18<sup>ème</sup> Congrès Français de Mécanique

Grenoble, 27-31 août 2007

# Perméabilité d'une mousse ultra rigide

#### Elise Lorenceau, Florence Rouyer, Olivier Pitois

Université de Marne-la-Vallée LPMDI - UMR 8108 CNRS Elise.lorenceau@univ-mlv.fr

## **Résumé :**

Nous nous intéressons à l'écoulement de liquide au sein d'un milieu poreux constitué d'un empilement de sphères molles. Du fait de leurs grandes déformabilités, une compression de l'empilement permet à la géométrie de la phase interstitielle d'évoluer et de s'approcher de celle d'une mousse (ou d'une émulsion) où les bulles (ou gouttes) sont remplacées par des billes solides. Toutefois, dans ce type d'expérience, à la différence de ce qui se passe dans une mousse, les conditions aux limites à la paroi sont celles d'une interface parfaitement rigide. Ce type de milieu simule donc fidèlement le comportement d'une mousse dont les interfaces seraient totalement figées -on parle alors de mousse "ultra-rigide".

En diminuant le volume de la cellule d'étude, nous montrons qu'il est possible de passer d'une configuration "humide" - ou la perméabilité est régie par la géométrie d'un nœud - à une configuration "sèche" - ou la vitesse d'écoulement est déterminée par la géométrie des bords de Plateau - exactement de la même manière que dans une mousse ou une émulsion.

### Abstract :

We consider flow within a porous media made of soft gel spheres. When such a media is compressed, the geometry of the inner phase is reminiscent of the geometry of the liquid network in emulsion or foam. In this porous media, the velocity at the wall is exactly null (solid boundary conditions) hence mimicking a foam where the interfaces would be perfectly rigid. We call such a media "ultra-rigid" foam.

While compressing the volume of our cell, we show that the permeability's scaling law evolves from a humid regime - where the dissipation occurs within the wet nodes - to a wet regime – where the dissipation occurs within the Plateau borders exactly as in a foam.

### Mots-clefs : perméabilité ; mousse ; milieu poreux

#### 1 Introduction

Les mousses ou émulsions sont de plus en plus présentes dans notre vie quotidienne. Ainsi, dans le contexte actuel du développement durable, ces milieux occupent une place de plus en plus prépondérante en raison de la faible fraction de liquide à recycler qu'ils contiennent. Les agents actifs nécessaires à l'application recherchée, sont alors véhiculés au sein de la phase liquide des mousses (ou phase continue des émulsions). Dans ce contexte, les études concernant l'écoulement de la phase continue au sein de la phase dispersée (communément appelée drainage) et sa capacité à transporter des agents actifs, éventuellement solides, sont de première importance.

A première vue, il semble possible de s'appuyer sur le cadre théorique, expérimental et numériques mis en place sur les milieux poreux depuis Darcy. Dans le catalogue des milieux divisés, les milieux poreux désignent des matériaux pour lesquels la phase solide, fortement imbriquée avec la phase fluide, est immobile -la pression de liquide n'étant en effet généralement pas suffisante pour déformer -plastiquement ou élastiquement- la phase solide. Un milieu poreux et une mousse (ou une émulsion) sont donc assez semblables dès que l'on

considère que i) pour une mousse, la phase solide correspond aux bulles (ou aux gouttes) ii) les débits volumiques mis en œuvre dans les expériences de drainage sont suffisamment faibles pour que le réseau de bulles soit effectivement fixe. Il existe également des différences notables entre ces deux types de milieux. Tout d'abord, les conditions aux limites aux parois dans une mousse (ou émulsion), c'est-à-dire entre la phase fluide en écoulement et la phase immobile, dépendent de la physico-chimie des interfaces. Selon la nature des molécules tensio-actives adsorbées aux interfaces, la vitesse du fluide à la paroi sera nulle (ou presque) –on qualifiera ce type d'interface de rigide par analogie avec une interface solide – ou non nulle – l'interface étant alors qualifiée de mobile. Ensuite, les mousses et émulsions ont la propriété originale d'être des milieux poreux continûment déformables. Alors que la fraction volumique liquide  $\varepsilon$  d'un poreux solide est généralement fixée, la fraction volumique de liquide au sein d'une mousse peut varier continûment de 45% (la fraction volumique liée à la compacité d'un empilement de sphères aléatoires non déformée) à quelques fractions de 1% si la mousse est extrêmement sèche.

