

Stabilité de bulle(s) au sein d'un fluide à seuil

G. Samson, A. Phelipot-Mardelé et C. Lanos

LGCGM, Université Rennes1, 3 rue du Clos Courtel, 35704 Rennes Cedex 7, France

Email : gabriel.samson@insa-rennes.fr

Reçu le 6 février 2014 - Version finale acceptée le 1^{er} juillet 2014

Résumé : les propriétés thermiques et mécaniques des matériaux cimentaires dépendent fortement de la présence de bulles d'air dans la matrice. Ces bulles sont formées à l'état frais dans les suspensions minérales adjuvantées dont le comportement rhéologique est caractérisé par la présence d'un seuil de cisaillement. L'étude de la formation, de la croissance, de la stabilité de bulles dans ces fluides à seuil est abordée. Les travaux sont réalisés à l'aide d'un fluide à seuil modèle transparent dans lequel sont injectées les bulles d'air. Une prise de vue, puis un traitement d'image, permettent d'obtenir les caractéristiques géométriques des bulles. L'influence de la contrainte seuil sur la croissance de bulle est démontrée. L'augmentation progressive de volume de bulle permet de définir un critère de stabilité au-delà duquel la poussée d'Archimède vainc les effets de seuil, ce qui aboutit à une remontée de la bulle. L'introduction de tensioactif au sein du Carbopol[®] impacte son comportement rhéologique, la contrainte seuil diminuant. Les essais révèlent également que l'introduction d'un tensioactif permet de stabiliser la paroi entre bulles et conduit à la formation d'une membrane entre deux bulles en contact. La stabilité de la membrane dépend du dosage en tensioactif. Le risque de coalescence peut alors être maîtrisé.

Mots-clés : Fluide à seuil, Bulle, Carbopol[®], Coalescence, Tensioactif

[Abridged English version on last page]

1. Introduction

Les fluides à seuil sont des matériaux présentant des propriétés rhéologiques différentes suivant la sollicitation qu'ils subissent. Une contrainte minimale, dite contrainte seuil τ_s , devra être imposée afin de passer de l'état solide à l'état liquide. Ces fluides sont présents dans un grand nombre de secteurs industriels et relèvent de domaines d'applications quotidiennes : le pétrole, le dentifrice, les fluides alimentaires, le béton frais, les boues, les vases... [1]. Ces matériaux sont étudiés depuis longtemps et la caractérisation de leurs propriétés rhéologiques constitue un enjeu toujours d'actualité [1, 2]. Il existe dans la littérature de nombreux travaux traitant de ce type de fluide. Nous nous bornerons à l'exploitation de deux modèles rhéologiques parmi les plus courants pour caractériser le comportement de fluides à seuil (Equ. 1) : les modèles d'Herschel-Bulkley et de Bingham [3] :

$$\tau = \tau_s + K\dot{\gamma}^n \quad (1)$$

où τ_s représente la contrainte seuil, K la consistance et n l'index d'écoulement. Le modèle de Bingham correspond au cas particulier où $n = 1$. Ces paramètres rhéologiques sont à lier à la microstructure [4].

Les matériaux cimentaires utilisés dans les applications bâtiments et génie civil sont couramment fabriqués à partir d'un mélange de constituants solides (sable, graviers, liants) de granulométrie variée et d'un fluide dispersant (généralement de l'eau). La présence de bulles d'air au sein de telles suspensions concentrées est fréquente. Ces bulles sont formées lors de l'assemblage des constituants ou durant les phases de transport et de mise en œuvre. Des conséquences importantes sur les propriétés du matériau durci sont induites. Les bulles sont généralement néfastes aux propriétés mécaniques car sources de défauts. On cherche alors à limiter leur présence dès la mise en œuvre (par choc, vibration ou ajout d'agents débulleurs). A l'inverse, dans le cas de la fabrication de matériaux poreux isolants tels que le béton cellulaire ou le « béton mousse » (Fig. 1), l'emprisonnement de nombreuses bulles au sein de la matrice est recherché.

L'adjuvantation à l'aide de tensioactifs est généralement utilisée pour favoriser la formation de bulles. Les molécules tensioactives, utilisées dans plusieurs secteurs industriels, sont caractérisées par divers paramètres microscopiques : longueur de chaîne, masse moléculaire, morphologie...

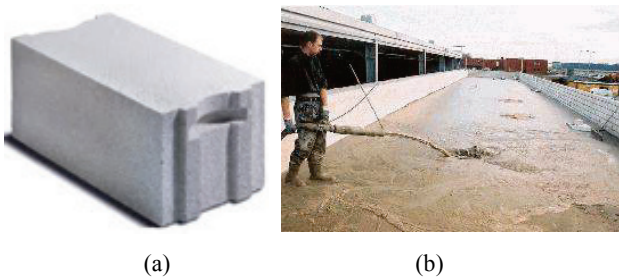


Figure 1. Béton cellulaire (a) ; Béton mousse (b)

Ces propriétés conditionnent la formation de bulles et les caractéristiques macroscopiques des mousses : stabilité, distribution de taille de bulles, viscoélasticité d'interface [5]. A partir d'une suspension concentrée donnée, il est donc possible, selon le tensioactif utilisé, d'obtenir des structures très variées [6]. Le tensioactif va également conditionner la stabilité de la bulle, les conditions de pression de part et d'autre de la paroi de la bulle étant régies par la loi de Kelvin-Laplace. Dans cet équilibre interviennent les grandeurs géométriques et le paramètre de tension de surface σ . Au sein d'un fluide newtonien, cette différence de pression Δp dans le cas d'une bulle sphérique de rayon R s'écrit :

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

Au sein d'un fluide non-newtonien, l'équation (2) reste elle exploitable ? Evaluer les conditions de formation et de stabilité d'une bulle dans un fluide à seuil potentiellement adjuvanté de tensioactifs s'avère nécessaire.

