 que la vitesse de déplacement des tourbillons a également une décroissance exponentielle en fonction du temps. Les tourbillons sont advectés dans le sillage et la distribution alternée de vorticité induit une vitesse supplémentaire de déplacement proportionnelle à Ω . Nous allons voir ci-après qu'il est raisonnable de penser que la vitesse moyenne du sillage est amortie de façon exponentielle. La vitesse induite par les tourbillons, proportionnelle à leur vorticité, va également décroître de la même façon. Au final la vitesse de transport des tourbillons s'atténue donc très rapidement.

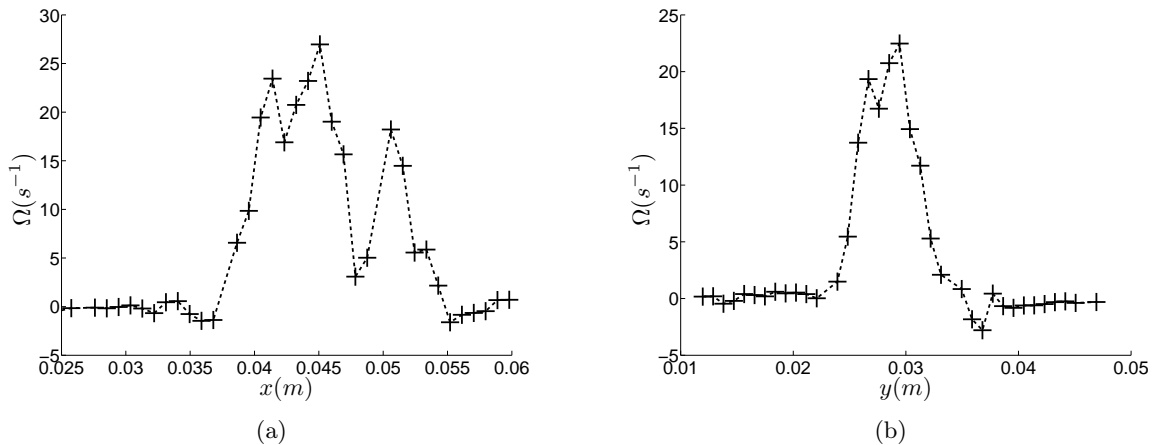


FIG. 4.33: Profils de vorticité. (a) suivant la ligne L_{w_x} ; (b) suivant la ligne L_{w_y} de la figure 4.29.

Contrairement aux sillages instationnaires que nous venons d'étudier, celui des bulles en forme de calotte est stationnaire lorsqu'on se place dans le repère de la bulle qui se déplace à vitesse constante U . Les lignes de courant reportées sur la figure 4.37(a) montrent clairement que le sillage est symétrique à tout instant. En dehors de la zone de recirculation, la vitesse longitudinale absolue V_{m_x} diminue de façon exponentielle le long de l'axe (au-delà de $x\nu/Ue^2 \approx 0,18$, figure 4.37(b)). La côte $x = 0$ sur l'axe correspond au centre de gravité de la bulle. On peut montrer que la cause en est le frottement aux parois en écrivant un bilan simplifié de quantité de mouvement sur l'axe. Dans le repère où la bulle est fixe, l'équation de la quantité de mouvement moyennée dans l'épaisseur et en projection selon x se simplifie sur l'axe de symétrie en utilisant plusieurs hypothèses : (i) la vitesse sur l'axe est purement axiale ($V_{m_y} = 0$), (ii) suffisamment loin de la bulle $V_{m_x} \ll U$ et (iii) le gradient de pression selon x est négligeable. La projection de l'équation sur l'axe Ox s'écrit alors

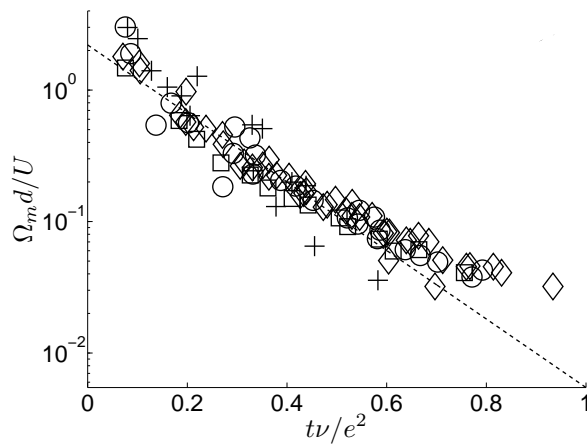


FIG. 4.34: Evolution de la vorticit  des tourbillons $\Omega_m d/U$ en fonction du temps ; \square $Ar = 700$; \diamond $Ar = 1260$; \circ $Ar = 1970$; $+$ $Ar = 3325$; $--$ $0.4 \exp(-6(t - 0.04)\nu/e^2)$.

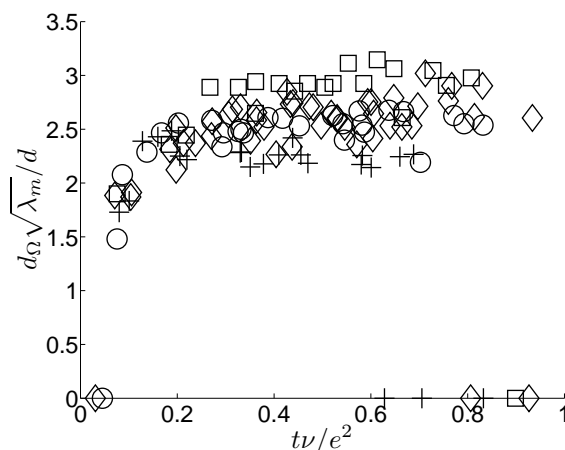


FIG. 4.35: Evolution de la taille des tourbillons $d_{\Omega}/(d/\sqrt{\lambda_m})$ en fonction du temps ; \square $Ar = 700$; \diamond $Ar = 1260$; \circ $Ar = 1970$; $+$ $Ar = 3325$.

$$\frac{6}{5}\rho(U - V_{m_x})\frac{\partial V_{m_x}}{\partial x} = -\frac{\partial P}{\partial x} - \frac{12\mu}{e^2}V_{m_x} \quad (4.19)$$

qui se simplifie en

$$\frac{6}{5}\rho U \frac{\partial V_{m_x}}{\partial x} = -\frac{12\mu}{e^2}V_{m_x} \quad (4.20)$$

dont la solution s' crit, pour v rifier $V_{m_x}(x = 0) = U$, sous la forme :

$$\frac{V_{m_x}}{U} = \exp\left(-10\frac{\nu}{Ue^2}x\right) \quad (4.21)$$

Nous avons superpos  la courbe donn e par l'expression 4.21 aux r sultats exp rimentaux en d calant l'origine des x de la longueur de la zone de recirculation (0,03m). A partir de

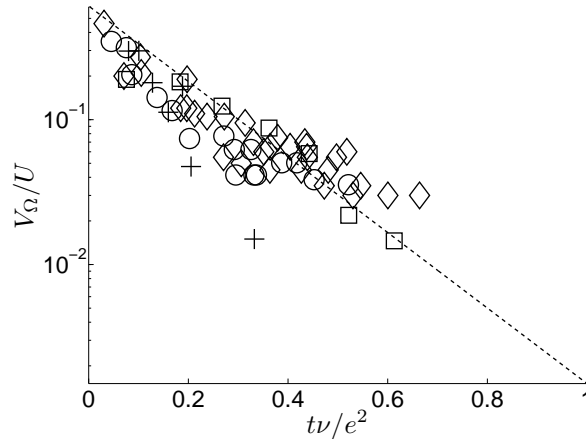


FIG. 4.36: Evolution de la vitesse des tourbillons V_{Ω}/U en fonction du temps; \square $Ar = 700$; \diamond $Ar = 1260$; \circ $Ar = 1970$; $+$ $Ar = 3325$; - - $0.4 \exp(-6(t - 0.07)\nu/e^2)$.

$\nu/Ue^2x = 0.18$ on observe un bon accord entre la courbe théorique et les résultats expérimentaux. La longueur caractéristique de la décroissance est cette fois-ci très bien prévue par le modèle. Ce résultat met encore une fois en évidence l'effet du confinement de la cellule sur l'atténuation marquée de la perturbation de vitesse.

Les profils transverses de vitesses dans le sillage montrent qu'en dehors de la zone de recirculation ces profils sont rapidement auto-similaires sans qu'il y ait besoin de normaliser l'abscisse y par une échelle de longueur spécifique dans la direction transverse (figure 4.38). Le changement brusque de forme du profil de $V_x(y)$ au delà de $y = \pm 1cm$ a lieu lorsque les vitesses V_x et V_y deviennent du même ordre de grandeur.

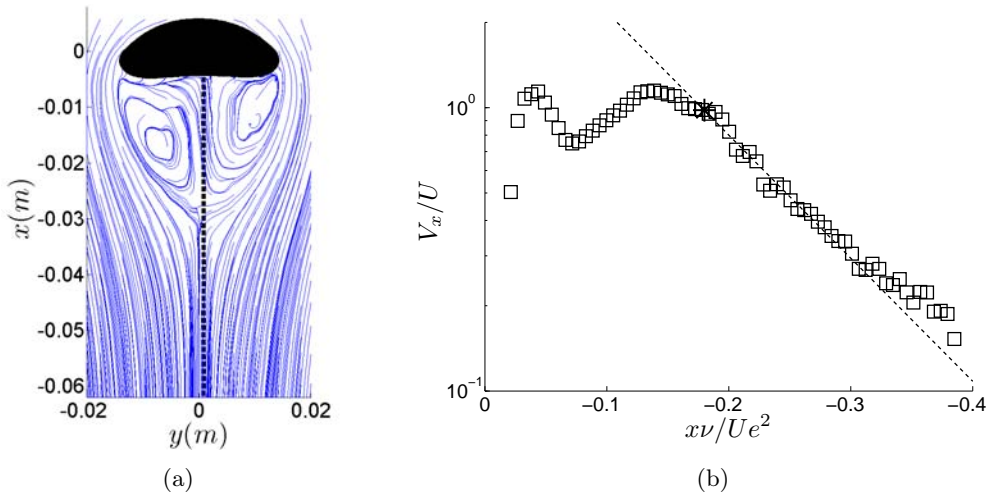


FIG. 4.37: (a) Lignes de courant de l'écoulement autour d'une bulle pour $Ar = 6950$; (b) Profil longitudinal de la vitesse V_x sur l'axe de symétrie de la bulle représenté par le trait en pointillés de la figure(a). - - $\exp(10\nu/Ue^2(x + 0.03))$

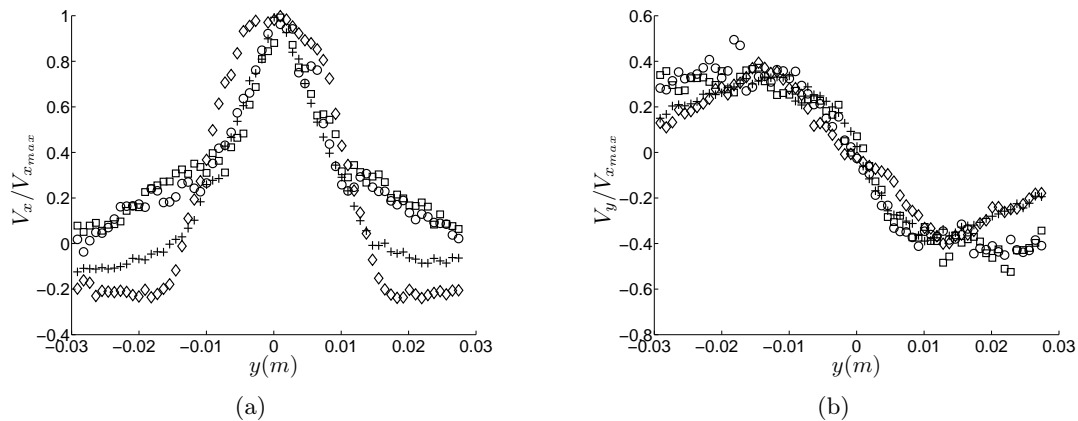


FIG. 4.38: Profils transverses de vitesses instantanées dans le sillage d'une bulle à $Ar = 6950$. (a) Vitesse longitudinale V_x , (b) Vitesse transversale V_y . ($\diamond x=-0.021m$; $+ x=-0.031m$; $\circ x=-0.052m$; $\square x=-0.06m$; $V_{max} = V_{x_{axe}}$)

4.5 Synthèse

Au terme de ce chapitre nous pouvons revenir sur les résultats principaux que nous avons obtenus concernant l'hydrodynamique. L'analyse du mouvement moyen a montré que, pour ces bulles en ascension à grand nombre de Reynolds, le frottement dans les films joue un rôle mineur. Le mouvement moyen suit donc un loi d'échelle simple $Re = 0.5Ar$ sur une gamme étendue de nombres d'Archimèdes, où la forme moyenne des bulles projetée dans le plan du mouvement peut évoluer de manière très marquée. On a ainsi observé un changement plus ou moins progressif avec Ar entre des formes moyennes circulaires puis elliptiques et enfin des formes de calottes héli-cylindriques. Ce changement de forme qui s'accompagne d'un aplatissement progressif des bulles est un élément important pour comprendre la dynamique des oscillations des bulles. Ces oscillations de trajectoire et de forme sont analysées dans des régimes inertiels où le couplage avec la dynamique du sillage est essentiel. C'est par le frottement aux parois imposé dans le fluide, et notamment dans le sillage, qu'apparaissent des effets spécifiques à la situation de bulle confinée. Dans la gamme des nombres d'Archimède parcourue, nous avons mis en évidence l'existence de différents régimes d'oscillations, dont les transitions sont déterminées au moins de façon approchée. Si aux plus faibles nombres d'Archimède les effets 3D du mouvement ne peuvent être négligés, dès $Ar = 600$ les régimes d'écoulement peuvent être considérés comme 2D à condition d'être assez loin des interfaces. L'enchaînement des différents régimes observés, caractérisés par des amplifications ou diminutions des amplitudes du mouvement et des oscillations de forme notamment, résulte alors du couplage complexe entre le sillage, d'une part, qui est fortement atténué par le frottement aux parois, et l'évolution des formes moyennes d'autre part, évolution due aux effets de plus en plus importants de la gravité et de l'inertie quand le volume de la bulle augmente.