Ces propriétés - géométriques et physico-chimiques - spécifiques des mousses par rapport aux milieux poreux expliquent à la fois la richesse des comportements observés dans les mousses, en particulier la multiplicité des régimes de drainage observés (reportés dans l'ensemble des références de cet article), mais également les difficultés rencontrées pour expliquer ces régimes d'écoulement. Ainsi, en dépit des multiples études consacrées à ce sujet, il reste difficile de dégager l'influence de la taille des bulles -en particulier des plus petites (Saint-Jalmes (2002))-ou de la viscosité de la solution moussante (Safouane (2006)) sur les régimes de drainage sans affecter la physico-chimie des interfaces et donc les conditions aux limites de l'écoulement.

Dans ce travail, nous tentons de découpler ces deux effets en considérant l'écoulement de liquide au sein d'un milieu poreux solide mais continûment déformable. Nous nous intéressons à l'écoulement de liquide au sein d'un empilement de billes de gel monodisperses. Les billes de gel étant déformables, la géométrie de cet empilement est proche de celle d'une mousse (ou d'une émulsion) où les bulles (ou gouttes) sont remplacées par des billes solides mais déformables. Toutefois, dans ce type d'expérience, à la différence de ce qui se passe dans une mousse, les conditions aux limites à la paroi sont celles d'une paroi parfaitement rigide. Ce type de milieu simule donc fidèlement le comportement d'une mousse dont les interfaces seraient totalement figées -on parle alors de mousse "rigide". Nous étudions et comparons la perméabilité de ce milieu en fonction de la fraction volumique de liquide  $\varepsilon$  avec celle d'une mousse.

## 2 Dispositif expérimental

L'objectif de l'expérience est de relever les variations de la résistance à l'écoulement d'un empilement de billes plus ou moins comprimées – afin de déduire la perméabilité du milieu – en fonction de la fraction volumique de liquide  $\varepsilon$ .

Le gel utilisé est un gel aqueux composé d'acide alginique qui est un polymère naturel polysaccharidique. En présence de cations multivalents notamment ions Ca2+, ce polymère gélifie pour donner du gel d'alginate par coordination des ions calcium avec les différentes chaînes polymères anioniques. Pour obtenir les billes d'alginate, l'acide alginique à 20 g/L placé dans une seringue verticale contrôlée par un pousse-seringue est disposé dix centimètres au dessus d'une solution en chlorure de calcium à 20 g/L. En tombant, les gouttes d'acide alginique prennent une forme ronde (par capillarité), forme qu'elles conservent en entrant dans le bain riche en ion calcium et en gélifiant. La figure 2a) montre un échantillon de billes obtenues par cette technique de diamètre moyen  $D_b=3.1\pm0.2$  mm.

La masse volumique (de 1008 kg/m3) et le nombre de billes (de l'ordre de 7000) obtenus sont alors comptées par pesée. Pour déterminer la perméabilité du milieu poreux, on dispose d'une cellule verticale schématisée sur la figure 2a) de section A. La longueur L de la cellule peut être modifiée à l'aide d'un microcontrôleur de déplacement. A chaque valeur de L, un écoulement de débit Q variable est imposé à l'aide d'une pompe et la perte de charge associée à cet écoulement est mesurée via un capteur de pression.



