

# Oscillations et fragmentation spontanées de bulles d'air remontant dans une solution de polymère confinée

Raphaël Poryles & Valérie Vidal

Laboratoire de Physique, Université de Lyon, École Normale Supérieure de Lyon - CNRS,  
46 Allée d'Italie, 69364 Lyon cedex 07, France  
raphael.poryles@ens-lyon.fr

**Résumé.** Nous nous intéressons à la remontée d'une bulle unique dans un fluide non-newtonien confiné dans une cellule de Hele-Shaw verticale. Le fluide que nous utilisons est une solution de polyéthylène-oxyde (PEO) que nous avons caractérisé comme étant rhéofluidifiant. Les bulles ont une forme qui dépend de leur volume : elles peuvent être arrondies ou présenter une singularité à l'arrière (« *cusp* »). Lorsque le volume de ces bulles est suffisamment élevé, une instabilité se développe spontanément. L'avant de la bulle s'aplatit alors selon un angle donné et sa trajectoire n'est plus rectiligne, la bulle étant déviée latéralement. Lorsque l'angle d'aplatissement est assez faible, nous observons une digitation visqueuse du fluide dans la bulle rappelant l'instabilité de Saffman-Taylor. Lorsque cette instabilité croît suffisamment rapidement, la bulle se fragmente. Nous avons caractérisé cette fragmentation en fonction de l'angle d'aplatissement et de la taille de la bulle, ainsi que des propriétés non-newtoniennes de la solution de PEO.

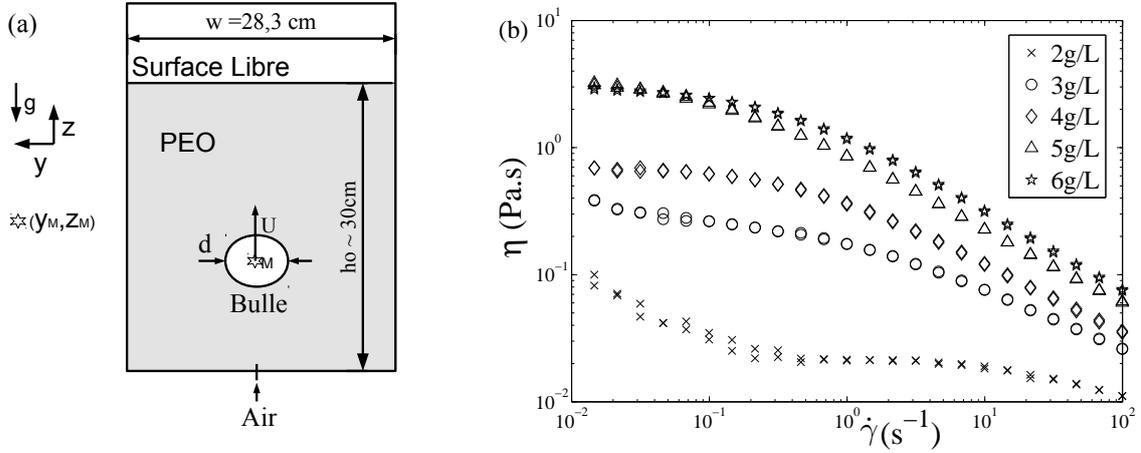
**Abstract.** We are interested in the rise of a unique bubble in a non-Newtonian fluid confined in a vertical Hele-Shaw cell. The fluid that we use is a polyethylene-oxide solution (PEO) that we have characterized as shear-thinning. The bubbles shape depends on their volume: they can present a round shape or have a singularity at the rear (cusp shape). When the volume of these bubbles is large enough, an instability develops spontaneously. The front of the bubble flattens at a given angle and its trajectory is not straight any more, the bubble is deflected from its path. When the flattening angle is small, we observe a viscous fingering of the fluid in the bubble reminiscent of the Saffman-Taylor instability. When this instability grows quickly enough, the bubble fragments. We characterized this fragmentation depending on the flattening angle and the size of the bubble, as well as the non-Newtonian properties of the PEO solution.