Chapitre 5

Transfert de matière

Dans ce chapitre on cherchera à obtenir la répartition spatiale de l'oxygène dissous transféré par différentes bulles dans la cellule bidimensionnelle, et à quantifier les flux de transfert de masse. L'analyse de ces données sera faite à la lumière des connaissances apportées par le chapitre précédent sur la forme, le mouvement, et l'évolution temporelle des bulles au cours de leur mouvement.

5.1 Première analyse de la répartition spatiale de l'oxygène dissous après le passage d'une bulle

5.1.1 Images utilisées

Nous examinons ici qualitativement la structure de la trace en oxygène dissous laissée par une bulle d'oxygène pur en ascension dans de l'eau préalablement désoxygénée à l'azote. L'eau dans la cellule est de l'eau distillée comportant 12.5mg/L de complexe de Ruthenium et 9% volumiques d'éthanol. Les images de bulles en ascension ont été prises à la fréquence de 10Hz avec le système PLIF décrit au chapitre 3.

La figure 5.1 présente 5 images, instantanées et non traitées, de bulles correspondant à 5 valeurs du nombre d'Archimède comprises entre 210 et 11000. Sur ces images la présence d'oxygène dans le sillage de chaque bulle est visible en noir, mais pas de façon très nette. On remarque également une zone sombre entourant le nez de la bulle dans le cas des trois plus grosses bulles. L'origine de cette modulation d'intensité sera discutée ci-après. Ces images instantanées sont en tous cas trop bruitées pour pouvoir en tirer une information locale sur le transfert interfacial de masse.

On a cependant réalisé des mesures de la quantité d'oxygène dissous transféré aux interfaces des bulles en profitant du fait que le mouvement dans le sillage des bulles s'atténue très vite et en nous intéressant au sillage loin des bulles. Puisque nous avons montré au chapitre 4 que le temps de vie de la perturbation de vitesse provoquée par le passage des bulles est de 1s au plus (figures 4.36 et 4.34), au-delà de ce temps l'oxygène n'est plus transporté que par diffusion. Et il est alors aisé de mesurer un champ de concentration presque figé pour en déduire la masse transférée aux interfaces.

Les images utilisées pour étudier le champ de concentration sont donc prises après que le champ de vitesse, et donc également le champ de concentration, soient figés, au transport par la diffusion moléculaire près, c'est-à-dire environ 2s après le passage de la bulle. Comme nous l'avons expliqué en détail au chapitre 3, nous enregistrons alors une série d'images successives,

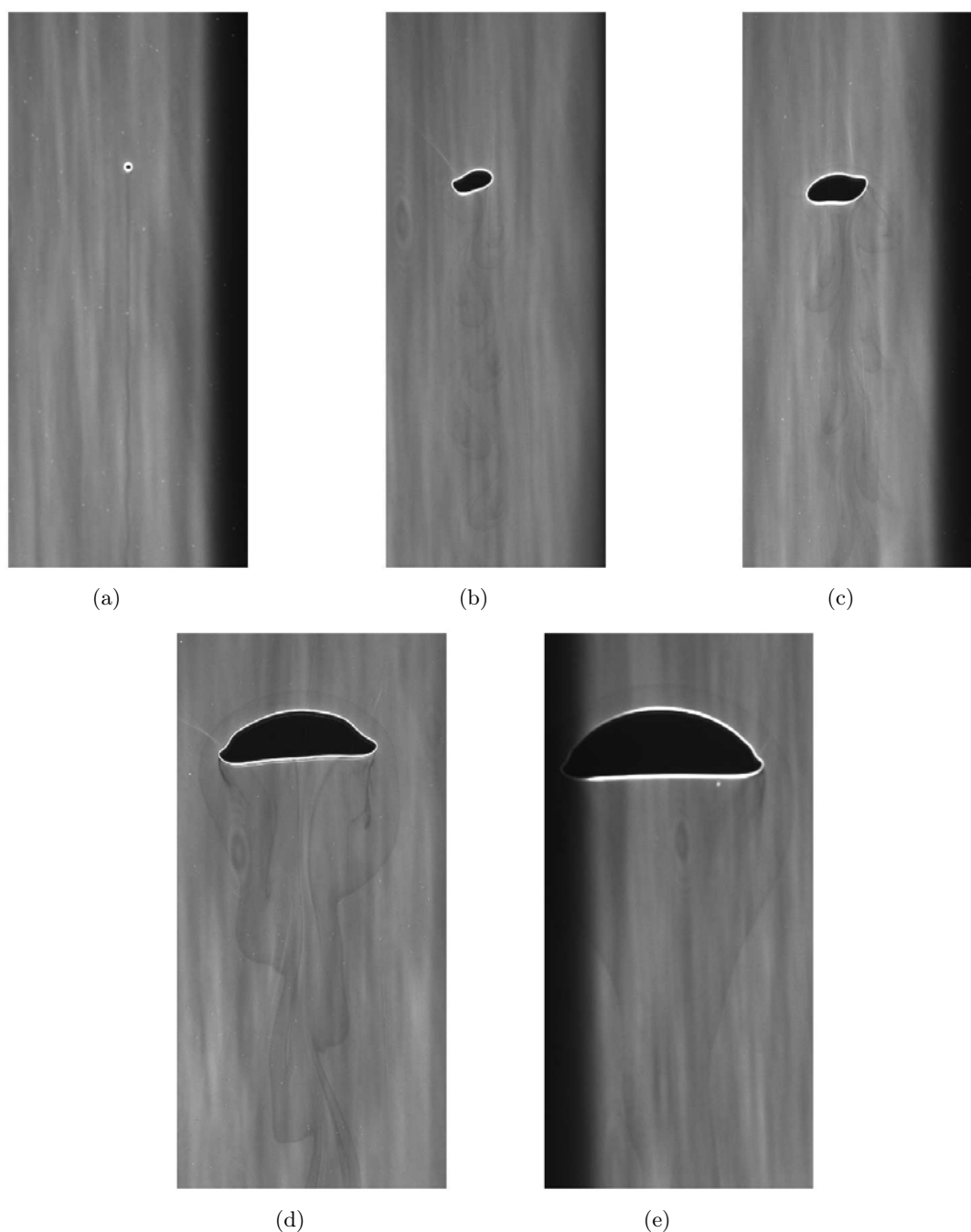


FIG. 5.1: Images brutes instantannées de bulles d'oxygène en cours de transfert de masse. (a) $Ar = 210$; (b) $Ar = 1400$; (c) $Ar = 2380$; (d) $Ar = 6340$; (e) $Ar = 11000$. Taille des images : 5.14×10.64 cm. Définition : $77.3 \mu\text{m}$ par pixel.

dont nous calculons la moyenne, ce qui nous permet de nous affranchir des fluctuations temporelles de l'éclairage laser. Dans tout ce qui va suivre, nous utilisons des images obtenues à partir de la moyenne de 25 images. La fréquence d'acquisition étant de 10Hz, la résolution temporelle des images moyennes est de 2.5s. Pendant cette durée, l'oxygène, dont la diffusivité moléculaire vaut $2.10^{-9} \text{m}^2/\text{s}$, ne peut parcourir par diffusion que $70 \mu\text{m}$ environ. La distribution spatiale de concentration en oxygène dissous obtenue par prise de moyenne filtre donc toutes les échelles de

5.1. Première analyse de la répartition spatiale de l'oxygène dissous après le passage d'une bulle

longueur du plan (x, y) inférieures à $70\mu m$. On constate que les contours des motifs de concentration restent assez nets sur l'ensemble des images considérées pour prendre la moyenne puisque la définition des images donne une taille caractéristique des pixels supérieure à cette longueur de diffusion ($77\mu m$ par pixel).

On définit pour chaque point de l'image le rapport R_{fluor} entre l'intensité du signal après le passage de la bulle et l'intensité du signal de référence pour lequel la concentration en oxygène dissous est nulle ($[O_2] = 0$) :

$$R_{fluor} = \frac{\langle NG_f \rangle - \langle NG_0 \rangle}{\langle NG_{f0} \rangle - \langle NG_0 \rangle} \quad (5.1)$$

Ce rapport varie entre 0.8 et 1. La représentation de R_{fluor} donne des images de sillages en nuance de gris sur fond blanc. Afin de rendre plus confortable l'observation de ces images on présente, en figure 5.2, les valeurs de $(1 - R_{fluor})$ dans le champ d'observation pour chacune des bulles de la figure 5.1. Sur ces images, le fond noir correspond à l'absence d'oxygène dans l'eau ($R_{fluor} = 1$). Les pixels ont une couleur d'autant plus claire que la concentration en oxygène est élevée. $R_{fluor} = 0$ correspondrait à une inhibition totale de la fluorescence, qui n'est jamais atteinte dans nos essais.

5.1.2 Examen des images moyennées et identification des mécanismes de transfert.

Pour les images correspondant aux quatre nombres d'Archimède les plus faibles, on observe sur la figure 5.2 deux types de structures au sein du dépôt d'oxygène : un ruban central, de largeur presque constante, et des volutes périodiques plus claires qui l'encadrent et le recouvrent. Ces volutes sont associées à l'allée tourbillonnaire mise en évidence par PIV au chapitre précédent pour la même gamme de nombres d'Archimède. On conçoit aisément que ces deux types de structures contrastées correspondent à deux mécanismes distincts de transfert de masse entre la bulle et l'eau : d'une part (i) de l'oxygène dissous migre à travers les interfaces de la bulle au contact des films liquides près des parois et donne lieu au ruban central ; d'autre part (ii) de l'oxygène dissous est émis à la périphérie de la bulle, puis transporté, avant d'être déposé dans le sillage derrière la bulle où il donne lieu aux volutes perceptibles sur le champ de fluorescence. Les modes de transport distincts de la concentration en oxygène issue des films ou de la surface périphérique permettent ainsi de visualiser les deux modes de transferts interfaciaux.

L'oxygène transféré dans les films est initialement contenu dans une couche massique d'épaisseur inférieure ou égale à celle des films h . Comme on a $h \ll e$, l'oxygène est localisé dans une mince couche près des parois et, une fois transféré à travers l'interface, est certainement transporté dans la direction y essentiellement par diffusion moléculaire. Sa distribution spatiale sur l'image doit donc être d'une largeur en y de l'ordre de la largeur de la bulle, et rester à peu près constante pour des amplitudes d'inclinaisons de bulles limitées. Si l'on superpose à chaque image de la trace d'oxygène figé les contours de la bulle qui est passée dans le champ d'observation sur les images antérieures de la séquence (figure 5.3), on voit que la largeur du ruban sombre est très proche de la plus grande largeur de la bulle, et que les oscillations du ruban semblent correspondre aux oscillations de trajectoire. De fait, la largeur du ruban ne diffère de la largeur de la bulle que d'une distance de l'ordre de deux fois le rayon de courbure qui est proche de $e/2$ (tableau 5.1). La totalité de l'oxygène issu des films transféré pendant le passage de la bulle dans la fenêtre d'observation, est donc raisonnablement supposée présente à l'intérieur du volume de liquide associé au ruban observé. Cette bande occupe une zone en projection dans le plan que l'on notera Z_b .

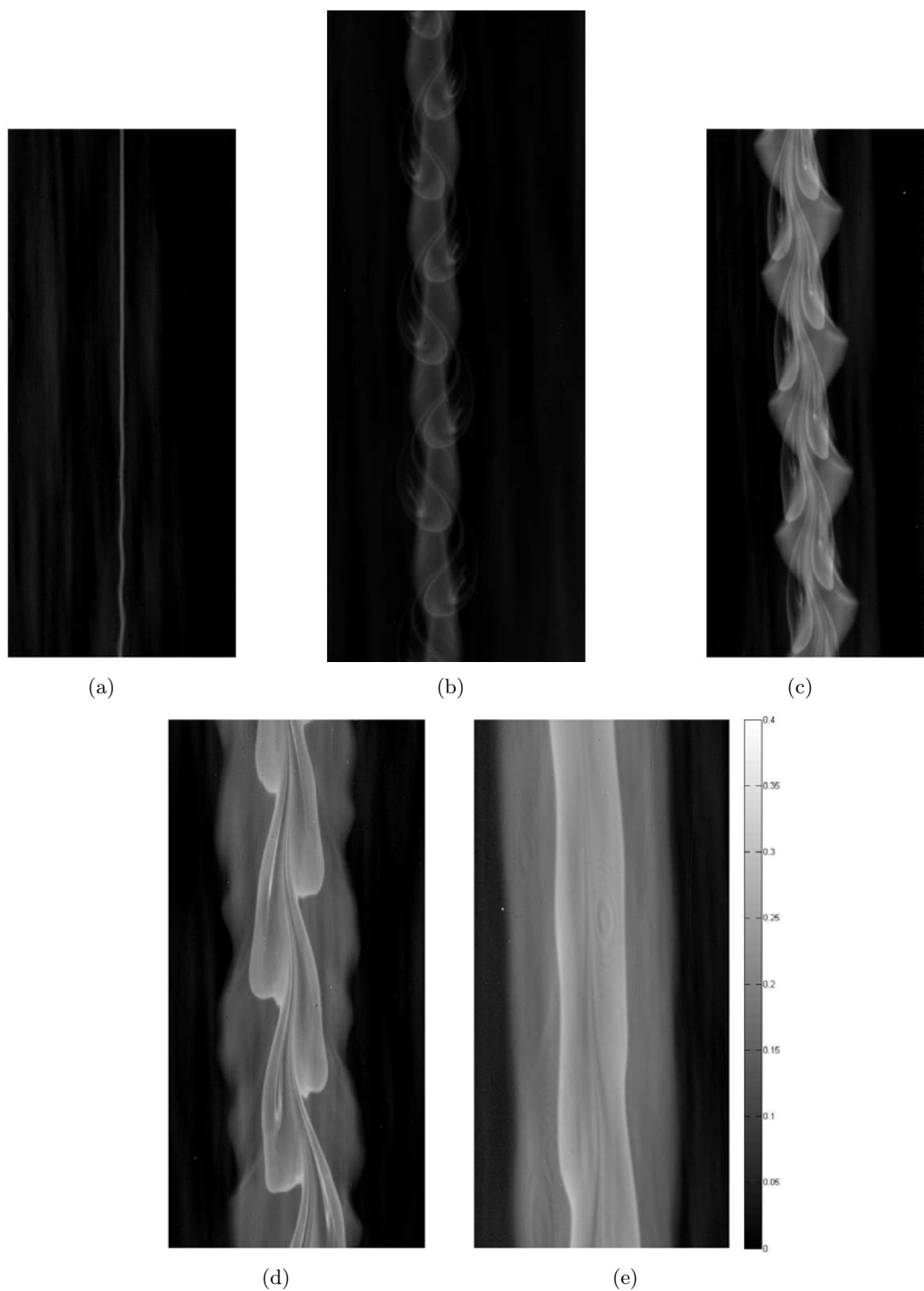


FIG. 5.2: Rapport $(1 - R_{fluo})$ entre l'intensité de fluorescence après le passage des bulles et l'intensité de fluorescence de référence ($[O_2] = 0$) : trace en oxygène dissous derrière la bulle. (a) $Ar = 210$; (b) $Ar = 1400$; (c) $Ar = 2380$; (d) $Ar = 6340$; (e) $Ar = 11000$. Taille des images : $5.14 \times 10.64cm$. Définition : $77.3\mu m$ par pixel.