FIG 1 : a) Echantillon de billes d'alginate. Le trait horizontal représente 1 cm. b) Schéma de la cellule utilisée

Ces mesures de perte de charge sont corrélées à celles de la fraction volumique de liquide  $\varepsilon$  dans la colonne, déterminée en comparant la vitesse de montée d'un front de liquide dans la colonne pleine de billes (notée  $v_f$ ) et vide (notée V) à l'aide d'une caméra. La fraction volumique de liquide est alors déduite par simple conservation du volume du rapport entre la vitesse débitante V et la vitesse du front  $v_f$  selon :  $\varepsilon = V/v_f = Q/Av_f$  (1)

# 3 Résultat et discussion

Nous extrayons la perméabilité des mesures de perte de charge et de la vitesse débitante à l'aide de la relation :  $\Delta p/L = \eta V/k$  (2). La constante k, homogène à une surface, est appelé perméabilité. Plus elle est faible et plus la pression  $\Delta p$  nécessaire pour faire s'écouler du fluide à la vitesse V dans le poreux sera élevée. Notons que cette perméabilité est analogue à la constante Sk déterminée par Stevenson (2006).

Nous reportons sur la figure 2, la perméabilité du milieu en fonction de la fraction volumique de liquide pour des billes de gel de diamètre initial de 3.1 mm.



FIG 2 : Perméabilité d'un milieu poreux constitué de billes d'alginate de 3.1 mm de diamètre en fonction de sa fraction volumique de liquide. Les droites noires indiquent deux régimes et ont pour pente  $2.1\pm0.1$  et  $1.6\pm0.1$ 

La tendance observée sur la figure 3 - à savoir que la perméabilité est d'autant plus faible que le milieu est confiné - se confirme puisque *k* est une fonction fortement croissante de la fraction volumique de liquide. En outre, on distingue deux régimes : pour  $\varepsilon$  supérieur à 10%, la perméabilité croit comme  $\varepsilon$  à la puissance 1.6 alors que pour  $\varepsilon$  inférieur à 10%, la perméabilité croît plus fortement, comme  $\varepsilon$  à la puissance 2.1.

Ces deux tendances sont étroitement corrélées aux modifications topologiques ayant lieu au sein du milieu poreux au cours de la compression. On peut en particulier distinguer deux régimes limites.

Aux faibles fractions volumiques de liquide, les billes sont fortement facettées et comprimées. Les pores de la structure ont alors une géométrie de petits canaux de section quasi-triangulaire (de rayon équivalent  $r_c$ ) et de longueur proche du diamètre moyen des billes ( $D_b$ ) analogues aux bords de Plateau apparaissant au sein d'une mousse sèche. Dans ce régime, communément appelé régime de bord de Plateau et largement décrit dans la littérature Weaire(1999)-Koehler(2002)-Durand(1999), la vitesse d'écoulement dans un canal (qui est la vitesse du front définie dans la section 2) s'obtient en équilibrant les puissances dissipées par viscosité volumique dans ces canaux et celle liée au gradient de pression moteur. Ainsi on obtient :  $v_f \sim r_c^2 \Delta p/(\eta L)$ (3). En outre, ces canaux contiennent l'essentiel de la phase liquide, ainsi en première approximation, la fraction volumique de liquide est donnée par  $\varepsilon \sim r_c^2 D_b/D_b^3 \sim r_c^2/D_b^2$  (4). En utilisant les relations (2-4), il vient

$$k \sim \varepsilon^2 D_h^2(5).$$

La perméabilité est donc bien une fonction croissante de la fraction volumique. En outre, l'exposant prédit par l'argument en loi d'échelle est en bon accord avec nos observations expérimentales. Ce régime de dissipation dans les bords de Plateau a également été largement observé dans des mousses, cependant il est rarement exprimé en terme de perméabilité.

Aux fractions volumiques de liquide élevées, les canaux (ou bords de Plateau) n'existent pas puisque les contacts entre les billes sont quasi ponctuels. La géométrie des pores du milieu dispersé est donc plus proche de celle d'un tétraèdre existant au sein d'un empilement de quatre billes de mêmes diamètres. Ce régime que nous qualifierons de régime de "nœud humide" est beaucoup moins observé dans les études relatives aux mousses humides (à l'exception de Carrier 2002). Ici encore, la vitesse d'écoulement est le résultat d'un équilibre entre les puissances motrices et de dissipation visqueuse. En introduisant  $r_{nh}$ , le rayon caractéristique du nœud, il vient :  $v_f \sim r_{nh}^2 \Delta p/(\eta L)$ (6). Ces nœuds humides sont les constituants majoritaires du milieu poreux humide, ainsi, en première approximation, la fraction volumique de liquide est donnée par :  $\varepsilon \sim r_{nh}^3 / D_b^3$  (7). La perméabilité dans ce régime de nœud humide est finalement trouvée en combinant les équations (1,2) et (6,7) :