Différents éléments bibliographiques peuvent servir l'étude. Ainsi, en première approche, la bulle dans un fluide à seuil peut être assimilée à une occlusion solide. Une telle hypothèse rend la bulle indéformable, ce qui est assez réducteur. La majorité de ces travaux concernent l'étude d'objets sphériques [7], cylindriques [8] ou de formes diverses [9]. Ces études montrent que le déplacement de l'objet entraîne une « liquéfaction » du fluide dans une zone limitée autour de l'occlusion. Estimer dans de tels cas la force de traînée est alors possible analytiquement ou expérimentalement. En reprenant les principes de la sédimentation, d'autres études en dynamique s'intéressent à la vitesse finale d'occlusions sphériques en déplacement dans un fluide à seuil. L'influence de divers paramètres comme la contrainte seuil τ_s et le rapport diamètre sphère sur diamètre de la cuve (d_s/D), a pu être identifiée. Il apparaît que la vitesse finale dépend du nombre de sphères solides en mouvement [10, 11]. Ces effets de sillages sont également étudiés par Gheissary et Van den Brule [12], qui démontrent une plastification partielle du Carbo-

pol[®]. Putz et al. [13] (pour une sphère) et Tokpavi et al. [8] (pour un cylindre) ont montré d'importantes différences entre les champs de vitesses prévus par les modèles et mesurés autour d'une occlusion solide en mouvement dans un fluide à seuil, en raison de l'asymétrie se développant entre l'amont et l'aval de l'écoulement.

La formation et la stabilité d'une bulle de gaz dans un fluide a fait également l'objet de nombreux travaux pour lesquels les formes de bulle ne peuvent plus s'apparenter à des sphères. Snabre et Magnifotcham [14] injectent de façon continue des bulles dans un fluide à seuil (Carbopol[®]) grâce à une buse placée au fond d'une colonne verticale. Un modèle semi-empirique est alors mis en place afin de prédire le volume de la bulle lors de son détachement de la buse d'injection. Un modèle physique permet ensuite de déterminer la vitesse d'ascension des bulles en lignes en fonction de plusieurs paramètres : la viscosité du fluide, le diamètre de l'orifice, la hauteur de colonne... Des simulations numériques [15] traitent du même problème, ce qui permet d'évaluer l'influence de nombres adimensionnels (nombre de Reynolds, de Bond, densité et viscosité adimensionnées) sur les déformations de la bulle lorsque celle-ci se trouve encore en contact avec la buse. Le modèle permet également de prédire l'apparition de bulles toroidales lors de l'ascension de la bulle, après qu'elle se soit décrochée de la buse sous certaines conditions. Sikorski et al. [16] s'intéressent aussi à la vitesse et à la forme de bulles d'air au sein de Carbopol[®]. Ils montrent expérimentalement que la vitesse d'ascension augmente linéairement avec le rayon de la bulle. Mougin et al. [17] mettent également en évidence, dans cette configuration, la difficulté d'obtenir des essais répétables lorsque la contrainte seuil dépasse 10 Pa. Les contraintes internes ne permettent plus alors d'obtenir des trajectoires parfaitement verticales, même après des temps de relaxation supérieurs à 30 jours. Des effets de rémanence du sillage sont vraisemblables.

Quelques données bibliographiques portent sur l'étude des conditions de formation d'une bulle injectée dans un fluide à seuil. Ainsi, Terasaka et Tsuge [18] injectent des bulles d'air de façon continue à l'aide d'une seringue au sein d'une solution de Carbopol[®] ou de xanthane, tous deux fluides à seuil. L'équation de Rayleigh modifiée proposée [18] relie la contrainte seuil et la différence de pression nécessaire pour faire croître la surface de la bulle, lorsque la bulle est accrochée à la buse. Le volume de la bulle, sa forme et la variation de sa pression interne semblent bien décrits par le modèle proposé. La création de la bulle suivante intervient après le dé-

crochage de la précédente.

Cependant, la littérature concernant les inclusions gazeuses statiques dans les fluides à seuil est plus rare. La plupart des travaux réalisés dans le domaine des inclusions gazeuses sont faites en dynamique. La littérature concernant les conditions d'arrêt d'une bulle au sein d'un fluide à seuil est pauvre. Dubash et Frigaard [19] développent mathématiquement deux conditions générales d'arrêt en adaptant un principe variationnel. La première condition est obtenue en minimisant la vitesse de déformation de la surface de la bulle, la seconde en maximisant l'effort appliqué par le fluide à seuil sur la surface de la bulle. Chacune de ces conditions aboutit à un nombre de Bingham critique, fonction notamment de la viscosité et du seuil du fluide considéré et montrant une grande importance de la forme, $Bn_{cr} = 0,58$ (pour une sphère, pour le cas le plus restrictif). Le modèle mathématique indique aussi que, lorsque l'effet de seuil devient supérieur à l'effet de tension de surface, la bulle n'est plus obligatoirement sphérique. Sa forme peut être différente pour un même volume. Par la suite, Dubash et Frigaard [20] souhaitent confronter les prédictions du modèle théorique à l'expérimentation. Les effets de tension de surface sont ici négligés. L'air est injecté de façon lente et continue au centre d'une colonne transparente remplie de Carbopol®. Ils observent tout d'abord l'apparition d'une bulle sphérique, indiquant initialement une prédominance des effets de tension de surface. En grossissant, la bulle s'allonge jusqu'à son décrochage de la buse. La bulle prend alors une forme de goutte remontante. Cependant, les essais réalisés montrent que les deux conditions d'arrêts proposées antérieurement sont inadaptées. Lors de l'injection continue, les bulles demeurent à l'arrêt, bien que le modèle prévoit qu'elles soient en mouvement.