5.1. Première analyse de la répartition spatiale de l'oxygène dissous après le passage d'une bulle

Puisque la surface périphérique de la bulle occupe l'épaisseur entre les plaques (à $2h$ près), l'oxygène transféré par cette surface est réparti dans l'épaisseur entre les plaques et est transporté par l'écoulement 2D dans l'interstice entre les plaques. Sa distribution dans le champ d'observation donne lieu à des motifs qui résultent du transport dans le sillage. Lorsque ces motifs interceptent la région Z_b issue du transfert dans les films, l'oxygène présent dans la totalité de l'interstice entre les plaques est une combinaison du champ de concentration immédiatement déposé dans le film et du champ de concentration qui a été transporté dans le sillage. La conservation de la cohérence des volutes lorsqu'elles recouvrent le ruban déposé par le film indique que les deux champs de concentration sont certainement déposés de manière indépendante dans l'interstice par des mouvements essentiellement 2D dans chaque couche.

L'évolution du sillage des bulles révèle des motifs différents quand le nombre d'Archimède augmente. Pour les bulles qui ont une trajectoire oscillante, ces motifs sont périodiques et leur longueur d'onde est égale à celle de la trajectoire de la bulle qui est aussi celle du lâcher tourbillonnaire (tableau 5.1). Pour les bulles des figures 5.2(b) et (c) on observe des enroulements évoquant la capture d'oxygène dans les tourbillons.

Ar	210	1400	2380	6340	11000
largeur de la bulle (mm)	1.7	8.5	11.8	30.3	39.1
largeur de la bande (mm)	0.9	7.2	10.5	28.1	37.7
longueur d'onde de la bande (mm)	0	27	26.3	indéterminée	0
longueur d'onde des volutes (mm)	0	27	26.3	38	0
longueur d'onde de la trajectoire (mm)	0	28	27	41	0

TAB. 5.1:

Pour la plus grosse des bulles présentées, la trace en oxygène présente 2 rubans parallèles, centrés sur l'axe vertical du mouvement de la bulle. La bulle correspondante a une forme de calotte (figure 5.3(d)). Pour ces bulles on sait qu'il n'y a plus d'oscillations de trajectoire, ni d'oscillations de forme. Le ruban le plus large correspond au transfert de masse issu du film. Le ruban le plus étroit et le plus clair correspond à l'oxygène amené par l'écoulement bidimensionnel autour de la bulle, qui la contourne et est rabattu derrière elle, créant ainsi une zone rectiligne centrale sur-concentrée en oxygène.

5.1.3 Observations sur les images brutes et analyse de la couche d'oxygène au nez des grosses bulles.

En examinant de plus près les images brutes comportant une bulle, nous avons remarqué la présence, au nez des grosses bulles, d'une couche sombre d'épaisseur b_n (figure 5.1 (c) et (d) par exemple). Nous avons essayé d'identifier l'origine de cette perturbation d'intensité lumineuse. Nous avons d'abord pensé à un phénomène optique, une sorte d'ombre occultant partiellement la lumière incidente du laser, ou celle de la fluorescence du Ruthenium. Cependant, une image similaire prise sur une bulle d'azote de même taille en ascension dans de l'eau désoxygénée, ne présente pas cette zone sombre au nez de la bulle (figure 5.4). Ce n'est donc pas le scénario d'éclairement qui provoque une zone d'ombre. La couche sombre est réellement liée à l'inhibition de la fluorescence et par conséquent à la présence d'oxygène. Cependant l'épaisseur b_n étant largement supérieure à une épaisseur caractéristique de couche limite massique, cela implique nécessairement l'existence d'un mouvement convectif près de l'interface qui puisse alimenter le nez de la bulle en oxygène.

Notons que la largeur b_n de cette couche, dans le plan des plaques, augmente avec le nombre

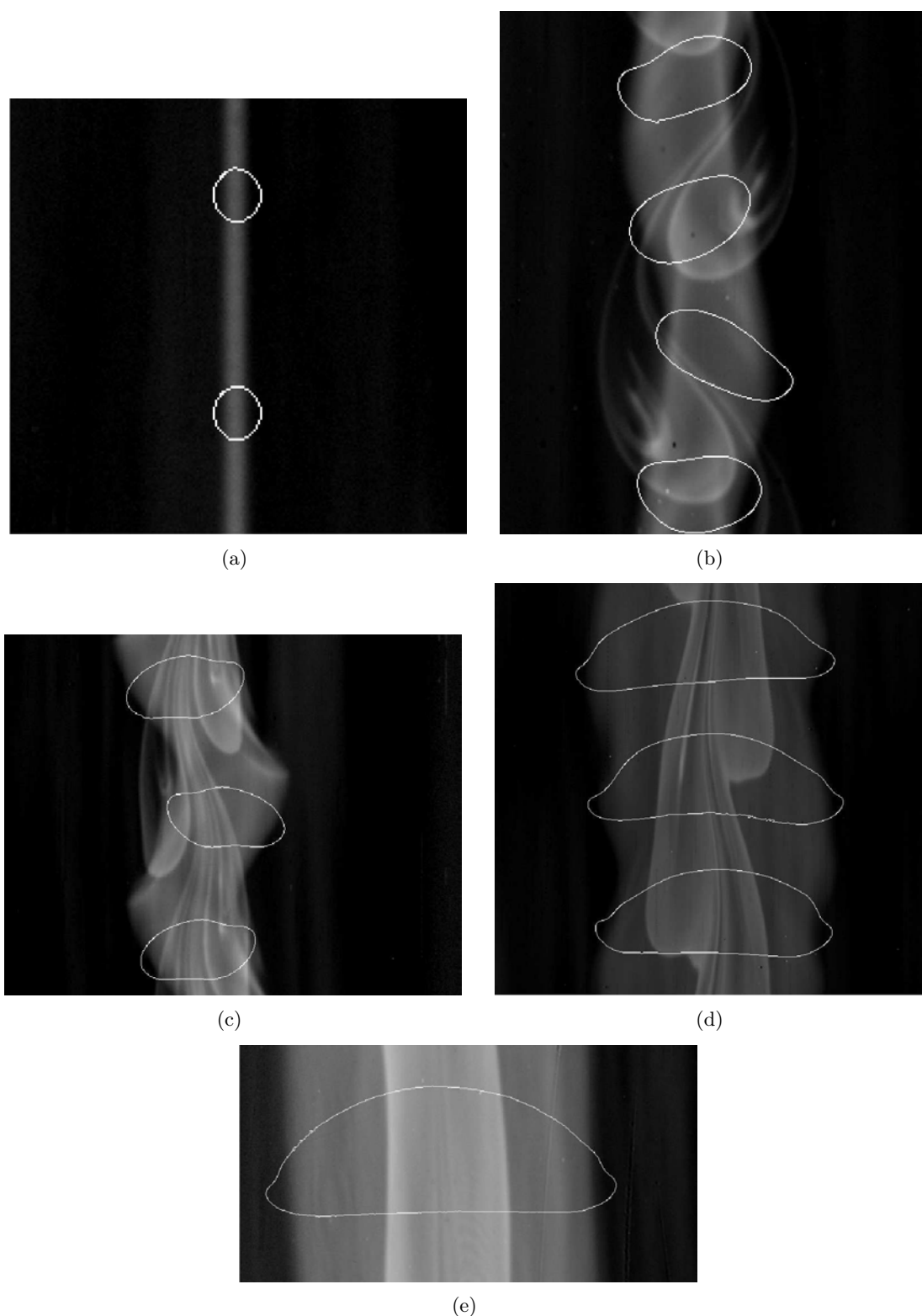


FIG. 5.3: Comparaison visuelle de la trace en oxygène dissous derrière une bulle avec la largeur de la bulle et les oscillations de trajectoire. (a) $Ar = 210$, taille de l'image : $1.56 \times 1.48\text{cm}$; (b) $Ar = 1400$, taille de l'image : $5.5 \times 3.12\text{cm}$; (c) $Ar = 2380$, taille de l'image : $5.14 \times 3.66\text{cm}$; (d) $Ar = 6340$, taille de l'image : $5.14 \times 4.73\text{cm}$; (e) $Ar = 11000$, taille de l'image : $5.14 \times 2.64\text{cm}$. Définition : $77.3\mu\text{m}$ par pixel.

5.1. Première analyse de la répartition spatiale de l'oxygène dissous après le passage d'une bulle

d'Archimède. Elle varie typiquement entre 1 et 4mm pour des nombres d'Archimède compris entre 1000 et 11000. Nous n'avons pas complètement éclairci à ce jour le mécanisme à l'origine de ce phénomène. Mais nous pensons qu'il existe probablement un gradient de concentration en tensio-actifs entre le nez et l'arrière de la bulle, éventuellement lié à un gradient en éthanol, induisant une variation de tension de surface à l'origine d'un effet Marangoni. Il nous reste à analyser dans quelle mesure un tel effet peut donner lieu à un mouvement d'advection de l'aval vers l'amont le long de l'interface périphérique comme dans les sillages rebouclant sur eux-mêmes étudiés par Bush (1997). Une première comparaison de nos mesures des épaisseurs caractéristiques b_n avec celle de tels sillages au nez de la bulle montre que ce scénario est crédible et doit être exploré (figure 5.5).

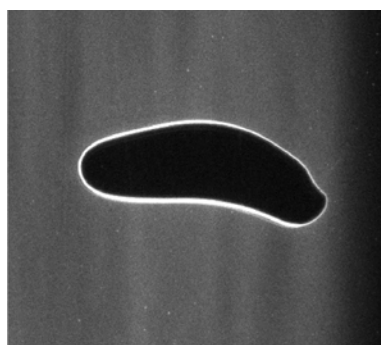


FIG. 5.4: Image instantanée (non traitée) d'une bulle d'azote (calotte). Taille de l'image : $3.46 \times 3\text{cm}$

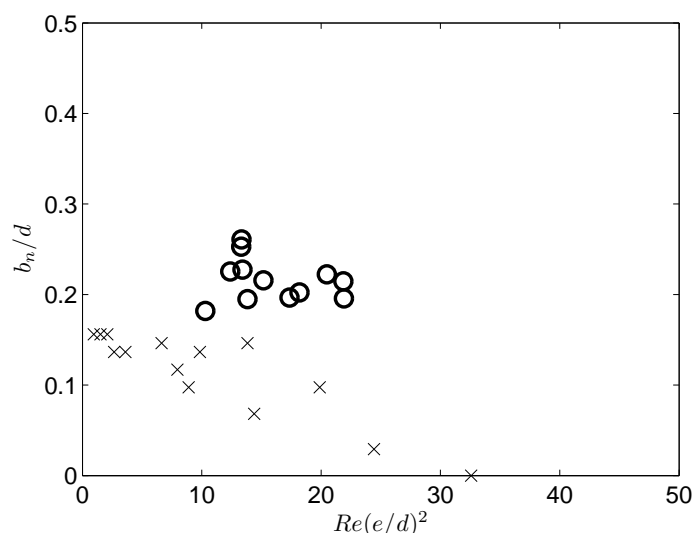


FIG. 5.5: Variation de l'épaisseur b_n de la couche sombre au nez de la bulle avec $Re(e/d)^2$. (\circ présente étude, $+$ Bush (1997)).

5.2 Méthodologie pour la reconstruction du champ de concentration d'oxygène dans le sillage d'une bulle.

Après cet examen qualitatif de la structure du champ d'oxygène dissous dans le sillage lointain et au nez de la bulle, nous présentons la méthodologie que nous avons mise en place pour une mesure quantitative de la concentration en oxygène dissous.

En un point quelconque (x,y) de la fenêtre d'investigation, l'intensité lumineuse du signal de fluorescence vu par la caméra résulte de la contribution de chacune des molécules du traceur fluorescent réparties dans l'épaisseur entre les plaques. Comme nous l'avons dit au chapitre 3, la concentration en oxygène n'est pas homogène entre les plaques, sauf cas particulier. La relation de Stern-Volmer, qui relie l'intensité de fluorescence émise en un point (x,y,z) et la concentration en oxygène en ce point, n'est pas linéaire ; la relation entre la concentration moyenne entre les plaques et l'intensité de fluorescence moyenne n'est donc pas directe et son calcul nécessite de formuler des hypothèses.