## 1 Introduction

L'étude de la remontée de bulles dans des fluides non-newtoniens trouve des applications dans de nombreux domaines allant de l'industrie agroalimentaire, chimique ou cosmétique à la géophysique. On peut citer par exemple dans l'industrie pétrochimique l'importance d'écoulements diphasiques faisant intervenir à la fois des phases gazeuses et aqueuses pour extraire le pétrole et les gaz naturels. En géophysique, les chambres magmatiques contiennent généralement des poches de gaz et des bulles qui jouent un rôle important lors du déclenchement d'événements volcaniques [1].

La forme et la dynamique de remontée de bulles dans un fluide non-newtonien présente des caractéristiques particulières qui ont été largement étudiées en milieu non confiné (3 dimensions) [2–4]. On peut citer, dans le cas d'un fluide rhéofluidifiant, la présence d'une singularité (« *cusp* ») à l'arrière de la bulle [5], des oscillations de taille et de vitesse, ou la formation de chaînes de bulles [6]. Le cas de remontée de bulles confinées à 2 dimensions présente des liens avec les différents domaines cités ci-dessus. En volcanologie, les poches de gaz peuvent remonter dans le magma (qui est non-newtonien) dans des failles volcaniques étroites (« *dykes* »); en catalyse chimique, des réactions faisant intervenir des bulles ont également lieu dans cette géométrie [7].

Ainsi dans ces domaines, le comportement de ces bulles est un problème essentiel car il influe directement sur la dynamique du système, et il est important de comprendre les mécanismes physiques en jeu. Nous étudions, à l'échelle du laboratoire, la dynamique de remontée d'une bulle unique dans un fluide non-newtonien, confiné en cellule de Hele-Shaw verticale.



**Figure 1.** (a) Schéma du dispositif expérimental. On note  $U$  la vitesse de remontée verticale de la bulle,  $d$  sa taille caractéristique et  $M$  son centre de masse [coordonnées  $(y_M, z_M)$ ]. (b) Viscosité  $\eta$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour les différentes solutions de PEO (concentrations en PEO indiquées sur la figure). Les mesures sont faites sur un aller-retour en cisaillement et on laisse le système s'équilibrer 10 secondes entre chaque mesure.

## 2 Dispositif expérimental

### 2.1 Description

Le schéma de l'expérience est présenté en Figure 1 (a). La cellule est constituée de deux plaques de verre de largeur  $w = 28,3$  cm, de hauteur  $h = 40$  cm et séparées d'un espacement (*gap*)  $e = 2$  mm. La hauteur du fluide est  $h_0 \sim 30$  cm. L'air est injecté à travers un orifice de 1 mm de diamètre via une seringue (60 mL) contrôlée à la main. Le volume injecté varie entre  $V = 0,02$  mL et  $V = 1,5$  mL.

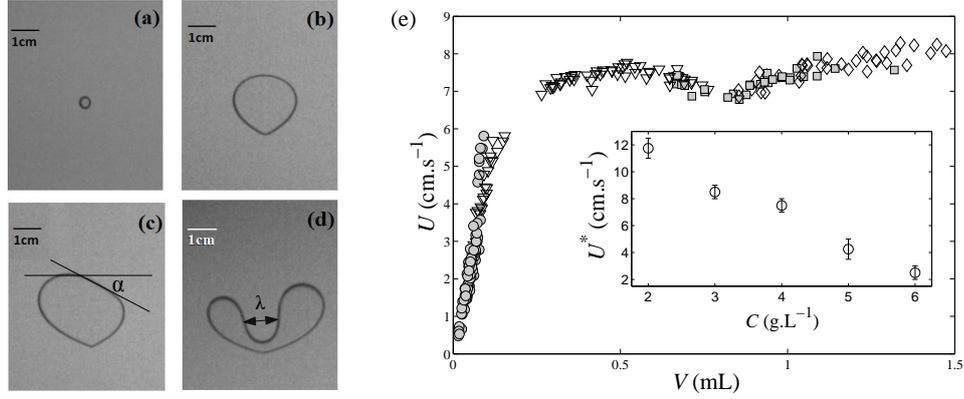
La cellule expérimentale est rétroéclairée à l'aide d'un éclairage plan à néon blanc (JustNormLicht, Classic Line) qui fournit un éclairage homogène. La visualisation se fait par ombroscopie en utilisant une caméra PL-B781 (PixeLink) avec une résolution de  $1280 \times 416$  pixels. L'objectif utilisé est une lentille 12,5–75 mm avec une distance focale de 1,2 m. La fréquence d'acquisition est alors de 44 images par seconde.