Lorsque le nombre de bulles d'air présentes au sein d'un fluide devient important, on parle de mousse. On distingue deux types de mousses, les mousses liquides et les mousses solides. Leur stabilité repose sur l'interposition de molécules tensioactives se plaçant à l'interface liquide/gaz. La tension de surface est alors abaissée et limite les phénomènes de coalescence de bulles, correspondant à la rupture du film formé entre deux bulles en contact. Les phénomènes physiques associés à l'évolution temporelle de ces mousses sont relativement bien compris et maîtrisés dans les fluides newtoniens [21].

Le phénomène de coalescence peut également découler de la rencontre de deux bulles en mouvement. Dans un fluide newtonien (eau), Duineveld [22]

injecte simultanément deux bulles à la base d'un récipient transparent. Il introduit ensuite le nombre de Weber $W = \rho v^2 R / \sigma$, basé sur la vitesse d'approche (horizontale) des bulles v après leurs décrochages simultanés des buses, avec ρ et σ respectivement la masse volumique et la tension de surface, et R le rayon équivalent des bulles. Il montre qu'il existe un nombre de Weber au-delà duquel les bulles coalescent lorsqu'elles entrent en contact. Elles rebondissent dans le cas contraire. Le nombre de Weber critique obtenu dans l'eau pure est $W_{cr} = 0,18$. Duineveld démontre également que l'ajout de tensioactif limite la coalescence. Un modèle numérique de coalescence/rebond est également introduit par Lehr et al. [23] qui montrent que la coalescence sera favorisée par une vitesse d'approche lente, ce qui reste cohérent avec l'étude précédente.

Au sein d'un fluide non-newtonien, les phénomènes de coalescence entre deux bulles sont également décrits dans la littérature [24]. La majorité des travaux sont réalisés en injectant de façon consécutive deux bulles dans le liquide à l'aide d'une petite buse à la base d'une colonne ou à l'aide d'un diffuseur poreux [25, 26]. L'étude quasi-statique de la coalescence entre deux bulles, situées dans un même plan horizontal, est réalisée en injectant simultanément de l'air via deux buses voisines. Les bulles en grossissant finissent par entrer en contact, puis coalescent avant leurs éventuels décrochages.

La coalescence de bulles dans un fluide à seuil reste néanmoins peu étudiée. On peut cependant noter que, comme pour le cas d'une bulle unique, peu de données, expliquant le comportement de deux bulles en contact, existent en raison des propriétés rhéologiques complexes du fluide. Les informations obtenues à partir d'une bulle simple ne peuvent être étendues à un système de deux bulles [27]. Des observations qualitatives [28, 29] sur les paramètres tels que les propriétés rhéologiques, la taille de bulle, la fréquence d'injection sont présentées. Liu et al. [30] développent une approche numérique retraçant l'évolution de la coalescence entre trois bulles alignées horizontalement et en mouvement.

L'effet du tensioactif et de la contrainte seuil sur la formation, la stabilité et les conditions de coalescence de bulle(s) injectée(s) est l'objet de cette étude. L'opacité des suspensions concentrées telles que les pâtes cimentaires ne permet pas l'observation directe du comportement des bulles. Un fluide modèle à seuil (Carbopol®), transparent, considéré homogène, ayant des propriétés rhéologiques maîtrisées permettant d'étudier le comportement de bulles, est choisi. Une méthode de visualisation et de

traitement d'image est utilisée pour évaluer l'évolution des différents paramètres géométriques de la structure porale des mousses. Les matériaux et protocoles expérimentaux déployés sont présentés dans une première partie. L'effet de l'ajout d'un tensioactif sur les propriétés rhéologiques du fluide modèle est discuté. Le domaine de validité du protocole de traitement des données est ensuite analysé. L'injection de bulles dans le fluide à seuil permet de dresser différents constats et ainsi de discuter de l'influence de la valeur de la contrainte seuil du fluide sur la forme et la taille des bulles, et enfin d'évaluer les conditions liées à la stabilité à l'arrêt d'une puis de deux bulles au regard du dosage en tensioactif.

2. Matériaux et protocole expérimental

Afin de visualiser le comportement des bulles, on utilise un fluide à seuil modèle transparent, le Carbopol® 676. Cette poudre, fournie par Lubrizol, est un polymère acide poly-acrilique lié en croix, synthétisé dans du benzène [31].

La poudre de Carbopol® est ajoutée à l'eau, puis l'ensemble est neutralisé à la soude. Le seuil de ce gel augmente avec la concentration en Carbopol®. Afin d'assurer une bonne homogénéité du gel, il est longuement mélangé (6 h minimum) avant chaque expérience. Le comportement rhéologique du gel est identifié à l'aide d'un rhéomètre (Kinexus - Malvern®) avec une géométrie plan-plan de diamètre 40 mm et un entrefer de 1,5 mm. Les essais sont réalisés à température ambiante. Afin d'éviter un possible glissement, les plans sont rendus rugueux à l'aide d'un papier de verre dont la taille de grain moyenne est 115 μm . Un pré-cisaillement de 1 Pa pendant 5 secondes est appliqué afin d'obtenir une bonne reproductibilité des essais. On procède alors à une mesure de contrainte sous rampe logarithmique de taux cisaillement imposés de 0,5 à 500 s^{-1} (Fig. 2), en réalisant 20 mesures par décade (30 secondes par décade) [32].