Pour discuter ces hypothèses, nous allons examiner 2 types d'images : des images prises aux temps longs après le passage d'une bulle pour lesquelles on peut considérer la concentration en oxygène en un point (x,y) du plan comme homogène dans la direction z , et des images aux temps courts pour lesquelles, la concentration n'étant pas uniforme dans l'épaisseur, nous proposons un modèle de calcul des concentrations en oxygène dans l'épaisseur. La masse d'oxygène déposé qui se conserve entre les temps courts et les temps longs, constitue un critère de validation des hypothèses de calcul aux temps courts.

Nous traitons en détails l'analyse du champ de concentration autour d'une bulle de taille $d = 5.3mm$ ($Ar = 1200$) pour laquelle nous disposons de ces 2 types d'images. Pour cette bulle, une première séquence d'images, d'une durée de 9.6 secondes, a été enregistrée à la fréquence de 10Hz. Sur cette séquence les 6 premières images montrent la bulle et les 90 suivantes la trace d'oxygène dissous. Nous avons utilisé 25 images successives prises 1.6s après le passage de la bulle pour bâtir une image moyenne (divisée par le fond moyen) de la trace en oxygène dite aux temps courts (figures 5.6 (a)). Une deuxième séquence d'images (figures 5.6 (b)), de 9.6s de durée également, a été réalisée 240s après le passage de la bulle ; là encore nous avons bâti une image moyenne sur la base de 25 images successives. Le temps séparant les deux séquences étant très long devant l'échelle de temps de la diffusion massique dans l'épaisseur, nous pouvons considérer que l'oxygène déposé s'est réparti uniformément dans l'interstice entre les plaques pour l'image moyenne aux temps longs.

5.2.1 Modélisation de la répartition de l'oxygène dans l'épaisseur.

Image aux temps longs

L'oxygène ayant eu le temps de diffuser dans l'épaisseur, on peut calculer la concentration moyenne en oxygène dissous en un point du plan par application directe de la relation de Stern-Volmer à partir de la valeur R_{flu} . On peut par intégration dans le plan des plaques calculer la masse totale d'oxygène transférée par la bulle pendant son passage dans la fenêtre de visualisation. Cette information est importante pour interpréter les images aux temps courts.

L'image aux temps longs n'est, par contre, pas assez nette pour différencier la contribution au transfert des deux surfaces de la bulle (S_f et S_p). De plus, la trace en oxygène des tourbillons est répartie en volutes fines ; dans le cas où elle déborde de la région Z_b , son signal faiblit aux temps longs et devient difficilement décelable. On a donc besoin d'images aux temps courts pour identifier les contributions des deux surfaces de la bulle au transfert de masse global.

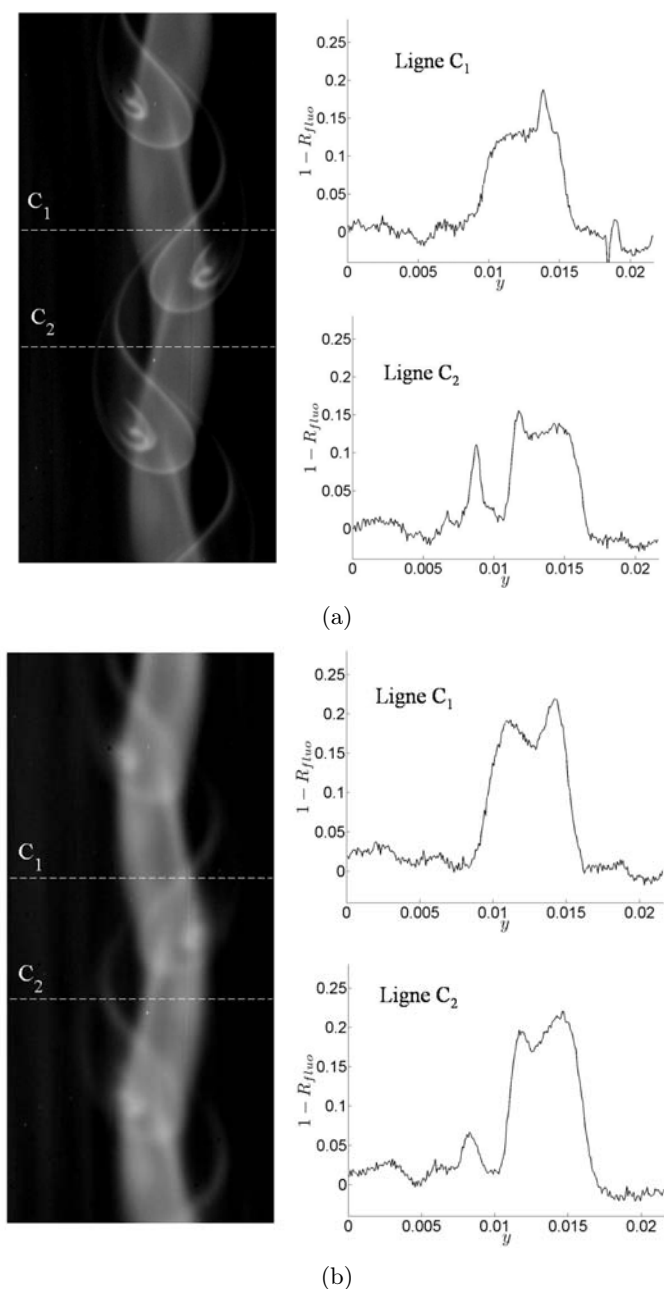


FIG. 5.6: (a) rapport $1-R_{flu0}$ au temps court ($t=1.6s$ après le passage de la bulle) et profils suivant C_1 et C_2 . (b) rapport $1-R_{flu0}$ au temps long ($t=240s$ après le passage de la bulle) et profils suivant C_1 et C_2 .

Modèle pour le calcul de la concentration en oxygène dissous aux temps courts

A la lumière du paragraphe 5.1, nous considérons que la bulle transfère de l'oxygène par deux mécanismes distincts :

- la bulle dépose de l'oxygène par les films, dans deux couches minces de diffusion massique d'épaisseur δ inférieure ou égale à l'épaisseur des films h . Après le passage de la bulle ces deux couches s'épaississent dans la direction z et atteignent une épaisseur $l_F(x, y)$ inconnue à l'instant de l'analyse qui reste un temps court. Nous avons montré au chapitre 2 que $\delta \ll e$ dans la

gamme de paramètres étudiés. Par conséquent, pour des acquisitions réalisées 1 ou 2 secondes après le passage de la bulle, on suppose de façon raisonnable qu'on a $l_F(x, y) \ll e$. En l'absence d'effet tridimensionnel marqué, l'épaississement des 2 couches massiques sur 1 ou 2 secondes doit s'effectuer essentiellement par diffusion et rester inférieur à la centaine de micromètres.

- la bulle largue également de l'oxygène par la partie périphérique de son interface dans une couche centrale de l'écoulement liquide, couche qui diffuse dans l'épaisseur après le passage de la bulle et atteint au moment de l'analyse une épaisseur que nous noterons $l_P(x, y)$. Les films étant très minces (h de l'ordre de la dizaine de micromètres), on pourra raisonnablement considérer que $l_P \approx e$.

Nous avons vu au paragraphe 5.1 que, suivant les tailles de bulle, on obtient toujours sur les images une zone correspondant à la trace des films seuls, que nous nommerons Z_F , et une zone où la trace des films et celle de la périphérie coexistent, que nous nommerons Z_{FP} . Pour des bulles à $Ar \approx 1000$, il existe une troisième zone correspondant uniquement à l'oxygène issu de la périphérie de la bulle. Elle sera notée Z_P . Cette zone peu visible aux temps longs est bien distincte aux temps courts (figure 5.6). Nous supposons dans notre analyse que dans la zone Z_{FP} les deux dépôts de concentration se superposent sur des épaisseurs $2l_F(x, y)$ et $l_P(x, y)$.

Une représentation simplifiée de la répartition de la concentration en oxygène entre les plaques après le passage d'une bulle peut être déclinée suivant les zones Z_F , Z_P et Z_{FP} . Pour chaque zone, nous donnons l'expression qui relie le rapport R_{fluo} à la concentration pour un point de coordonnées (x, y) .

- Zone Z_F : ce cas correspond à une répartition uniforme de l'oxygène à la concentration inconnue C_F sur deux épaisseurs de largeur inconnue l_F (figure 5.7). La zone centrale est dépourvue d'oxygène. Il est important de rappeler que $l_F \ll e$.

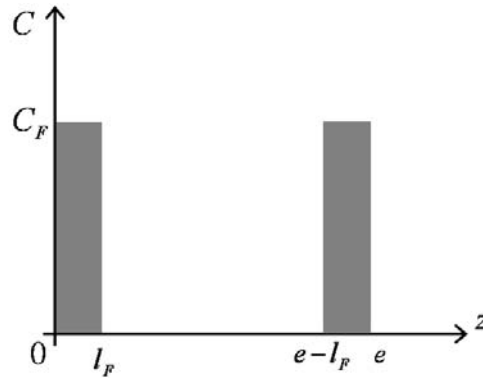


FIG. 5.7: Modèle de répartition de l'oxygène dissous dans l'interstice entre les plaques dans le cas de la trace laissée par les films.

La valeur théorique de R_{fluo} , issue de l'intégration de la relation de Stern Volmer dans l'épaisseur e s'écrit :

$$R_{fluo} = \frac{2l_F}{e} \frac{1}{1 + K_{SV}C_F} + \frac{e - 2l_F}{e} \quad (5.2)$$

Pour ce cas, la concentration moyenne en oxygène dans l'épaisseur vérifie :

$$C_{mF} = \frac{2l_F}{e} C_F \quad (5.3)$$

- Zone Z_P : ce cas correspond à une répartition uniforme de l'oxygène à la concentration C_P sur toute l'épaisseur entre les plaques e (figure 5.8).

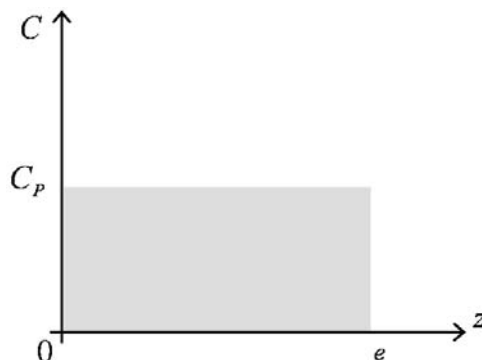


FIG. 5.8: Modèle de répartition de l'oxygène dissous dans l'interstice entre les plaques dans le cas du transfert de masse issu de la périphérie de la bulle.

La valeur théorique de R_{fluo} pour une telle répartition de l'oxygène entre les plaques est donnée par la relation de Stern-Volmer :

$$R_{fluo} = \frac{1}{1 + K_{SV}C_P} \quad (5.4)$$

Ici la concentration moyenne en oxygène vaut :

$$C_{mP} = C_P \quad (5.5)$$

- Zone Z_{FP} : ce cas correspond à une répartition uniforme de l'oxygène à la concentration C_F sur deux épaisseurs l_F et à la concentration C_P dans la partie restante $l_F < z < e - l_F$ (figure 5.9). Nous avons pris ici une concentration dans les films égale à C_F car comme nous le montrerons dans la suite : $C_P \ll C_p$.

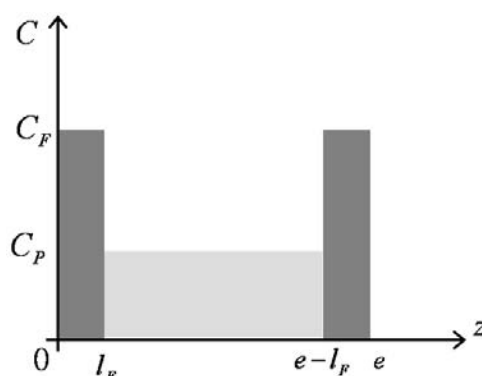


FIG. 5.9: Modèle de répartition de l'oxygène dissous dans l'interstice entre les plaques dans une zone où co-existent les contributions des films et de la périphérie de la bulle.

Pour ce cas, la valeur théorique de R_{fluo} entre les plaques issue de l'intégration de la relation de Stern Volmer dans l'épaisseur e s'écrit :

$$R_{fluo} = \frac{2l_F}{e} \frac{1}{1 + K_{SV}C_F} + \frac{e - 2l_F}{e} \frac{1}{1 + K_{SV}C_P} \quad (5.6)$$

et la concentration moyenne en oxygène dans l'épaisseur vérifie :

$$C_{mFP} = \frac{2l_F}{e} C_F + \frac{e - 2l_F}{e} C_P \quad (5.7)$$

Pour pouvoir appliquer les lois de transformation des intensités lumineuses en concentrations, nous devons détecter en tout point des images à quelle des trois zones spécifiques appartient le point. Pour un signal de fluorescence donné, la détermination de la concentration locale en oxygène, une fois que l'appartenance aux zones Z_F , Z_P ou Z_{FP} a été détectée, se fait grâce aux équations 5.2, 5.4 ou 5.6.

Par ailleurs les surfaces globales de ces trois zones doivent être calculées pour déterminer la contribution au transfert des films et de la surface périphérique. Nous avons détecté les trois zones par analyse d'image et application d'un seuil sur les niveaux de gris. La figure 5.10 présente une illustration de ces 3 zones dans le cas de bulles de 5.3mm ($Ar=1200$) et 16mm ($Ar=6340$). Les seuils à appliquer à l'image moyenne pour distinguer les 3 zones sont difficiles à identifier et les frontières entre les zones ne sont pas toujours déterminées avec une très grande précision. La détermination de ces zones peut introduire une erreur relative sur les surfaces de l'ordre de 10%.

Sur l'image des intensités lumineuses (figure 5.6(a)), on constate que les valeurs mesurées de R_{fluo} sont variables au sein d'une même zone avec des écarts-types qui peuvent aller jusqu'à 20% de la moyenne. Ces variations peuvent avoir plusieurs origines : l'hétérogénéité naturelle du champ de concentration dans le plan (x,y) ou des variations d'épaisseur $l_F(x,y)$.