### 2.2 Caractérisation des fluides

Les fluides utilisés sont des solutions de polyéthylène oxyde (PEO) dans l'eau. Dans notre cas, ce polymère a une masse molaire  $M_w = 8 \times 10^6$  g/mol (Sigma-Aldrich, 372838). Pour une telle solution de polymère, on peut définir une concentration de recouvrement des chaînes de polymères comme étant :

$$C^* = \frac{M_W}{4/3\pi R_g^3 \mathcal{N}_a}, \quad (1)$$

avec  $M_W$  la masse molaire,  $R_g$  le rayon de giration du polymère et  $\mathcal{N}_a$  le nombre d'Avogadro [8]. Cette concentration correspond à  $C^* = 0,04$  g/L. Nous avons étudié 5 différentes solutions à des concentrations de  $C = [50, 75, 100, 125, 150] C^*$ , correspondant à  $C = [2, 3, 4, 5, 6]$  g/L. Ces concentrations élevées nous garantissent que les chaînes de polymères sont enchevêtrées, que les viscosités seront plus élevées que celle de l'eau pure et que les effets non-newtoniens seront importants. La valeur de tension de surface de ces fluides a été mesurée en utilisant un tensiomètre à bulle montante commercial (Tracker, Télclis [9, 10]) pour la solution à  $100 C^*$  et vaut  $\sigma = 61 \pm 2$  mN/m. Elle est supposée être la même pour toutes les solutions.



**Figure 2.** (a–d) Photos des différents régimes observés : (a) petite bulle circulaire; (b) bulle présentant un *cusp* montant rectilignement; (c) bulle oscillante; (d) bulle qui se fragmente. (e) Vitesse en fonction du volume pour la solution à 4 g/L [( $\circ$ , bulles rondes), ( $\nabla$ , bulles *cuspées* non-oscillantes), ( $\square$ , bulles oscillantes), ( $\diamond$ , bulles fragmentant)]. En insert, vitesse  $U^*$  des bulles de volume  $V=0,5$  mL en fonction de la concentration.

Les propriétés rhéologiques de ces solutions ont été caractérisées à l'aide d'un rhéomètre (Bohlin C-VOR 150) en géométrie cône-plan (6 cm de diamètre et  $2^\circ$  d'angle). Ces mesures sont présentées sur la figure 1 (b). Ces courbes montrent que la viscosité des fluides utilisés varie entre 10 et 1 000 fois celle de l'eau environ. De plus, on observe leur caractère fortement rhéofluidifiant pour des taux de cisaillement  $\dot{\gamma} > 0,1\text{--}1 \text{ s}^{-1}$ .