La Figure 2 indique une superposition des courbes aller et retour d'essais réalisés sur trois Carbopol® de concentrations différentes. La non-thixotropie du Carbopol® est ainsi vérifiée. Les courbes divergent uniquement pour de faibles taux de cisaillement ($\dot{\gamma} < 0,1 \text{ s}^{-1}$). Le caractère élastique du fluide aux faibles déformations justifie cette divergence [33]. Dès que $\tau \geq \tau_s$, le matériau s'écoule et la courbe d'écoulement peut être ajustée sur le modèle d'Herschel-Bulkley. Lors de la rampe décroissante, lorsque τ atteint la limite de contrainte seuil $\tau = \tau_s$, la déformation s'annule. Le gel présente un compor-

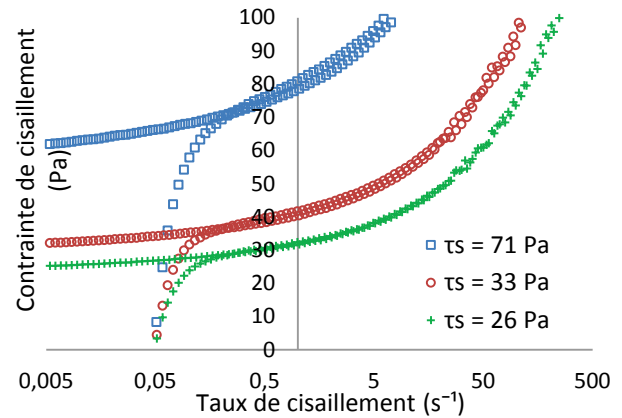


Figure 2. Rhéogrammes de Carbopol® à différentes concentrations

tement rhéologique de même nature pour différentes concentrations en Carbopol®. Il est ainsi possible de moduler les valeurs de contrainte seuil du fluide modèle et d'étudier différents stades de raidissement d'une pâte minérale réactive, de son état frais jusqu'au début de sa prise

L'ajout de tensioactif dans le fluide modèle à seuil modifie ses propriétés rhéologiques. L'exemple présenté sur la Figure 3 correspond à l'ajout d'un tensioactif anionique, couramment utilisé dans la fabrication de matériaux isolants, l'Hostapur OSB® [1], dans un Carbopol® de contrainte seuil $\tau_s = 37 \text{ Pa}$. Des résultats similaires sont obtenus pour différents Carbopols® de seuils initiaux différents. Les paramètres du modèle rhéologique sont identifiés en ajustant la loi de Herschel-Bulkley sur les enregistrements (Tableau 1). Comme le montrent la Figure 3 et le Tableau 1, l'augmentation du dosage en tensioactif d conduit à une diminution du seuil. Cette diminution atteint 30 % avec un ajout de seulement 0,012 %. La consistance K semble moins affectée.

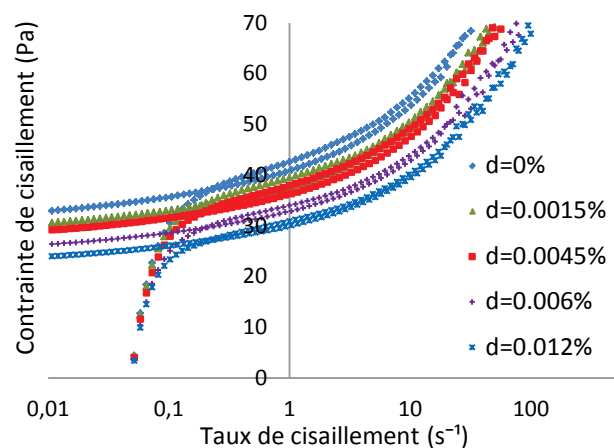


Figure 3. Rhéogramme du Carbopol® C07 pour différents dosages en tensioactif

Carbopol®	dosage tensioactif d	concentration Carbopol® %	τ_s (Pa)	K (Pa ⁻¹ⁿ)	n
C01	0	0,271	71	12,02	0,351
C02	0	0,214	33	9,02	0,199
C04	0	0,272	26	11,68	0,161
C07-d1	0	0,356	37	9,02	0,195
C07-d2	0,0015	0,356	34	8,45	0,180
C07-d3	0,0030	0,356	34	8,70	0,180
C07-d4	0,0045	0,356	33	8,87	0,181
C07-d5	0,0060	0,356	30	7,83	0,180
C07-d6	0,0120	0,356	27	7,25	0,158
C11-c1	0,003	0,440	34	10,66	0,179
C11-c2	0,003	0,396	27	9,60	0,155
C11-c3	0,003	0,356	18	8,68	0,114
C11-c4	0,003	0,321	15	7,23	0,100
C10-c1	0	0,440	40	9,29	0,1979
C10-c2	0	0,396	27	7,32	0,1434
C10-c3	0	0,356	18	7,31	0,0996
C10-c4	0	0,321	13	5,93	0,0857

Tableau 1. Paramètres du modèle d'Herschel-Bulkley (Eq. 1)

Pour les analyses de formation de bulles, le Carbopol® est placé dans un container en Plexiglas® à base carrée (9 x 9 cm²) (Fig. 4). De nombreux petits trous (diamètre 1 mm), régulièrement espacés de 2 mm, sont percés sous la base de ce dernier afin de permettre l'insertion d'une aiguille (diamètre 0,5 mm), permettant l'injection de bulles d'air. L'injection des bulles est réalisée à l'aide d'une micropipette à volume variable ($20 < V_i < 200 \mu\text{L}$ ou $100 < V_i < 1000 \mu\text{L}$ - par la suite, $V_0 = 200 \mu\text{L}$ sera le volume maximal injectable de la pipette). La pression d'air dans la bulle est quant à elle mesurée lors de l'injection à l'aide d'un manomètre à capsule (précision $\pm 0,001 \text{ MPa}$). Le montage permet ainsi d'injecter une ou plusieurs bulles à hauteur désirée.