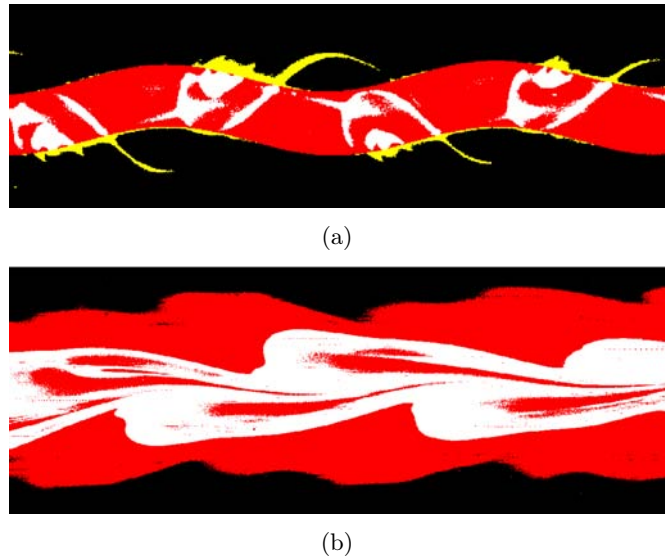


FIG. 5.10: Exemples d'identification des zones de contribution au champ d'oxygène dissous (a) $Ar = 1200$; (b) $Ar=6340$. rouge : zone Z_f ; jaune : zone Z_p ; blanc : zone Z_{FP} .

Pour trouver les concentrations, dans certaines régions, on a moins d'équations que d'inconnues. En particulier dans Z_F , on a la seule équation (équation 5.2) et 2 inconnues (l_F et

C_F). On ne peut résoudre le problème complet au point. Dans notre analyse nous ne pouvons pas non plus modéliser des évolutions de $l_F(x, y)$. Nous avons donc choisi de travailler avec les valeurs moyennes sur chaque zone, en adoptant en outre des hypothèses simplificatrices supplémentaires : i) Les concentrations C_F et C_P sont uniformes dans le plan des plaques pour les zones où elles sont considérées ; ii) La concentration C_F est la même dans les régions Z_F et Z_{FP} ; iii) La concentration C_P est la même dans les régions Z_P et Z_{FP} ; iv) l'épaisseur l_F est la même dans les zones Z_F et Z_{FP} . Nous notons respectivement R_F , R_P et R_{FP} les valeurs moyennes de $R_{flu\omega}$ dans les régions Z_F , Z_P et Z_{FP} . On est donc amené à résoudre un système fermé de trois équations à trois inconnues :

$$R_F = \frac{2l_F}{e} \frac{1}{1 + K_{SV}C_F} + \frac{e - 2l_F}{e} \quad (5.8)$$

$$R_P = \frac{1}{1 + K_{SV}C_P} \quad (5.9)$$

$$R_{FP} = \frac{2l_F}{e} \frac{1}{1 + K_{SV}C_F} + \frac{e - 2l_F}{e} \frac{1}{1 + K_{SV}C_P} \quad (5.10)$$

Lors de la résolution de ces équations, l'incertitude expérimentale sur les valeurs de R_F , R_P et R_{FP} a une forte répercussion sur celle des inconnues qui a le plus faible ordre de grandeur : l_F est a priori de l'ordre de la dizaine ou de la centaine de microns, alors que les concentrations C_F et C_P , exprimées en mg/L (pour une constante de Stern-Volmer en L/mg), sont a priori de l'ordre de l'unité ou de 0.1. La détermination de l_F par résolution simultanée des 3 équations n'est donc pas suffisamment précise et peut engendrer de mauvaises estimations des concentrations. On peut donc penser à se donner l_F pour obtenir les concentrations. Nous avons testé la sensibilité des valeurs de C_F données par la résolution du système d'équations dans la zone Z_F , lorsqu'on se donne l_F et qu'on l'autorise à varier dans une gamme étendue de valeurs. Pour cela nous avons travaillé avec une valeur de $R_F \approx 0.87$ réaliste puisqu'elle correspond au signal pour la bulle à $Ar = 1200$. L'ordre de grandeur de l_F que l'on peut approcher à partir la diffusion sur les temps de mesure est la centaine de μm . La figure 5.11 montre que C_F varie fortement en fonction de l_F : pour $l_F = 100\mu m$ 10% d'erreur sur l_F induit 30% d'erreur sur C_F . Une singularité apparaît même sur la valeur de C_F pour des valeurs de l_F inférieures à $\approx 90\mu m$. Plus important encore, la masse d'oxygène dissous comprise dans les couches massiques, qui est proportionnelle à $l_F C_F$, dépend elle aussi fortement de la valeur de l_F , comme le montre la figure 5.12 : pour $l_F = 100\mu m$ 10% d'erreur sur l_F induit 40% d'erreur sur la masse d'oxygène présente entre les plaques. Il n'est donc pas possible de prédéterminer une valeur raisonnable de l_F afin d'estimer C_F . Nous avons donc mis en place une méthodologie proposant une voie plus fiable de détermination de l_F .

5.2.2 Détermination de l'épaisseur de la couche de masse issue des films grâce aux images aux temps longs.

Une solution pour déterminer une valeur de l_F (ou de C_F ce qui est équivalent) consiste à utiliser le signal de fluorescence aux temps longs. Dans un premier temps, pour une image aux temps courts, il faut mesurer, dans une région réduite de la zone Z_F (que nous appellerons A) la valeur moyenne de R_F . Cette valeur moyenne vérifie l'équation 5.3 reliant C_F et l_F :

$$R_F = \frac{2l_F}{e} \frac{1}{1 + K_{SV}C_F} + \frac{e - 2l_F}{e} \quad (5.11)$$

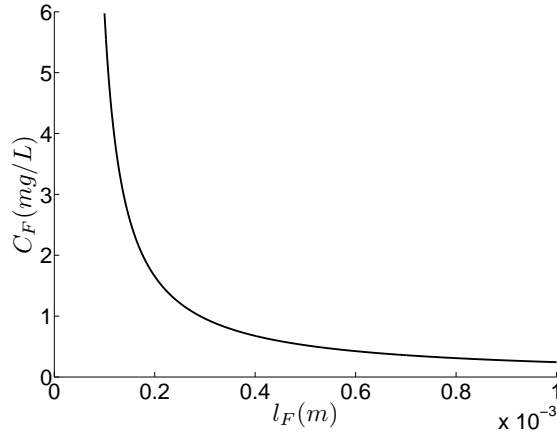


FIG. 5.11: Sensibilité de la variation de C_F à la valeur de l_F pour une valeur moyenne de R_{fluo} de 0.87 dans la zone Z_F . Cette courbe correspond au cas $Ar = 1200$.

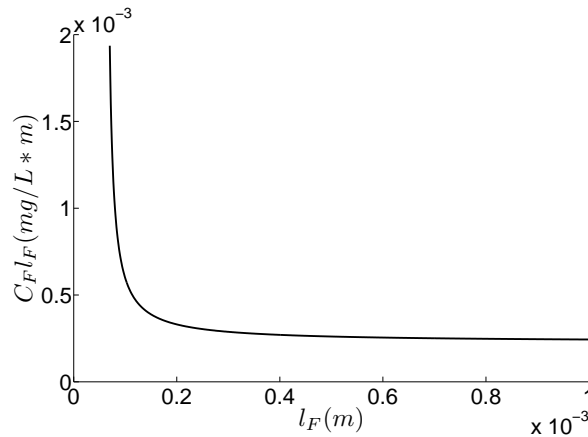


FIG. 5.12: Sensibilité de la variation de $C_F l_F$ à la valeur de l_F pour une valeur moyenne de R_{fluo} de 0.87 dans la zone Z_F . Cette courbe correspond au cas $Ar = 1200$.

Dans un deuxième temps, nous mesurons dans la même région A , la valeur moyenne de R_F sur une image aux temps longs. Puisque la répartition de l'oxygène est homogène entre les plaques aux temps longs, nous pouvons utiliser de façon directe la relation de Stern-Volmer pour déduire la valeur de concentration moyenne en oxygène entre les plaques $C_{F\infty}$. Grâce à la conservation de la masse dans A on obtient une seconde relation reliant C_F et l_F :

$$eC_{F\infty} = 2l_F C_F \quad (5.12)$$

La résolution du système formé par les équation 5.11 et 5.12 fournit les valeurs de l_F et C_F . Sur la base de ces valeurs, nous pouvons évaluer la valeur de C_P à l'aide de la relation 5.6 ; si notre modèle est robuste et que nos hypothèses sont justes, la valeur de C_P doit être proche de celle donnée directement par la relation 5.4.

5.3 Analyse quantitative du transfert de masse pour la bulle à $Ar=1200$.

5.3.1 Concentrations locales et moyennes en oxygène dissous dans les 3 zones de l'image ($Ar=1200$).

L'application de la démarche présentée ci-dessus permet, pour la bulle de la figure 5.6 ($Ar = 1200$), de trouver $l_F = 105\mu m$, $C_F = 5.8mg/L$ et $C_P = 0.24mg/L$, dans les zones Z_F et Z_P , respectivement. On vérifie donc bien l'hypothèse que $C_P \ll C_F$. L'application de la formule 5.6, établie pour la zone Z_{FP} , donne $C_P = 0.23mg/L$. Ceci valide notre hypothèse d'une valeur constante de C_P dans les zones Z_P et Z_{FP} . Par ailleurs la valeur de l_F est compatible avec l'ordre de grandeur qu'on obtient quand on considère la croissance par diffusion moléculaire d'une épaisseur de film initialement égale à $10\mu m$ pendant environ 4s, à savoir le temps pour la mesure après le passage de la bulle. La valeur de C_F et de l_F sont compatibles avec l'idée que les films de liquide puissent être saturés et que l'épaisseur du dépôt d'oxygène en paroi n'évolue que par diffusion. En effet, ramené à la taille initiale des films liquides de l'ordre de $10\mu m$, la masse du dépôt d'oxygène en paroi correspond à une concentration à saturation $45mg/L$.

On calcule alors les concentrations moyennes dans l'épaisseur entre les plaques : $C_{mF} = 1.17mg/L$; $C_{mP} = 0.24mg/L$ et $C_{mFP} = 1.36mg/L$. La figure 5.13(a) montre le champ de concentration en oxygène dissous pour cette bulle ; les 3 zones Z_F , Z_P et Z_{FP} sont bien visibles, chacune colorée par un niveau spécifique de concentration.

Remarquons ici que si on avait fait l'hypothèse que la concentration en oxygène est uniforme entre les plaques dans les 3 zones, on aurait calculé toutes les valeurs de concentration en oxygène directement à partir de la relation de Stern-Volmer. Les valeurs obtenues dans ce cas seraient : $C_{mF} = 0.54mg/L$; $C_{mP} = 0.24mg/L$; $C_{FP} = 0.78mg/L$. On sous-estimerait donc C_F par un facteur 2. Les figures 5.13(b) et (c) montrent le champ de concentration erroné ainsi calculé en grandeurs locales ou moyennées par zones. On voit dans cet exemple l'importance de la prise en compte de la non-linéarité de la loi de Stern-Volmer, pour des mesures par PLIF dans un plan éclairé sur une épaisseur non négligeable.

5.3.2 Masse d'oxygène transférée, flux, densité de flux, et nombre de Sherwood.

Nommons A_F , A_P et A_{FP} les surfaces des zones Z_F , Z_P et Z_{FP} de la fenêtre d'investigation, respectivement. Ces surfaces sont déterminées avec une bonne précision. Leur valeur en m^2 est obtenue à l'aide de l'étalonnage en espace établi à l'aide de la mire (voir chapitre 3) : 1 pixel = $77.3\mu m$. On peut calculer les grandeurs caractéristiques du transfert de masse entre la bulle et le liquide, pour les différentes zones sur une longueur L de l'image dans la direction x alignée avec le mouvement moyen. On calcule donc :

- la masse d'oxygène déposée dans la fenêtre d'investigation par les films :

$$M_F = 2l_F(A_F + A_{FP})C_F \quad (5.13)$$

- la masse d'oxygène déposée dans la fenêtre d'investigation par l'écoulement périphérique autour de la bulle :

$$M_P = [(e - 2l_F)A_{FP} + eA_P] C_P \quad (5.14)$$

- le temps mis par la bulle pour parcourir l'image :

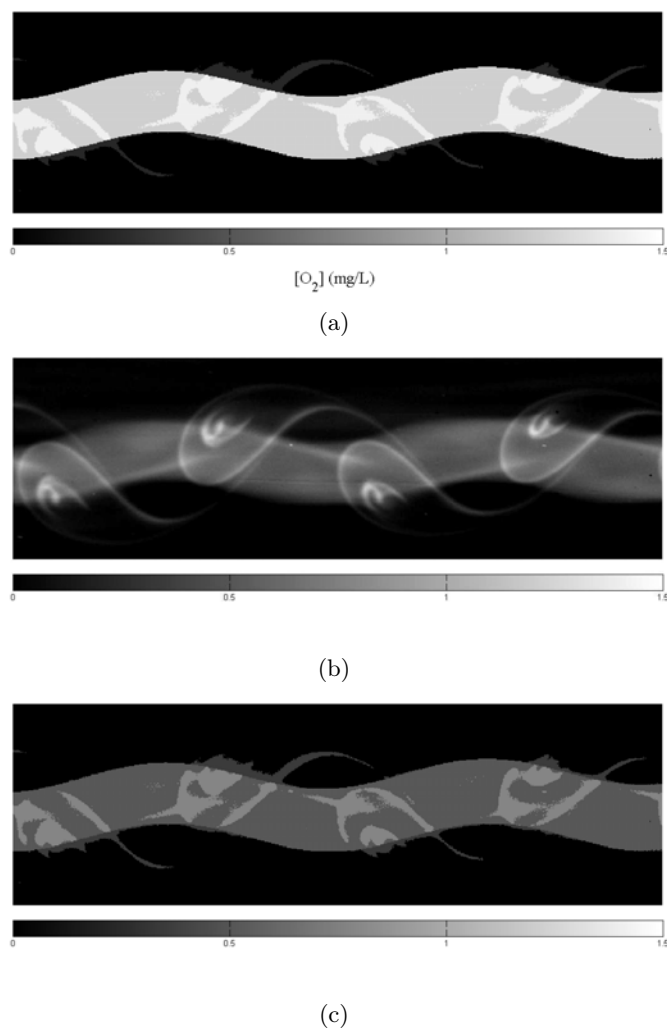


FIG. 5.13: Comparaison des distributions de concentration obtenues : (a) en appliquant la correction liée à l'inhomogénéité dans la direction z , (b) en appliquant la relation de Stern-Volmer au point, (c) en appliquant la relation de Stern-Volmer aux intensités moyennes par région.

$$\bar{t} = \frac{L}{U} \quad (5.15)$$

où U la vitesse moyenne de la bulle.