### 2.3 Volume des bulles

L'injection des bulles se faisant à la main, il est difficile de contrôler leur volume. L'expérience a donc été reproduite un grand nombre de fois (200 par solution) et le volume  $V$  des bulles a été déterminé *a posteriori*. Il a été montré [11] pour une bulle confinée entre deux plaques, que l'épaisseur de la couche de lubrification  $h$  ne dépend que du nombre capillaire, tant que l'on est à Reynolds faible, et suit la relation suivante :

$$\frac{h}{e} \sim \frac{\text{Ca}^{2/3}}{1 + \text{Ca}^{2/3}}. \quad (2)$$

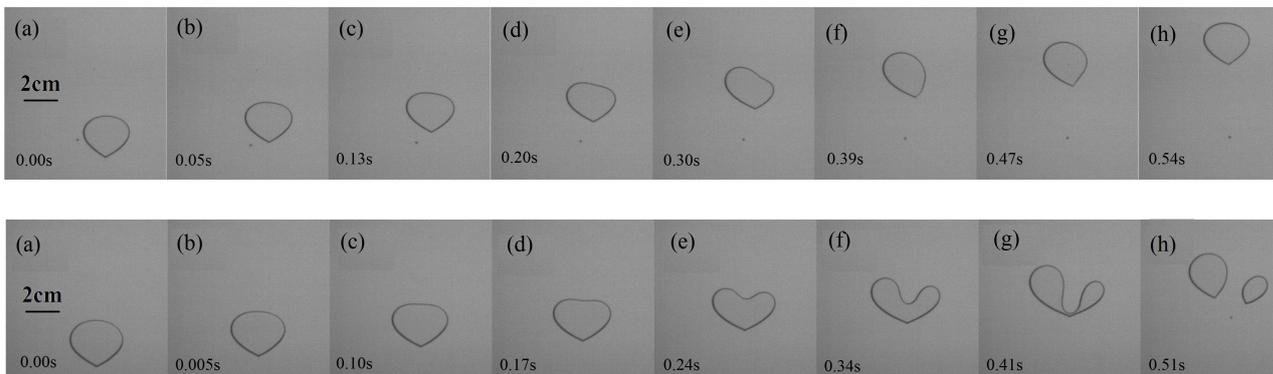
Dans notre cas, le nombre capillaire  $\text{Ca} = \eta U / \sigma$  est petit devant 1 et donc  $h/e \sim \text{Ca}^{2/3} \ll 1$ . La couche de lubrification est donc petite devant la taille du gap et on peut alors approximer le volume de la bulle par  $V = S \cdot e$  avec  $S$  la surface apparente de la bulle. La surface est calculée via un programme Matlab : l'image brute est seuillée et binarisée, puis en utilisant la fonction *contour*, on remonte à la forme des bulles. La surface est alors calculée en prenant l'aire à l'intérieur du contour. Le centre de masse est calculé comme étant le barycentre du contour, et on en déduit la vitesse verticale  $U$  de la bulle en faisant un ajustement linéaire de la position verticale du centre de masse en fonction du temps.

## 3 Résultats

### 3.1 Différents régimes

Pour les solutions à 4-5-6 g/L, on observe trois régimes différents pour la forme des bulles :

- pour de petits volumes ( $V < 0,1$  mL), on observe des petites bulles de forme arrondie; les forces capillaires dominent et ces bulles montent verticalement (Fig. 2 (a));



**Figure 3.** Séquence d'images pour une bulle oscillante (en haut) et une bulle qui fragmente (en bas) [ $C = 4 \text{ g/L}$ ;  $V_{\text{haut}} = 1 \text{ mL}$ ,  $V_{\text{bas}} = 1,1 \text{ mL}$ ]. Les temps sont indiqués sur les images.

- lorsqu'on augmente le volume des bulles ( $0,1 < V < 0,4 \text{ mL}$ ), celles-ci présentent une singularité (*cusp*). Ce changement de forme vient du fait que le fluide est complexe et présente un temps de relaxation propre. Lorsque la bulle traverse la couche de fluide, elle désenchevêtre les polymères, qui mettent un certain temps à relaxer à l'arrière de la bulle. Ceci va laisser place à une dépression à l'arrière de la bulle, d'où une singularité (Fig. 2 (b)). La trajectoire des bulles est toujours rectiligne ;
- lorsqu'on augmente encore la taille des bulles ( $V > 0,4 \text{ mL}$ ), on observe des oscillations (Fig. 2 (c)) ou une fragmentation spontanée de la bulle (Fig. 2 (d)). Ce phénomène est décrit en détail dans la partie suivante.