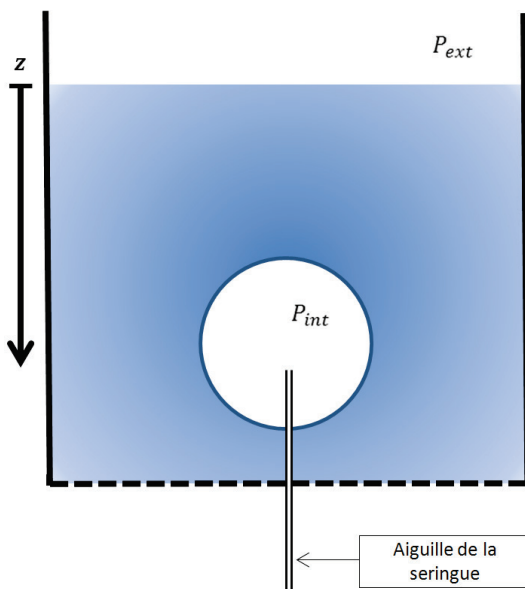


Figure 4. Schéma de principe de l'injection d'une bulle

Le volume réel des bulles injectées est obtenu par traitement d'image à l'aide du logiciel ImageJ [34]. La procédure de traitement des images est préalablement étalonnée en insérant dans la zone d'étude, dans le Carbopol®, un objet cylindrique de taille connue.

L'aire d'un pixel est ainsi obtenue et égale à $A_{pix} = 3,02 \cdot 10^{-4} \text{ mm}^2$. La bulle est prise en photo (Fig. 5a), puis l'image est binarisée (Fig. 5b). Le logiciel fournit le nombre de pixels appartenant à l'aire de la bulle, puis trace le contour de l'ellipse équivalente (Fig. 5c). L'étalonnage précédemment effectué permet de revenir à l'aire en mm² des projections des différentes bulles et à la longueur des demi axes ($a =$ demi-grand axe et $b =$ demi-petit axe de l'ellipse). Ces deux paramètres permettent de calculer le paramètre de sphéricité, défini par : $s = b/a$. En supposant que la bulle présente une axi-symétrie suivant le demi grand-axe, le volume de la bulle peut être estimé par l'Equation (3) avec une précision de 5 % :

$$V = \frac{4}{3} \pi a b^2 \quad (3)$$

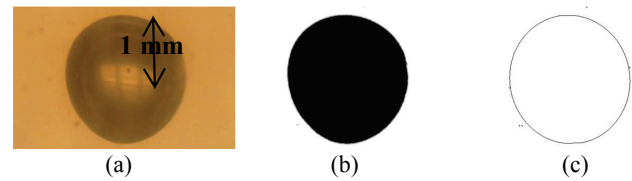


Figure 5. Analyse d'image ; image initiale (a) ; image binarisée (b) ; ellipse équivalente (c)

3. Protocole expérimental et validation

Une première bulle est injectée dans le fluide, sa pression interne P_{int} est mesurée à l'aide du manomètre à capsule. Puis, de l'air est injecté progressivement dans la bulle. Pour chaque palier de 0,02 Pa, le volume de la bulle V est déterminé à l'aide du traitement d'image. Le rapport entre le volume mesuré V de la bulle et le volume maximal injectable V_0 (200 μL) est nommé par la suite volume relatif : $Vr = V/V_0$. Les résultats sont présentés pour quatre volumes relatifs initiaux différents Vr_0 (1, 0,61, 0,44 et 0,25) dans le Carbopol® C01 dont le seuil de cisaillement est égal à $\tau_s = 71 \text{ Pa}$.

L'étude des conditions de croissance des bulles permet d'établir différents constats généraux. A l'injection, la bulle est quasiment sphérique (s proche de 1, Fig. 6) et garde cette forme dans un premier temps. Puis, en grossissant, la bulle perd progressivement sa sphéricité. Lorsque la bulle est devenue trop volumineuse, elle se déforme fortement et sa sphéricité

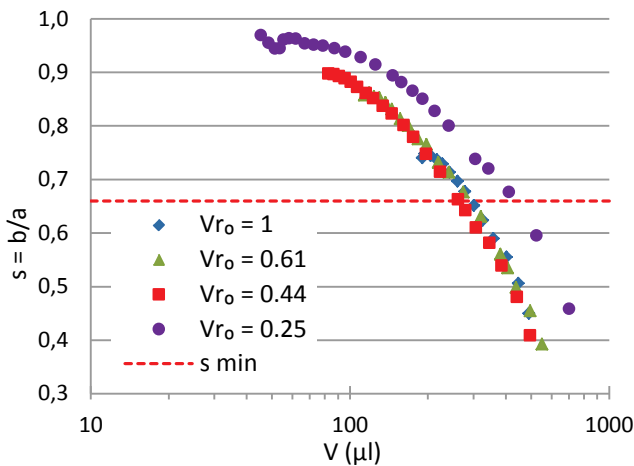


Figure 6. Variation du critère de sphéricité s en fonction du volume de la bulle V

devient inférieure à 0,66. La croissance de la bulle est alors très anisotrope. Sa croissance se fait essentiellement par déplacement de sa partie supérieure. Enfin, elle finit par remonter à la surface sous l'effet de la poussée d'Archimède.