- le flux de masse issu de la zone des films :

$$\phi_F = \frac{M_F}{\bar{t}} \quad (5.16)$$

- le flux de masse issu de la zone en périphérie de la bulle :

$$\phi_P = \frac{M_P}{\bar{t}} \quad (5.17)$$

- la densité de flux de masse pour la zone des films :

$$\varphi_F = \frac{\phi_F}{2S_f} \quad (5.18)$$

- la densité de flux de masse pour la zone issue de la périphérie de la bulle :

$$\varphi_P = \frac{\phi_P}{S_p} \quad (5.19)$$

- la densité de flux de masse pour l'ensemble de la bulle :

$$\varphi_{tot} = \frac{M_F + M_P}{\bar{t}(S_p + 2S_f)} \quad (5.20)$$

- le nombre de Sherwood relatif à la dimension d de la bulle :

$$Sh = \frac{\varphi_{tot}d}{DC_s} \quad (5.21)$$

Pour la bulle ayant un nombre d'Archimède de 1200, nous avons calculé (avec la relation de Stern-Volmer) la masse totale d'oxygène présente dans la fenêtre de mesure, lorsque nous sommes aux temps longs. Cette masse ne diffère que de 7% par rapport à la masse totale présente dans la fenêtre de mesure lorsque nous sommes aux temps courts, ce qui permet de vérifier que la masse se conserve.

Pour cette bulle (à $Ar = 1200$), le tableau 5.2 résume les résultats obtenus. On constate que le flux de masse issu des films est environ 10 fois plus important que le flux de masse issu de la surface périphérique. Pour cette bulle relativement petite, les surfaces des films et la surface périphérique sont sensiblement égales ; de ce fait les densités de flux issues des 2 parties de la bulle diffèrent d'un facteur 10, comme les flux. Le calcul de la densité totale de flux de masse permet de bâtir un nombre de Sherwood qui, lorsqu'il est relatif à la taille de la bulle dans le plan des plaques, est d'environ 900. Le nombre de Sherwood associé au transfert en périphérie est lui de l'ordre de $Sh_P = \frac{\varphi_P d}{DC_s} \approx 200$. Cette valeur est correctement encadrée par les estimations données au chapitre 2 pour des interfaces mobiles ou pas ($120 < Sh < 580$ cf équations ??). Nous avons comparé le flux global échangé par la bulle au flux global qu'échangerait une bulle de même volume libre d'évoluer dans l'espace tridimensionnel. Le diamètre d'une telle bulle serait $d_{3D} = (3/2d^2e)^{1/3} \approx 3.5mm$. Nous avons calculé le nombre de Reynolds de cette bulle en adoptant la loi de vitesse $U = \sqrt{3.3\sigma/d_{3D}\rho_L}$ (Fabre et Legendre, 2000). La bulle de même volume a donc un nombre de Reynolds égal à environ 900. En utilisant la corrélation donnée dans l'équation 2.32 pour une interface mobile, qui maximise les transferts, on obtient alors un nombre de Sherwood égal environ à 700. La bulle tridimensionnelle délivre donc un flux global d'environ $10^{-3}mg/s$ comparable au flux échangé par la bulle confinée. La supériorité du transfert dans les films par rapport au transfert par la surface périphérique est donc démontrée ; mais à cette valeur du nombre d'Archimède, l'augmentation de surface par confinement des bulles comparativement aux bulles 3D de même volume n'est pas encore assez importante pour que le transfert dans les films s'impose de manière dominante.

$\phi_F(mg/s)$	$\phi_P(mg/s)$	$\varphi_F(mg/s/m^2)$	$\varphi_P(mg/s/m^2)$	Sh
7.4e-4	9.2e-5	25.4	3.76	914

TAB. 5.2: Flux, densités de flux et nombre de Sherwood global pour une bulle à $Ar = 1200$

5.4 Discussion des évolutions du transfert de masse avec Ar

Nous ne disposons pas pour nos essais aux autres nombres d'Archimède de prises d'images aux temps longs, parce que nos essais ont précédé la mise en place de la méthodologie définitive de mesure. Nous ne pouvons donc donner des estimations des transferts de masse que pour des valeurs arbitrairement choisies de l_F . Comme les enregistrements aux temps courts ont toujours été effectués dans les 3 à 4 secondes après le passage d'une bulle, et que l'épaisseur des films ne varie pas énormément avec Ar (figure 2.7), on peut néanmoins supposer de manière raisonnable que l'épaisseur des couches l_F reste, quel que soit Ar , de l'ordre de $100\mu m$ avec un épaissement de $\approx 50\mu m$ pendant la prise d'images pour le calcul de la moyenne. Nous avons donc calculé les flux échangés pour trois valeurs de l_F : $105\mu m$, $150\mu m$ et $200\mu m$.

L'évolution du nombre de Sherwood global en fonction de Ar est reportée sur la figure 5.14. Les valeurs reportées permettent de dégager une tendance indépendamment de l'hypothèse faite sur la valeur de l_F , à savoir que Sh augmente avec Ar si l_F n'augmente pas trop avec Ar . Une loi d'échelle ne peut cependant pas être identifiée en raison de la sensibilité des résultats à l'hypothèse sur l_F . De la même façon, on a reporté sur la figure 5.15 les nombres de Sherwood Sh_F et Sh_P définis à partir des densités de flux dans les films et à la surface périphérique de la bulle. Si Sh_F reste sensible à la valeur de l_F utilisée pour le calcul, Sh_P y est beaucoup moins sensible. On observe donc que $Sh_P(Ar)$ suit une loi linéaire en Ar . Hormis la mesure à $Ar = 11000$ le nombre de Sherwood dans les films Sh_F reste, quant à lui, compris entre 900 et 2000 et il ne présente aucune évolution notable avec le nombre d'Archimède à l_F fixé. Cela peut découler d'une saturation des films en oxygène. On peut enfin observer, qu'indépendamment des hypothèses sur l_F , l'efficacité des transferts est supérieure dans les films puisque le nombre de Sherwood des films est supérieur au nombre de Sherwood de la surface périphérique. Cet écart d'efficacité diminue cependant quand Ar augmente. La figure 5.16 compare le rapport des densités de flux issus des deux régions aux estimations faites au chapitre 2 (figure 2.13 (a)) pour des interfaces mobiles ou immobiles. Ces estimations encadrent nos mesures sans qu'on puisse annoncer la supériorité d'un modèle sur l'autre. De la même façon, le rapport des flux issus des deux types d'interface est prédit au premier ordre par l'analyse menée au chapitre 2 (figure 5.17). Si les densités de flux sont environ du même ordre, on voit bien que le flux de masse issu des films dépasse, lui, celui de la périphérie d'un facteur de 5 à 10. Cette constatation rend notre dispositif expérimental prometteur du point de vu du flux global de transfert de masse.

5.5 Synthèse

Nous avons présenté dans ce chapitre des résultats expérimentaux obtenus dans notre cellule bidimensionnelle à l'aide de la technique PLIF, utilisée avec inhibition de la fluorescence. Ces résultats ont été extraits d'images présentant la trace en oxygène dissous laissée dans la fenêtre de visualisation par des bulles d'oxygène pur en ascension dans de l'eau distillée contenant $12.5mg/L$ de complexe de Ruthénium et 9% volumiques d'éthanol. Ces bulles sont caractérisées par un nombre adimensionnel d'Archimède Ar variant de 200 à 11000 ; le nombre de Schmidt caractéristique pour toute l'étude est de 500. Pour toutes les images cette trace est exploitée 1.6s après le passage de la bulle dans la fenêtre, lorsque les perturbations dues au sillage sont éteintes et que seule la diffusion moléculaire de l'oxygène peut faire évoluer la répartition spatiale

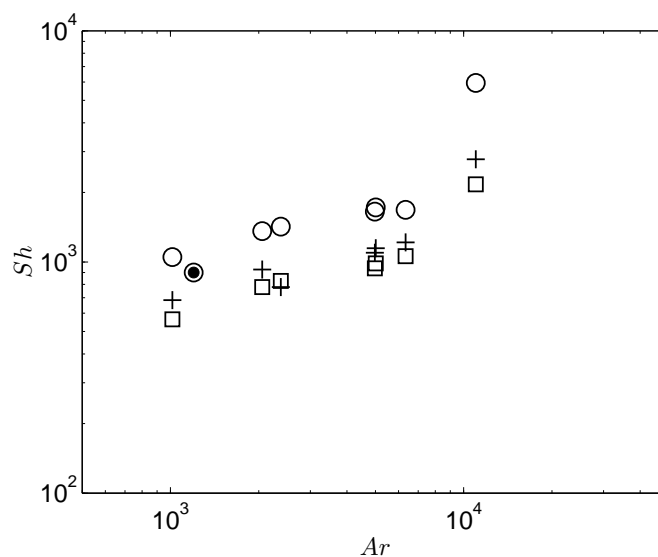


FIG. 5.14: Nombre de Sherwood global en fonction de Ar . (rond : $l_F = 105\mu\text{m}$; croix $l_F = 150\mu\text{m}$; carrés $l_F = 200\mu\text{m}$; rond noir : essai à $Ar = 1200$ avec mesure de l_F à partir des images aux temps longs).

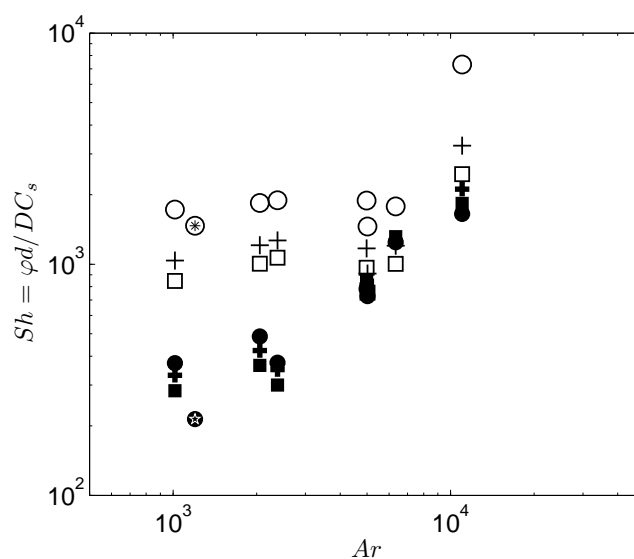


FIG. 5.15: Nombres de Sherwood en fonction de Ar : Marqueurs clairs : Sherwood associé aux échanges dans le film ; Marqueurs noirs : Sherwood associé aux échanges à la surface périphérique. (rond : $l_F = 105\mu\text{m}$; croix $l_F = 150\mu\text{m}$; carrés $l_F = 200\mu\text{m}$; étoiles : essai à $Ar = 1200$ avec mesure de l_F à partir des images aux temps longs.)

de l'oxygène dissous dans le plan des plaques mais aussi dans l'épaisseur entre les plaques. Ce phénomène étant lent, il a été possible d'utiliser des moyennes d'images successives sur une durée totale d'environ 2.5 secondes sans que la netteté des images en pâtisse. On s'affranchit ainsi des hétérogénéités temporelles de l'éclairage dans la fenêtre de visualisation.

Pour l'analyse de ces images, nous avons mis en place une méthodologie complète qui autorise leur analyse quantitative et qui donne accès, dans le plan des plaques, au champ de la concen-

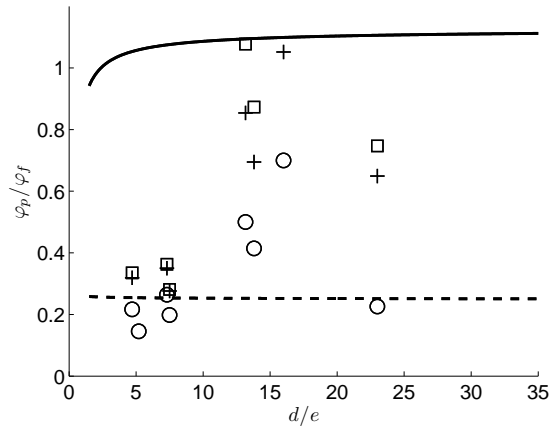


FIG. 5.16: Rapport des densités de flux en fonction de d/e . rond : $l_F = 105\mu\text{m}$; croix $l_F = 150\mu\text{m}$; carrés $l_F = 200\mu\text{m}$; - - condition de non glissement ; - condition de glissement.