Ces trois régimes ne sont pas observés pour les solutions à  $2 \text{ g/L}$  et  $3 \text{ g/L}$  car les viscosités sont trop faibles et des instabilités inertielles apparaissent, on voit alors des bulles qui se gondolent fortement selon des mécanismes difficiles à décrire. Dans la suite de l'étude nous ne considérerons pas ces concentrations.

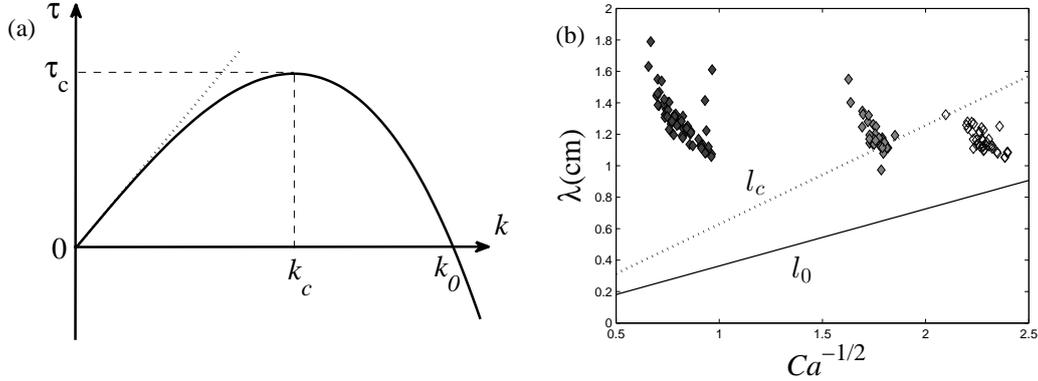
La figure 2 (e) montre la vitesse de remontée verticale  $U$  des bulles en fonction de leur volume  $V$  pour la solution à  $4 \text{ g/L}$ . On observe lors de cette remontée deux régimes : un premier régime où la vitesse des bulles est proportionnelle à leur volume ( $V < 0,2 \text{ mL}$ ), puis au-delà de ce volume, les bulles atteignent un régime où la vitesse augmente beaucoup plus faiblement avec le volume des bulles. Pour la solution à  $4 \text{ g/L}$  les vitesses à grand volume sont comprise entre  $7$  et  $8 \text{ cm/s}$ . L'ordre de grandeur de la vitesse verticale  $U^*$  pour des bulles de volume  $V = 0,5 \text{ mL}$  pour les différentes concentrations est donnée en insert de la figure 2 (e). On observe qu'il y a une diminution de la vitesse des bulles avec la concentration, ce qui est en accord avec l'augmentation de viscosité.

On observe également une nette séparation à  $V = 0,7 \text{ mL}$  entre le régime où les bulles montent de manière rectiligne et le moment où l'on observe l'apparition d'oscillations et de fragmentation, ce qui explique la décroissance de la vitesse autour de ce volume, car la vitesse  $U$  calculée ici correspond seulement à la composante verticale. Nous expliquons dans la suite l'origine de l'apparition de ce phénomène.

L'expérience a été également menée avec du glycérol concentré qui est un fluide newtonien et qui avait le même ordre de grandeur de viscosité que les solutions de PEO utilisées ( $\eta_{\text{gly}} = 0,1 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ ). Nous n'avons observé les oscillations que dans le fluide complexe, ce qui nous laisse à penser que cette instabilité a pour origine les propriétés rhéologiques du fluide.