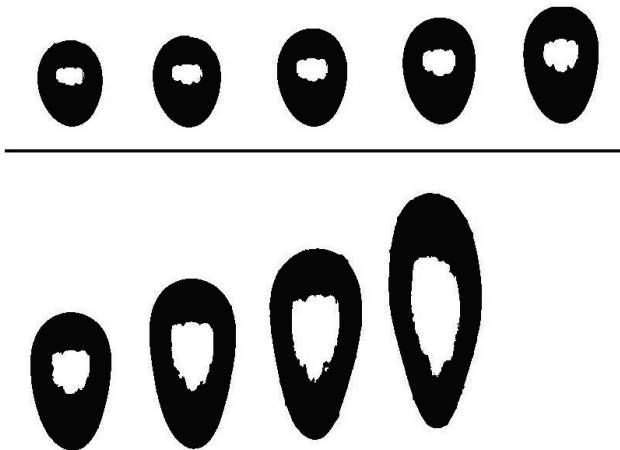


Figure 7. Remontée d'une bulle

On retrouve sur la Figure 6 une remontée en forme de goutte d'eau inversée, déjà citée dans la bibliographie [20].

Ces résultats sont aussi exploités afin d'analyser le domaine dans lequel la loi des gaz parfaits reste valide, $PVt = \text{constante}$, où Vt représente le volume total de la seringue et de la bulle à chaque palier de pression (Fig. 8). A partir d'un volume de bulle V supérieur à 300 μL , la loi des gaz parfaits n'est plus vérifiée, ce qui traduit une mesure insuffisante pour déterminer le volume Vt . Cette limite technique correspond à un critère de sphéricité inférieur à 0,66 (quel que soit le volume initial de bulle). Au-delà de ces limites de validité, le traitement d'image réalisé sur des projections 2D ne permet plus une bonne estimation du volume de la bulle.

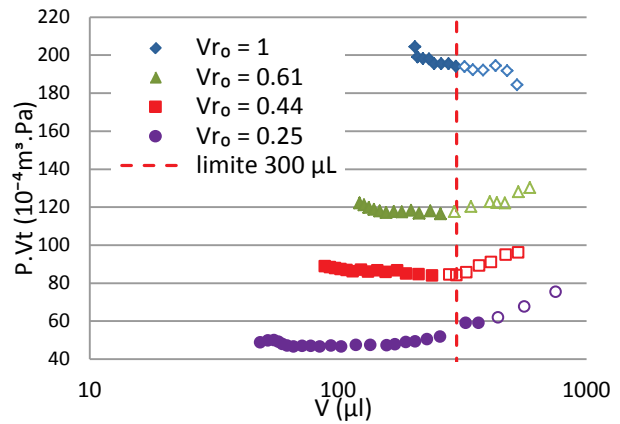


Figure 8. C03 ($\tau_s = 26 \text{ Pa}$) ; Variation du produit $P Vt$ en fonction du volume de bulle V mesuré

4. Influence du seuil de cisaillement sur la croissance des bulles

Afin de montrer l'influence du seuil de cisaillement du fluide sur la croissance des bulles, trois bulles de volumes relatifs initiaux différents sont insérées dans deux gels de Carbopol® de contraintes seuils différentes : $\tau_s = 71 \text{ Pa}$ et $\tau_s = 33 \text{ Pa}$.

Le volume V de la bulle est augmenté par injection et mesuré pour chaque palier de 0,02 MPa de la pression d'injection. On constate Figure 9 que, quel que soit le volume relatif initial Vr_o , le volume de la bulle située dans le Carbopol® à faible contrainte seuil sera plus grand.

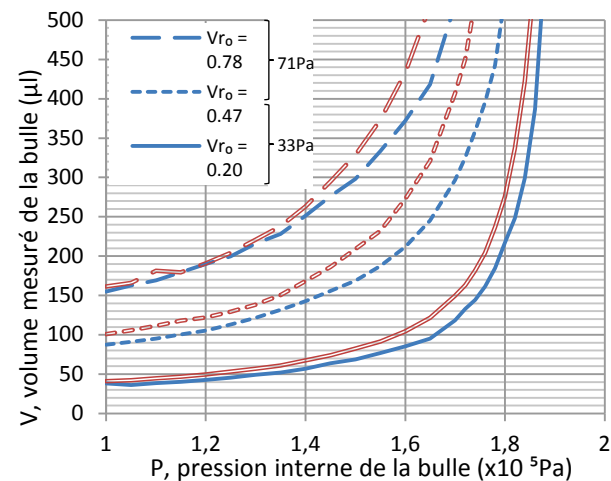


Figure 9. Evolution du volume en fonction de la pression interne de la bulle

Pour une même pression, une forte contrainte seuil semble freiner la croissance des bulles. L'augmentation de la pression interne P_p à produire dans une cavité sphérique pour faire croître et ainsi plastifier sa surface est directement proportionnelle au seuil de cisaillement. Une solution analytique du problème (posé en coordonnées sphériques) est donnée dans le

cas d'un matériau élasto-plastique parfait sur la base du critère de Von Mises (Eq. 4) [35] :

$$P_p = \frac{2}{3} \tau_s \quad (4)$$

En présence d'un fluide à seuil, lors de la croissance de la bulle, l'équilibre en pression résulte de la combinaison des effets liés au fait que l'état de contrainte satisfait le critère de plasticité autour de la bulle et des effets de tension de surface (en combinant les équations (2) et (4)). Le retour à l'état de pression interne initial ne conduit pas à la configuration géométrique initiale de la bulle, montrant ainsi l'effet de la plastification.