$$k \sim \varepsilon^{5/3} D_b^2(8)$$

Là encore, l'accord entre les résultats expérimentaux de la figure 4 donnant un exposant de 1.6 et la loi d'échelle prédisant un exposant en 1.66 est satisfaisant.

Nous comparons ces résultats à ceux de la littérature concernant le drainage des mousses pour lesquelles les données directement accessibles sont généralement  $v_f$  et Q. La comparaison n'est donc pas immédiate. Ces données sont extraites de la liste de référence bibliographique en fin d'article. Pour chaque expérience reportée, nous avons calculé la fraction volumique à partir des données de la littérature en appliquant la relation (1) et extrait la perméabilité en appliquant la relation (2) pour laquelle nous considérons  $\Delta p/L = \rho g$ . Nous reportons donc sur la figure 3, la perméabilité normée par le rayon des billes ou des bulles en fonction de la fraction volumique de liquide. Sur cette courbe, nous avons également souligné par deux traits pleins les régimes de "nœud humide" (noté  $\alpha$ ) et de "canal" (noté  $\beta$ ) précédemment identifiés (cf. Eq8 et Eq5). Plusieurs constatations s'imposent. Tout d'abord, à haute fraction volumique de liquide ( $\epsilon$ >10%), les données correspondant aux billes d'alginate ou aux mousses se rassemblent toutes sur la même courbe Durand (2002), y compris pour des expériences effectuées en microgravité

Saint-Jalmes (2007). Ceci est vrai quelque soit la taille des bulles ou des billes. Dans ce régime, la perméabilité est donc bien dimensionnée par  $D_b^2$ . Cette constatation est d'importance car les mousses utilisées en milieu industriel ont souvent des fractions volumiques de cet ordre de grandeur, une connaissance fine de leur physico-chimie n'est donc pas nécessaire pour les décrire correctement. Ensuite, nous observons qu'aux plus basses fractions volumiques de liquide ( $\varepsilon$ <5%), les données sont plus dispersées. Si un certain nombre de données prolongent le régime (B) de "canal" précédemment identifié, nous observons également que la perméabilité de certains échantillons de mousse est supérieure à cette limite. C'est la physico-chimie (la nature et l'interaction des molécules tensioactives recouvrant les interfaces entre le liquide et l'air avec la solution) qui permet d'expliquer ces disparités de comportement. La viscosité de surface associée aux tensioactifs peut en effet être plus ou moins élevée. Les molécules tensioactives rigides qui ont une viscosité de surface élevée (typiquement de l'ordre de  $10^{-2}$  g.s<sup>-1</sup>) se rassemblent plutôt sur la branche  $(\beta)$  alors que les surfaces recouvertes de molécules tensioactives dites mobiles qui ont une viscosité de surface plus faible se retrouvent au dessus de cette branche. Un dernier régime limite, où les surfactants ultra mobiles sont emportés par la surface, peut même être dégagé. Dans cette limite, la condition de vitesse nulle à la paroi n'est plus respectée et l'écoulement dans les bords de Plateau de type bouchon n'est plus dissipatif. Il est alors courant d'interpréter les variations observées de la perméabilité comme résultant d'une compétition entre la dissipation de la force motrice et la dissipation visqueuse dans les nœuds au sein d'une mousse sèche même si ceux-ci sont plus larges et plus courts que les bords de Plateau de la mousse. En équilibrant les puissances dissipées, on peut montrer que la perméabilité varie comme  $\epsilon^{1.5}$ . Ce dernier régime dit de "nœud sec", discuté dans Durand(1999)-Koehler(1999)-Koehler(2000) et noté ( $\gamma$ ) sur la figure 3 permet de bien rendre compte des observations expérimentales



FIG. 3 : Perméabilité normée par le diamètre des billes (respectivement des billes) de milieux poreux constitués de billes d'alginate ou de mousse en fonction de la fraction volumique de liquide.