### 3.2 Analyse des oscillations/fragmentation

Pour des bulles suffisamment grandes, on observe que le front de la bulle s'aplatit selon un certain angle  $\alpha$  (Fig. 2 (c)). L'angle d'aplatissement est relativement faible (inférieur à  $20^\circ$ ) mais n'est pas



**Figure 4.** (a) Taux de croissance de l'instabilité de Saffman-Taylor en fonction du nombre d'onde  $k = 1/\lambda$  où  $\lambda$  est la largeur du doigt [12, 13]. (b) Largeur du doigt mesurée à mi-hauteur lors d'une fragmentation en fonction de  $1/\sqrt{Ca}$  pour les différentes concentrations  $C$  [(blanc, 4 g/L), (gris, 5 g/L), (noir, 6 g/L)].

toujours strictement nul. On rapporte deux cas :  $\alpha > 10^\circ$  et  $\alpha < 5^\circ$  :

- lorsque cet angle est assez élevé ( $\alpha > 10^\circ$ ), la bulle aplatie va changer sa trajectoire en étant déviée latéralement du côté opposé à l'aplatissement (Fig. 3, haut, (d–f)). Elle reprend ensuite une forme symétrique et une remontée verticale (Fig. 3, haut, (g, h)) ;
- lorsque l'angle du front est assez faible ( $\alpha < 5^\circ$ ) on observe la croissance d'un doigt à l'intérieur de la bulle (Fig. 3, bas, (d–g)). La bulle se fragmente ensuite (Fig. 3, bas, (h)).

Dans le cas intermédiaire ( $5^\circ < \alpha < 10^\circ$ ), on a un recouvrement entre les deux phénomènes et on ne peut pas prédire *a priori* lequel va avoir lieu.

On peut faire une analogie entre l'apparition de ce doigt et l'instabilité de Saffman-Taylor, qui apparaît lorsqu'un fluide visqueux est poussé dans un autre fluide de viscosité supérieure. Le taux de croissance du doigt en fonction de sa largeur peut être calculé dans le cas de fluides newtoniens (Fig. 4 (a) [12, 13]). Pour que le doigt se développe il faut donc que la bulle s'aplatisse sur une largeur minimale  $l_0 = 1/k_0$  ; le taux de croissance sera maximal pour  $l_c = 1/k_c$ , avec  $l_c = \pi e/\sqrt{Ca}$  et  $l_0 = \pi e/\sqrt{3Ca}$ . Si la bulle est trop petite, l'instabilité ne pourra pas se développer, d'où le seuil d'apparition présenté plus haut. Si l'angle est trop élevé, l'instabilité ne se développera pas suffisamment vite, un doigt commencera à se développer mais les forces capillaires empêcheront la bulle de se fragmenter, provoquant un déplacement latéral.

Pour comparer la taille des doigts observés dans notre expérience avec celle obtenue en digitation visqueuse, nous avons tracé la largeur des doigts  $\lambda$  à mi-hauteur (Fig. 2 (d)) en fonction de  $1/\sqrt{Ca}$  pour les trois concentrations où l'on observe de la digitation. On a placé également sur cette courbe  $l_c$  et  $l_0$  dans le cas théorique de l'instabilité de Saffman-Taylor. On remarque que pour toutes ces solutions la taille caractéristique des doigts est plus élevée que celle attendue pour Saffman-Taylor, mais reste du bon ordre de grandeur. Le résultat principal étant qu'on observe des doigts de taille  $\lambda$  supérieur à  $l_0$ , ce qui est compatible avec la théorie de Saffman-Taylor. On remarque que la taille caractéristique de ces doigts ne semble pas dépendre de la concentration.

## 4 Discussion et conclusion

Lors de la remontée d'une bulle unique dans une solution de PEO en cellule de Hele-Shaw, nous avons observé une instabilité se développant lorsque les bulles avaient un volume suffisant ( $V > 0,7$  mL). Cette instabilité provoque un déplacement latéral de la bulle, voire une fragmentation de celle-ci. Nous proposons une interprétation qualitative de ces observations.