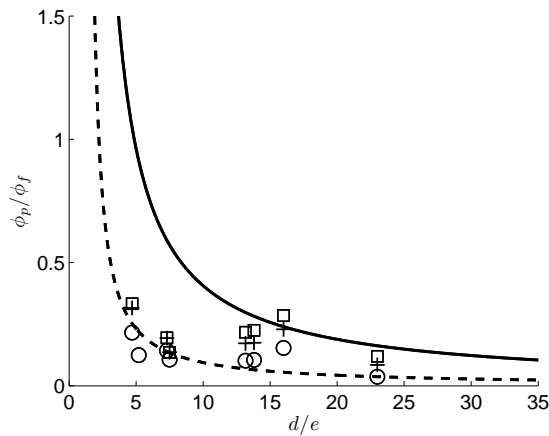


FIG. 5.17: Rapport des flux en fonction de d/e . rond : $l_F = 105\mu\text{m}$; croix $l_F = 150\mu\text{m}$; carrés $l_F = 200\mu\text{m}$; - - condition de non glissement ; - condition de glissement.

tration d'oxygène dissous moyennée dans l'épaisseur entre les plaques. Nous pensons que cette méthodologie doit être appliquée à toute expérience où l'éclairage laser illumine une épaisseur non négligeable de fluide intégrée dans la profondeur de champ de la caméra, par exemple en micro-canal lorsque se produisent des hétérogénéités de concentration dans la section du canal. Il est en particulier indispensable de tenir compte de la non-linéarité de la loi de Stern-Volmer qui relie l'intensité de fluorescence émise en un point à la concentration locale en oxygène, sous peine de commettre des erreurs importantes, ainsi que nous l'avons démontré. La méthode d'analyse des champs de fluorescence nécessite donc un modèle de répartition de l'oxygène dans l'épaisseur de la couche éclairée. Pour une configuration expérimentale confinée où le frottement aux parois annihile rapidement la perturbation du fluide au passage des bulles, nous préconisons l'utilisation d'images prises aux temps longs après le passage de la bulle, lorsque cela est techniquement possible.

Sur la base des images obtenues dans cette étude, et à la lumière des connaissances apportées au chapitre 4 sur l'hydrodynamique de ces bulles, nous avons fait plusieurs constatations intéressantes, que nous reportons ici.

La trace d'oxygène dissous laissée par une bulle dans notre cellule confinée se développe selon des formes diverses. Ces formes sont liées à la trajectoire de la bulle dans le plan des plaques : oscillation ou montée rectiligne.

La trace des bulles montre des zones plus ou moins fluorescentes, donc plus ou moins chargées en oxygène. Dans tous les cas (toute valeur de Ar), on observe : (i) un ruban d'oxygène dissous déposé dans les films liquides tout près des parois ; lorsque la bulle a un mouvement oscillant, le ruban a une forme sinusoïdale dont la longueur d'onde est naturellement celle de la trajectoire de la bulle. (ii) des structures plus pâles, donc moins concentrées en oxygène, qui correspondent au sillage de l'écoulement bidimensionnel qui a contourné la périphérie de la bulle ; ces structures sont déposées dans l'épaisseur entre les plaques par des tourbillons ($Ar < 6300$), ou bien développent une bande plus étroite que le ruban dû aux films liquides (cas des calottes). Pour des nombres d'Archimède modérés (de l'ordre de 1000), on observe dans le plan de visualisation que ces deux zones peuvent se chevaucher.

Nous avons mis en évidence pour ces traces de bulles que les couches massiques en parois, issues des films, sont bien plus concentrées en oxygène que la zone centrale de la veine, issue de l'écoulement périphérique, et que ces deux types de dépôt sont bien stratifiés entre les plaques. Nous avons proposé un modèle simplifié de répartition de l'oxygène dans l'épaisseur entre les plaques pour les différentes zones de la trace de bulle ; ce modèle a été validé par la cohérence des valeurs de la concentration dans les différentes couches envisagées.

Nous avons montré comment la comparaison d'images prises aux temps courts et d'images prises aux temps longs après le passage de la bulle permettent l'estimation de l'épaisseur l_F de la couche massique en paroi, issue des films. Pour une bulle telle que $Ar=1200$ nous avons identifié que cette couche a $105\mu m$ d'épaisseur aux temps courts (entre 1.6 et 2.6s après le passage la bulle). Pour l'ensemble de nos images nous avons utilisé 3 valeurs de l_F autour de cet ordre de grandeur (100, 150 et $200\mu m$) ; dans notre gamme de paramètres les résultats en densité de flux de transfert d'oxygène montrent des variations avec Ar très similaires pour ces 3 valeurs de l_F .

L'étude des variations des flux de transfert avec Ar a révélé que pour les petites bulles (jusqu'à $Ar = 3000$, environ), la densité de flux issue de l'écoulement bidimensionnel qui contourne la bulle varie à peu près linéairement en Ar , mais est faible devant la densité de flux issue des zones de films. Cette dernière varie peu avec Ar . Au-delà de $Ar = 3000$, les densités de flux issues des 2 régions de la bulle sont du même ordre de grandeur mais, du fait des différences entre les surfaces offertes au transfert, le flux issu des films est de 5 à 10 fois plus important que celui de la périphérie.

Conclusion

Ce travail expérimental a été consacré à l'étude de l'ascension de bulles isolées de différentes tailles d dans une cellule étroite remplie d'eau au repos de type cellule de Hele-Shaw. Le confinement impose aux bulles un fort aplatissement et ne leur permet de se mouvoir que dans le plan moyen des plaques. Les régimes d'écoulements étudiés restent néanmoins inertiels parce que le rapport $Re(e/d)^2$ reste compris entre 10 et 100. Ces régimes ont été peu étudiés jusqu'ici. Pour une large gamme de tailles de bulles dans de l'eau, nous avons caractérisé la forme des bulles, leur trajectoire, leur sillage, et le flux d'oxygène transféré à l'interface, au moyen des techniques d'ombroscopie, de PIV, et de PLIF avec inhibition de la fluorescence (système oxygène - complexe de Ruthenium).

Dans notre étude le nombre d'Archimède varie de 200 à 11 000 et le nombre de Bond varie de 0.1 à 100 environ. Les variations de ces nombres adimensionnels sont liées aux variations du volume de gaz injecté. Ce volume contrôle également les variations du dernier nombre adimensionnel caractéristique du problème : le rapport de l'interstice au diamètre e/d qui varie dans la gamme $0.02 < e/d < 1$. Lorsque e/d est suffisamment faible (au delà de $Ar = 600$) une dynamique réellement bidimensionnelle se met en place, et, pour $Ar > 600$ où on vérifie ces conditions, nous avons observé plusieurs formes de bulles dans le plan des plaques, passant des disques aux ellipsoïdes, puis aux ellipsoïdes déformés, et jusqu'aux calottes hémicylindriques. La mise en évidence d'une loi de vitesse d'ascension moyenne gravitationnelle démontre le rôle mineur du frottement dans les films vis à vis de la dynamique globale de la bulle pour tous les nombres d'Archimède. Le mouvement de ces bulles 2D présente d'abord des oscillations, pour redevenir rectiligne pour les plus grosses calottes. La forme de la bulle 2D subit elle aussi des oscillations importantes pour $1500 < Ar < 10000$ car le nombre de Bond devient alors supérieur à l'unité. Ces oscillations se développent dans le plan entre les plaques de la cellule. Dans cette gamme de nombres d'Archimède nous avons donc étudié des bulles 2D à grand nombre de Reynolds en présence de forte déformation moyenne et d'oscillations couplées de trajectoire et de forme. Les nombres d'Archimède critiques séparant les différents régimes hydrodynamiques pour nos bulles bidimensionnelles ont été identifiés. Lorsque le mouvement des bulles est oscillant, le sillage de la bulle présente une allée de tourbillons alternés contrarotatifs, alors que les calottes ont un sillage stationnaire. Il a été mis en lumière que les oscillations de forme et de trajectoire échangent de l'énergie avec et au moyen des mouvements du fluide dans le sillage. Une similitude nette avec les oscillations de forme et de trajectoire des corps cylindriques épais a été constatée : elles sont soumises à des modifications similaires lorsque le rapport de forme varie. Cela démontre le rôle important et générique du rapport de forme sur la dynamique d'inclusions libres d'évoluer à grand nombre de Reynolds. La perturbation dans le liquide après le passage d'une bulle est très rapidement éteinte dans cette cellule par le frottement visqueux aux parois : la vorticit  des tourbillons, lorsqu'ils existent, d'une part, et les vitesses ascendantes du liquide derri re les calottes, d'autre part, d croissent exponentiellement dans le temps et l'espace ; les tourbillons sont  teints avant d'avoir diffus  dans le plan. D'une fa on g n rale la perturbation

de l'écoulement liquide après le passage d'une bulle disparaît sur un temps caractéristique de l'ordre de e^2/ν .

Cette propriété particulière de l'écoulement dans notre cellule confinée est extrêmement intéressante pour l'étude du transfert de masse : la trace en oxygène dissous laissée par une bulle d'oxygène en ascension dans de l'eau désoxygénée est d'abord très rapidement déposée, et puis n'évolue plus que par diffusion dans l'épaisseur entre les plaques comme dans le plan des plaques. L'oxygène dissous est transféré et transporté par deux mécanismes distincts dont les traces ne se mélangent donc que très peu. D'une part (i) de l'oxygène est transféré vers les films liquide et est déposé en une bande verticale de largeur égale à celle de la bulle ; d'autre part (ii) de l'oxygène est transféré sur le pourtour de la bulle et est transporté par le sillage de la bulle. Ce transport dans les sillages donne lieu, selon les régimes, soit à des enroulements associés à l'existence d'une allée tourbillonnaire, soit à une seconde bande verticale, plus étroite que celle issue des films, correspondant au transport de l'oxygène émis à la surface périphérique dans le sillage stationnaire vers l'arrière les calottes. Pour accéder aux flux de masse échangés aux interfaces nous avons mis en place une mesure des masses d'oxygène déposées après le passage des bulles. La présence d'hétérogénéités de concentrations dans l'interstice, associée à notre prise d'image PLIF intégrée dans l'épaisseur en présence d'un éclairage en volume, a soulevé des difficultés pour la mesure des champs de concentrations moyennés dans l'interstice. Cela nous a incités à développer une méthodologie particulière. Elle repose sur une proposition de représentation simplifiée des profils de concentration dans l'interstice, qui demande que l'on estime l'épaisseur du dépôt surconcentré en proche paroi. Cette épaisseur, qui est cruciale pour l'estimation, peut être mesurée en comparant les intensités lumineuses à l'instant de mesure et aux temps longs pour lesquels l'oxygène déposé s'est réparti uniformément dans l'interstice par diffusion moléculaire. La méthodologie a été testée pour un nombre d'Archimède fixé. Elle a permis de montrer que l'ensemble des hypothèses de calcul, loin d'être mis en défaut, permet une estimation raisonnable des concentrations et des masses échangées aux interfaces. Nous n'avons pas pu mettre en oeuvre cette méthodologie pour l'ensemble de nos essais aux différents nombres d'Archimède. Cependant, nous avons calculé les évolutions des nombres de Sherwood associés aux transferts dans les films et aux interfaces périphériques en prenant arbitrairement des valeurs raisonnables d'épaisseur de dépôt. Ces estimations démontrent la prépondérance des densités de flux de masse issu des films sur celles du pourtour de la bulle pour $Ar < 3000$. Au delà, l'importance de la surface des films devant celle du pourtour de la bulle donne beaucoup de poids au flux de masse des films. De plus le nombre de Sherwood basé sur la densité de flux issue des films évolue peu avec Ar , alors que le nombre de Sherwood associé au transfert du pourtour augmente avec Ar . La mesure à $Ar = 1200$ montre que le nombre de Sherwood global, c'est à dire rendant compte du transfert de masse global pour une bulle, est multiplié par un facteur 1.3 au moins par rapport au transfert de masse pour des bulles isolées tridimensionnelles. L'analyse des transferts de masse autour d'une bulle isolée devra être approfondie, mais ces premiers résultats confirment l'intérêt de réaliser du transfert de masse autour de bulles en les confinant pour que les films activent ces transferts.

L'évaluation de notre cellule expérimentale en tant que contacteur gaz-liquide doit être poursuivie. Par comparaison avec les monolithes, ce dispositif présente a priori des avantages spécifiques : le mouvement oscillant des bulles, observé dans une large gamme de Ar (600 à 10000), doit permettre un meilleur temps de séjour des bulles dans la cellule (pour une même vitesse d'ascension) ; d'un point de vue pratique, la largeur de la cellule doit faciliter l'uniformité de l'injection de gaz en pied d'appareil. Une perspective intéressante à notre travail, également prospective d'un point de vue applicatif, consisterait donc à étudier l'hydrodynamique et les

transferts de masse d'un nuage de bulles bidimensionnel.

Enfin, un résultat important de ce travail est la mise en place des méthodologies de mesure PIV et PLIF adaptées à la mesure en cellule de Hele-Shaw. Ces méthodologies pourront être réutilisées pour la poursuite des recherches que ce soit sur la problématique de bulles isolées dans des conditions physico-chimiques différentes ou sur la problématique de l'ascension d'un nuage de bulles 2D confiné.

Annexe

Nous allons calculer ici le volume de la bulle \mathbf{V} ainsi que des aires S_f et S_p (figure 2.8) en fonction des caractéristiques de la forme projetée (aire S et périmètre p) et de l'épaisseur entre plaques e (figure 2.5). Pour cela on utilise le système de coordonnées cylindrique (r, θ, z) avec $0 \leq \theta \leq 2\pi$, $-e/2 \leq z \leq e/2$ et $0 \leq r \leq \tilde{R}$ (figure 5.18). La longueur \tilde{R} correspond à la distance entre un point appartenant à S_p et l'axe Oz (figure 5.18). Nous utiliserons dans la suite la longueur R qui est définie par $R = \tilde{R}(\theta, z = 0)$. Le point O correspond au barycentre des points appartenant à la surface projetée. On supposera que l'épaisseur du film liquide est négligeable devant e .