Afin de mettre en évidence l'impact du seuil de cisaillement sur la forme prise par une bulle, une nouvelle série d'expérience est réalisée. Une bulle de volume relatif initial $Vr_0 = 0,5$ est injectée dans trois Carbopol® de contraintes seuils différentes : $\tau_s = 40$ Pa, $\tau_s = 27$ Pa, $\tau_s = 16$ Pa. La poursuite de l'injection se traduit par une diminution de la sphéricité de la bulle (Fig. 10), plus marquée pour de faibles contraintes seuils. La sphéricité initiale des bulles injectées est plus marquée pour le gel ferme ($\tau_s = 40$ Pa).

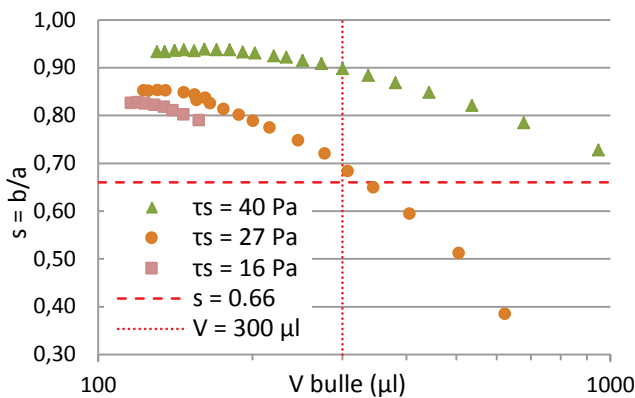


Figure 10. Evolution de la sphéricité avec l'augmentation de volume de la bulle V , pour $Vr_0 = 0,5$

Dans les gels plus fermes, l'augmentation du volume de la bulle est associée à une sphéricité relativement constante tant que $V < 300 \mu\text{L}$. La croissance du volume reste isotrope. Pour un volume suffisant, la forme de la bulle évolue. Sa croissance devient unidirectionnelle. La sphéricité décroît rapidement (Fig. 10). Si l'on poursuit l'injection, la bulle devient instable et finit par remonter vers la surface libre. Si l'on considère que la méthode de traitement d'image utilisé pour identifier le volume des bulles n'est exploitable que si s reste supérieur à 0,66, le volume limite s'avère être une fonction décroissante de la contrainte seuil.

5. Condition de stabilité des bulles

La stabilité de la bulle dans le fluide à seuil résulte de l'équilibre entre la poussée d'Archimède et la force de traînée opposée au mouvement par le fluide à seuil. La poussée d'Archimède est une simple fonction du volume de fluide déplacé et de la différence de masse volumique. La force de traînée d'une sphère immergée dans un fluide à seuil fait intervenir l'équivalent d'un maître couple et la valeur de la contrainte seuil. Nous pouvons considérer l'expression approximée correspondant au mouvement d'une sphère rigide dans un fluide plastique parfait [36] :

$$F_t = 12\pi\tau_s b^2 \quad (5)$$

En toute rigueur, cette expression doit être revue en présence d'une bulle déformable pour laquelle les conditions de cisaillement à l'interface peuvent être très différentes de celles constatées en présence d'une occlusion rigide. L'effet de la rugosité de l'occlusion va affecter le coefficient de l'équation (5) sans modifier sa forme générale. Le cas de sphères rigides lisses et rugueuses étudié par Ahonquio et al. [37] illustre le propos. Lors des essais, nous avons constaté que l'augmentation de volume d'une bulle de faible sphéricité se traduit essentiellement par l'expansion de sa partie supérieure, sa partie inférieure demeurant quasiment immobile. En conséquence, nous considérons que l'effort de traînée s'opposant à la croissance directionnelle de la bulle est estimé par la moitié de l'effort de traînée d'une sphère rigide immergée dans un fluide plastique parfait (Eq. (5)). La stabilité de la bulle dans le fluide à seuil est donc garantie si :

$$6\pi\tau_s b^2 > \Delta\rho g \frac{4}{3} \pi a b^2 \Leftrightarrow \frac{2}{9\tau_s} \Delta\rho g a < 1 \quad (6)$$

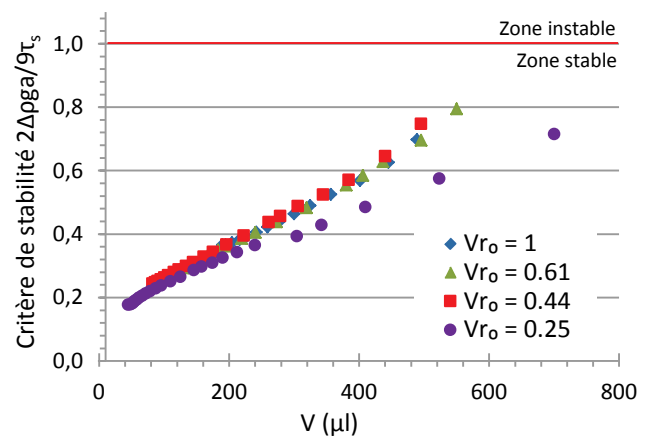


Figure 11. Evolution du coefficient de stabilité $2\Delta\rho g a / 9\tau_s$. L'évolution de la valeur du critère de stabilité est présentée sur la Figure 11. Le critère de stabilité est

vérifié pour l'ensemble des résultats présentés et tend vers sa valeur critique pour les bulles de grandes tailles, pour lesquelles nous avons constaté la perte de stabilité durant l'incrément de volume suivant. Au-delà des simplifications retenues pour sa formalisation, le critère de stabilité proposé semble pertinent, même si, au moment de la remontée des bulles, la méthode utilisée pour identifier leur volume soit moins précise.