Le fluide étant rhéofluidifiant, la viscosité locale est moins élevée sur les bords de la bulle qui sont dans une zone plus cisailée que le front de la bulle. Ces bords ont alors tendance à monter plus rapidement que le front, qui s'aplatit alors selon un angle  $\alpha$  avec l'horizontale. Si cet angle est grand, la bulle sera déviée de sa trajectoire initiale et subira un déplacement horizontal global. Lorsque ce front plat est suffisamment large et que son angle avec l'horizontale est relativement faible, on observe un phénomène de digitation qui, lorsqu'il se développe rapidement, aboutit à une fragmentation de la bulle.

Le taux de croissance de cette instabilité ainsi que les relations entre l'angle du front et la largeur des doigts sont des pistes à explorer pour confirmer un lien avec l'instabilité de Saffman-Taylor. Le fait que les doigts soient plus grands que leur analogue dans la théorie de Saffman-Taylor peut s'expliquer par deux faits. D'une part, nous ne sommes pas dans le cadre d'une interface plane infinie que l'on pousse à pression constante (ce qui est le cas dans l'expérience originale [12]). Les forces capillaires liées à la forme de la bulle ont vraisemblablement un rôle à jouer. D'autre part, nous travaillons avec un fluide non-newtonien qui présente une certaine élasticité. Il a été rapporté dans la littérature que dans une solution de PEO, la taille caractéristique de digitation était plus élevée que dans un fluide newtonien à cause d'effets élastiques [13], alors même que les concentrations utilisées sont beaucoup plus faibles que dans notre cas. La mise en place d'une mesure de PIV (*Particle Image Velocimetry*) permettra, dans un futur proche, d'accéder aux champs de vitesse et aux taux de cisaillement locaux, et d'apporter plus d'information sur ces systèmes.

## Références

1. M. RIPEPE & E. GORDEEV, Gas bubble dynamics model for shallow volcanic tremor at Stromboli, *J. Geophys. Res.*, **104**, 10639–10654 (1999).
2. A. BELMONTE, Self-oscillations of a cusped bubble rising through a micellar solution, *Rheol. Acta*, **39**, 554–559 (2000).
3. D. FUNFSCHILLING, *Dynamique des bulles dans des fluides rhéologiquement complexes*, Thèse de l'Institut National Polytechnique de Nancy (1999).
4. H. Z. LI, X. FRANK, D. FUNFSCHILLING & P. DIARD, Bubbles rising dynamics in polymeric solutions, *Phys. Lett. A*, **325**, 43–50 (2004).
5. R. P. CHHABRA, *Bubbles, Drops, and Particles in Non-Newtonian Fluids*, 2<sup>e</sup> édition, CRC Press (2006).
6. I. L. KLIAKHANDLER, Continuous chain of bubbles in concentrated polymeric solutions, *Phys. Fluids*, **14**, 3375–3379 (2002).
7. D. ÉDOUARD, M. LACROIX, C. PHAM, M. MBODJI & C. PHAM-HUU, Experimental Measurements and Multiphase Flow Models in Solid SiC Foam Beds, *AIChE J.*, **54**, 2823–2832 (2008).
8. P. OSWALD, *Rhéophysique, ou comment coule la matière*, Belin (2005).
9. B. SONG & J. SPRINGER, Determination of interfacial tension from the profile of a pendant drop using computer-aided image processing: 1. Theoretical, *J. Colloid Interf. Sci.*, **184**, 64–76 (1996).
10. B. SONG & J. SPRINGER, Determination of interfacial tension from the profile of a pendant drop using computer-aided image processing: 2. Experimental, *J. Colloid Interf. Sci.*, **184**, 77–91 (1996).
11. M. ROUDET, *Hydrodynamique et transfert de masse autour d'une bulle confinée entre deux plaques*, Thèse de l'Université de Toulouse (2008).
12. P. G. SAFFMAN & G. TAYLOR, The penetration of a fluid into a porous medium or Hele-Shaw cell containing a more viscous liquid, *Proc. R. Soc. Lond. A*, **245**, 312–329 (1958).
13. A. LINDNER, *L'Instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides complexes : relation entre les propriétés rhéologiques et la formation de motifs*, Thèse de l'Université Paris VI (2000).