### 4 Conclusions

Nous avons montré qu'il est possible d'avoir une vision globale des nombreuses expériences relatives au drainage en représentant la perméabilité adimensionnée par le carré du diamètre des bulles en fonction de la fraction volumique de liquide. Aux plus petites fractions volumiques ( $\epsilon$ <5%), une description purement hydrodynamique ne suffit pas à rendre compte des observations et les données expérimentales sont encadrées par deux régimes de dissipation distincts : celui dit des canaux ( $\beta$ ) et celui des nœuds secs ( $\gamma$ ). Cependant, aux plus hautes fractions volumiques ( $\epsilon$ >10%), des données concernant des milieux poreux, des mousses rigides ou mobiles rentrent dans le même cadre descriptif. Il n'est donc pas nécessaire de connaître précisément la physico-chimie de la solution moussante pour décrire le drainage de ces mousses humides. Ce point est important puisque ce domaine de fraction volumique concerne précisément celui de la plupart des applications industrielles (flottation, mousse de nettoyage...)

**Remerciements :** Nous remercions Michèle Vignes-Adler pour les nombreuses discussions que nous avons pu avoir et l'ANR pour soutien financier.

### Références

V. Carrier, S. Destouesse & A. Colin "Foam drainage: A film contribution?" Phys. Rev. E, 65, 061404 (2002)

S. A. Koehler, S. Hilgenfeldt, & H. A. Stone "Liquid Flow through Aqueous Foams: The Node-Dominated Foam Drainage Equation" Phys. Rev. Let. 82, 4232 (1999)

S. A. Koehler, S. Hilgenfeldt & H. A. Stone "A generalized view of foam drainage: Experiment and Theory", Langmuir 16, 6327-6341 (2000)

S. A. Koehler, S. Hilgenfeldt, E. R. Weeks, 3 & H. A. Stone "Drainage of single Plateau borders: Direct observation of rigid and mobile interfaces" Phys. Rev. E, 66, 040601R (2002)

M. Durand, G. Martinoty, & D. Langevin "Liquid flow through aqueous foams: From the plateau border-dominated regime to the node-dominated regime" Phys. Rev. E, 60, R6307 (1999)

M. Durand and D. Langevin "Physicochemical approach to the theory of foam drainage" Eur. Phys. J. E 7, 35–44 (2002)

M. Durand "Contributions théorique et expérimentale à l'étude du drainage d'une mousse aqueuse" Thèse de l'université Paris XI Orsay (2002)

O. Pitois, A. Babataheri "Mesure de la viscosité interfaciale par le drainage de mousse aqueuse" Rapport de stage de M2 (2005)

M. Safouane, A. Saint-Jalmes, V. Bergeron and D.Langevin D "Viscosity effects in foam drainage: Newtonian and non-Newtonian foaming fluids" Eur. Phys. J. E. 19 195-202 (2006)

A. Saint-Jalmes et al "Diffusive liquid propagation in porous and elastic materials : the case of foams under microgravity conditions "Phys. Rev. Lett. 98 058303 (2007)

A. Saint-Jalmes and D. Langevin "Time evolution of aqueous foams: drainage and coarsening" J. Phys. Cond.. Matter 14 9397–9412 (2002)

A. Saint-Jalmes, Y. Zhang & D. Langevin, "Quantitative description of foam drainage: Transitions with surface mobility", Eur. Phys. J. E 15, 53-60 (2004)

P. Stevenson "Dimensional analysis of foam drainage" Chem. Eng. Sci., 61, 4503 - 4510 (2006)

D. Weaire, N. Pittet, S. Hutzler, and D. Pardal, "Steady-state drainage of an aqueous foam" Phys. Rev. Let. 71, 2670 (1993).