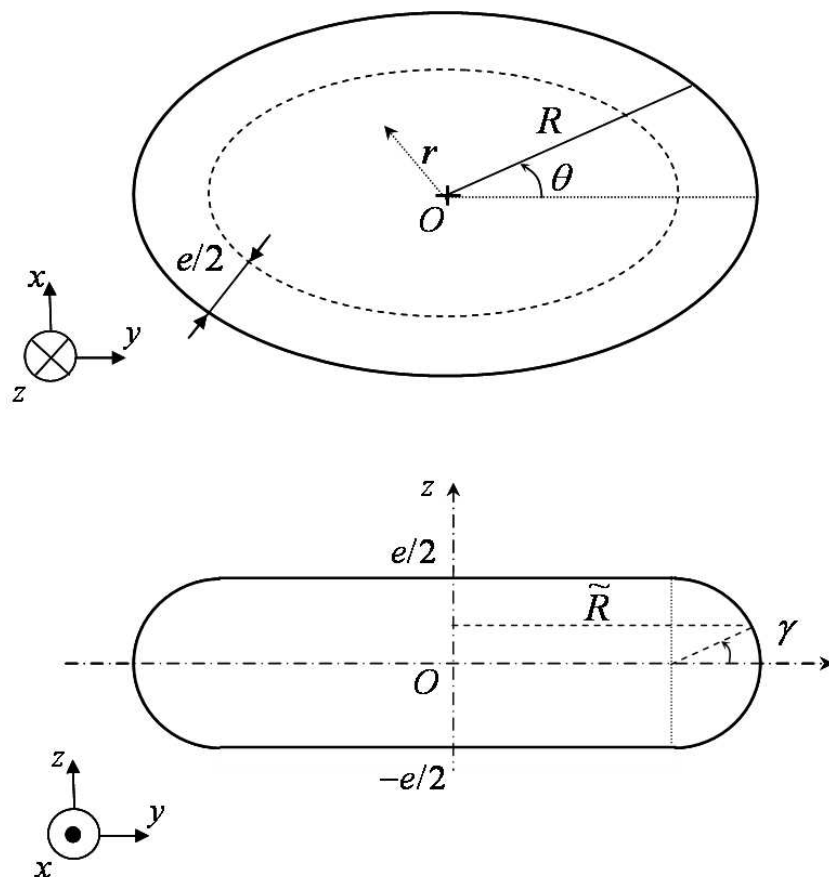


FIG. 5.18: Projection de la bulle dans le plan des plaques (figure du haut). Vue en coupe de la bulle dans un plan contenant l'axe Oz (figure du bas).

L'aire de la surface S vaut :

$$S = \int_0^{2\pi} \int_0^{R(\theta)} r dr d\theta, \quad (5.22)$$

et s'intègre en

$$S = \frac{1}{2} \int_0^{2\pi} R^2 d\theta. \quad (5.23)$$

Quant au périmètre il s'écrit :

$$p = \int_0^{2\pi} R d\theta. \quad (5.24)$$

5.6 Calcul du volume

Le volume de la bulle s'écrit :

$$\mathbf{V} = 2 \int_0^{2\pi} \int_0^{e/2} \left[\int_0^{\tilde{R}(\theta)} r dr \right] dz d\theta. \quad (5.25)$$

En intégrant 5.25 suivant la variable r on obtient :

$$\mathbf{V} = \int_0^{2\pi} \int_0^{e/2} \tilde{R}^2 dz d\theta. \quad (5.26)$$

L'intersection de la surface de la bulle avec un plan orthogonal au plan contenant l'axe Oz est représentée figure 5.18 (schéma du bas). Pour $R - e/2 \leq r \leq R$ elle correspond à un demi cercle de rayon $e/2$. Ainsi, la relation entre \tilde{R} et z s'écrit :

$$\tilde{R}(\theta, z) = R(\theta) - \frac{e}{2} + \sqrt{\frac{e^2}{4} - z^2} \quad (5.27)$$

En remplaçant 5.27 dans 5.26 on obtient :

$$\mathbf{V} = A + B + C \quad (5.28)$$

$$A = \frac{e}{2} \int_0^{2\pi} \left(R - \frac{e}{2} \right)^2 d\theta \quad (5.29)$$

$$B = 2 \int_0^{2\pi} \left(R - \frac{e}{2} \right) d\theta \int_0^{e/2} \sqrt{\frac{e^2}{4} - z^2} dz \quad (5.30)$$

$$C = \int_0^{2\pi} \int_0^{e/2} \left(\frac{e^2}{4} - z^2 \right) dz d\theta \quad (5.31)$$

On remarquera que le terme A correspond au volume du cylindre de hauteur e et de rayon $R - e/2$. En utilisant les expressions 5.23 et 5.24 on obtient A , B et C en fonction de S et p :

$$A = eS - \frac{e^2}{2}p + \frac{\pi}{4}e^3 \quad (5.32)$$

$$B = \frac{\pi e^2}{8} p - \frac{\pi^2 e^3}{8} \quad (5.33)$$

$$C = \pi \frac{e^3}{6} \quad (5.34)$$

Lorsque $R = e/2$ on retrouve bien le volume de la sphère de rayon $e/2$ qui est $V = \pi e^3/6$. D'autre part, lorsque l'on fait tendre le rapport e/R vers 0, le volume de la bulle devient proche de celui du cylindre de surface S et d'épaisseur e ($V \cong eS$).

5.7 Calcul des surfaces

Calcul de S_f

La surface en contact avec les films liquides S_f s'écrit :

$$S_f = \int_0^{2\pi} \int_0^{R-e/2} r dr d\theta \quad (5.35)$$

En utilisant les définitions de S et p (relations 5.23 et 5.24) nous obtenons :

$$S_f = S - \frac{e}{2} p + \frac{\pi e^2}{4} \quad (5.36)$$

Il est intéressant de remarquer que dans le cas de la bulle sphérique ($R = e/2$) on a $S_f = 0$.

Calcul de S_p

Pour calculer S_p on utilisera la coordonnée γ (figure 5.18).

$$S_p = 2 \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} \tilde{R} \frac{e}{2} d\gamma d\theta \quad (5.37)$$

Ou \tilde{R} est lié à γ par :

$$\tilde{R} = R - \frac{e}{2} + \frac{e}{2} \cos\gamma \quad (5.38)$$

Par conséquent, S_p s'écrit en fonction γ de la manière suivante :

$$S_p = 2 \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi/2} \frac{e}{2} \left(R - \frac{e}{2} + \frac{e}{2} \cos\gamma \right) d\gamma d\theta \quad (5.39)$$

L'équation 5.39 s'intègre en :

$$S_p = \pi \frac{e}{2} p - \pi^2 \frac{e^2}{2} + \pi e^2 \quad (5.40)$$

Dans le cas de la bulle sphérique ($R = e/2$), on retrouve bien l'aire de la sphère $S = \pi e^2$.

Bibliographie

- AKITA K. & YOSHIDA F. 1973 Gas holdup and volumetric mass transfer coefficient in bubble columns. *Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.* **12**, 76.
- ALBANI J.-R. 2001 Absorption et fluorescence. Principes et applications. *Ed. Tec & Doc*.
- ASMOLOV, E. S. 1999 The inertial lift on a spherical particle in a plane Poiseuille flow at large channel Reynolds number. *J. Fluid Mech.* **381**, 63–87.
- AUSSILLOUS, P., QUÉRÉ, D. 2000 Quick deposition of a fluid on the wall of a tube. *Phys. fluids.* **10**, 12.
- BESSLER, W. F. & LITTMAN H. 1987 Experimental studies of wakes behind circularly capped bubbles. *J. Fluid Mech.* **185**, 137–151.
- BRETHERTON, F. P. 1961 The motion of long bubbles in tubes. *J. Fluid Mech.* **10**, 166.
- BUSH, J. W. M. & EAMES, I. 1998 Fluid displacement by high Reynolds number bubble motion in a thin gap. *J. Fluid Mech.* **24**, 411–430.
- CHAUMAT, H. 2004 Caractérisation locale et globale d'une colonne à bulles en conditions industrielles. Thèse de l'INPToulouse.
- CLIFT, R., GRACE, J. R. & WEBER, M. E. 2004 Bubbles, drops and particles. Academic Press, 1978.
- COLLINS, R. 1964 A simple model of the plane gas bubble in a finite liquid. *J. Fluid Mech.* **22**, 763–771.
- DANI, A., GUIRAUD, P. & COCKX A. 2007 Local measurement of oxygen transfer around a single bubble by planar laser-induced fluorescence. *Chem. Eng. Sci.* **62**, 7245–7252.
- DANI, A. 2007 Transfert de masse entre une bulle et un liquide : simulations numériques directes et fluorescence induite par nappe laser. Thèse de l'INSA de Toulouse.
- DE GENNES, P. G., BROCHARD-WYART F. & QUÉRÉ D. 2002 Gouttes, bulles, perles et ondes. *Ed. Belin*.
- DUDUKOVIC, M. P., LARACHI F. & MILLS P. L. 1999 Multiphase reactors - revisited. *Chem. Eng. Sci.* **54**, 1975–1995.
- ELLINGSEN, K. & RISSO, F. 2001 On the rise of ellipsoidal bubble in water : oscillatory paths and liquid-induced velocity. *J. Fluid Mech.* **440**, 235.

- FERNANDES, P. C., RISSO, F., ERN, P. & MAGNAUDET, J. 2005 On the zigzag dynamics of freely moving axisymmetric bodies. *Phys. fluids*. **17**, 098107.
- FERNANDES, P. C., RISSO, F., ERN, P. & MAGNAUDET, J. 2007 Oscillatory motion and wake instability of freely rising axisymmetric bodies. *J. Fluid Mech.* **573**, 479–502.
- HORVATH, C., SOLOMON, B. A. & ENGASSER, H.-M. 1973 Measurement of radial transport in slugflow using enzyme tubes. *Industrial and Engineering Chemistry Fundamentals*. **12**, 431–439.
- IRANDOUST, S. & ANDERSSON, B. 1989 Liquid film in Taylor flow through a capillary. *Industrial and Engineering Chemistry Research*. **28**, 1684.
- KELLEY, E., WU, M. 1997 Path instability of rising bubbles in a Hele-Shaw cell. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 7.
- KREUTZER, M. T., DU, P., HEISZWOLF J. J., KAPTEIJN F. & MOULIJN J. A. 2001 Mass transfer characteristics of three phase monolith reactors. *Chem. Eng. Sci.* **56**, 6015–6023.
- KREUTZER, M. T., KAPTEIJN F., MOULIJN J. A. & HEISZWOLF J. J. 2005 Multiphase monolith reactors : Chemical reaction engineering of segmented flow in microchannels. *Chem. Eng. Sci.* **60**, 5895–5916.
- KREUTZER, M. T., KAPTEIJN F. & MOULIJN J. A. 2006 Shouldn't catalysts shape-up? Structured reactors in general and gas-liquid monolith reactors in particular. *Catalysis Today*. **111**, 111–118.
- LECORDIER B. 1997 Etude de l'interaction de la propagation d'une flamme prémélangée avec le champ aérodynamique, par association de la tomographie laser et de la vélocimétrie par images de particules. Thèse de l'université de Rouen.
- LECORDIER B., DEMARE D., VERVISCH L. M. J., RÉVEILLON J., & TRINITÉ M. 2004 Estimation of the accuracy of PIV treatments for turbulent flow studies by direct numerical simulation of multi-phase flow. , *Meas. Sci. Technol.* **12**, 1382–1391.
- LIU, W., ROY, S., & GUAZZELLI E. 2004 Effect of channel shape on gas/liquid catalytic reaction performance in structured catalyst/reactor. *Chem. Eng. Sci.* **59**, 4927–4939.
- LUNDE, K. & PERKINS R. 1998 Shape oscillation of rising bubbles. *Applied Scientific Research*. **58**, 387–408.
- MOUGIN, G., & MAGNAUDET, J. 2006 Wake-induced forces and torques on a zigzagging/spiralling bubble. *J. Fluid Mech.* **567**, 185–194.
- MAINHAGU, J., OLTEAN, C., GOLFIER, F. & BUÈS, M. A. 2007 Measurement by Laser Induced Fluorescence on miscible density driven flows in a Hele-Shaw cell : settings and preliminary results. *C. R. Mecanique* **335**, 105–112.
- MATAS, R., MORRIS, J. F., & GUAZZELLI E. 2004 Lateral forces on a sphere. *Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP* **1**, 59–70.
- MATAS, R., MORRIS, J. F., & GUAZZELLI E. 2004 Inertial migration of rigid spherical particles in Poiseuille flow. *J. Fluid Mech.* **515**, 171–195.

- MOREL, S. 2000 Etude par imagerie laser de la génération et de la rupture d'un écoulement tourbillonnaire compressé. Situation modèle pour la validation de simulations aux grandes échelles dans les moteurs. Thèse de l'INPToulouse.
- PARK, C.-W. & HOMS Y G. M. 1984 Two-phase displacement in Hele-Shaw cells : Theory. *J. Fluid Mech.* **139**, 291.
- ROY, S. & DUKE S. R. 1984 Laser induced fluorescence measurements of dissolved oxygen concentration fields near air bubble surfaces. *Rev. of Scientific Instruments* **71**, 9.
- SAFFMAN, P. G. & TAYLOR, G. I. 1958 The penetration of a fluid into a porous medium or Hele-Shaw cell containing a more viscous liquid. *Proc. R. Soc. London Ser. A* **245**, 312.
- SEGRÉ, G. & SILBERBERG A. 1962 Behaviour of macroscopic rigid spheres in Poiseuille flow Part 2. Experimental results and interpretation. *J. Fluid Mech.* **14**, 136–157.
- SHEW, W. L. & PINTON J.-F. 2006 Dynamical model of bubble path instability. *Phys Rev Lett.* **97**, 144508.
- TAYLOR, G. I. 1961 Deposition of a viscous fluid on the wall of wall of a tube. *J. Fluid Mech.* **10**, 479–502.
- THULASIDAS, T. C., ABRAHAM, M. A., & CERRO R. L. 1995 Bubble-train flow in capillaries of circular and square cross section. *Chem. Eng. Sci.* **50**, 183–199.
- THULASIDAS, T. C., ABRAHAM, M. A., & CERRO R. L. 1997 Flow patterns in liquid slugs during bubble-train flow inside capillaries. *Chem. Eng. Sci.* **52**, 2947–2962.
- TRAMBOUZE, P., VAN LANDEGHEM H. & WAUQUIER J.P. 1984 Les réacteurs chimiques, conception/calcul/mise en IJuvre. *Publications de l'Institut Français du Pétrole, collection "science et technique du pétrole"*. **26**.