6. Stabilité du contact entre bulles - influence du dosage en tensioactif

Les bulles enfermées dans les suspensions concentrées peuvent être amenées à entrer en contact. Ces phénomènes se rencontrent très souvent dans l'élaboration de matériaux à forte porosité [1]. Afin de visualiser le phénomène, le même montage expérimental est utilisé. Deux bulles de volumes relatifs initiaux égaux $Vr_0 = 0,5$ sont insérées à une distance fixée, à l'aide de micropipettes. Leurs volumes sont simultanément augmentés jusqu'à formation puis rupture de la membrane formée entre les bulles. L'essai est réalisé avec deux dosages en tensioactif. Rappelons que l'ajout de tensioactif modifie les propriétés rhéologiques du gel de Carbopol® (Fig. 3).

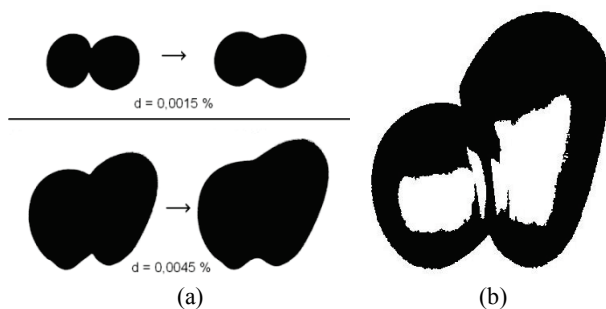


Figure 12. Contours des bulles avant puis après rupture de la membrane (a) ; Contact entre 2 bulles de tailles différentes (b)

Les conditions de contact entre bulles sont analysées en retenant les images correspondant à l'état juste avant et juste après la rupture de la membrane créée entre les deux bulles. Lorsque le Carbopol® n'est pas adjuvanté, la coalescence entre les bulles entrant en contact est immédiate, aucune membrane ne sépare les bulles. Le dosage en tensioactif de 0,0015 % conduit à la création d'une membrane entre les bulles (Fig. 12a, haut). Le volume relatif d'une bulle juste avant la rupture atteint en moyenne $Vr = 0,86$. Lorsque l'on multiplie par trois le dosage en tensioactif, la membrane est plus stable (Fig. 12a, bas). Le volume relatif moyen d'une bulle atteint $Vr = 3,15$ juste avant la rupture. Les dosages supérieurs à $d = 0,0045$ % ne sont pas présentés ici, la

membrane étant très stable, la coalescence n'a pas lieu et les bulles finissent par remonter par poussée d'Archimède. Un faible apport de tensioactif permet donc une amélioration considérable du maintien des bulles au sein du Carbopol®. Les phénomènes de coalescence sont stoppés.

Au sein d'une suspension, les bulles enfermées n'ont pas forcément la même taille. En cas de contact, le gradient de pression interne peut induire un phénomène de mûrissement, conduisant à une évolution des volumes des bulles. Les conditions d'interaction entre deux bulles de tailles différentes sont étudiées. Deux bulles de volume relatif $Vr_1 = 0,25$ et $Vr_2 = 0,75$ sont insérées dans un Carbopol® adjuvanté avec un dosage en tensioactif $d = 0,003$ %, qui permet la formation d'une membrane stable au contact. La différence de taille et donc de pression au sein des bulles se traduit par l'apparition d'une membrane courbe. La pression est supérieure dans la bulle de gauche (Fig. 12b), ce qui explique la pénétration de cette dernière dans celle de droite. Aucun mûrissement n'a été constaté après plusieurs heures. La diffusion gazeuse au sein de la membrane de Carbopol® est certainement trop lente pour compromettre la stabilité.

7. Analyse de la forme des bulles après coalescence

Lors de la fabrication de matériaux cimentaires, les bulles enfermées au sein de la suspension sont amenées à se rencontrer. L'évolution du seuil au cours du temps, lors de la prise, engendre une modification des conditions de coalescence. Pour étudier un tel cas, deux bulles de volume relatif initial $Vr_0 = 0,5$ distantes de 2 mm sont introduites dans 4 Carbopols® de contraintes seuils différentes. Le dosage en tensioactif est identique dans ces quatre Carbopols®, $d = 0,003$ %. La Figure 13 permet de comparer les résultats en présentant l'état juste avant et juste après la rupture de la membrane créée entre les deux bulles.

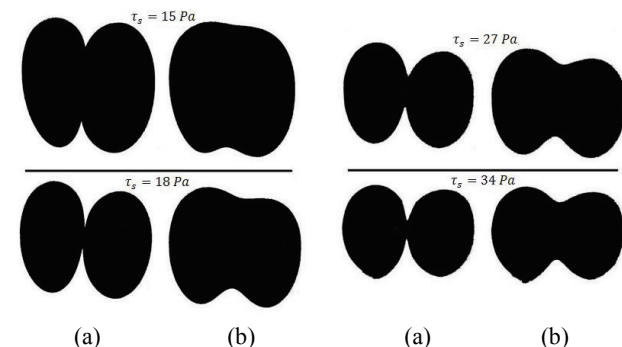


Figure 13. Evolution des conditions de coalescence en fonction du seuil ; avant rupture (a) ; après rupture (b)

Lorsque la contrainte seuil augmente, les deux bulles croissent moins facilement et conservent plus facilement leurs formes sphériques initiales, même après coalescence. A la coalescence, les deux bulles couplées prennent la forme d'une alvéole contractée en son centre. Cette forme n'est possible qu'en raison de la présence de la contrainte seuil. Son effet tend à conserver la forme des bulles et s'oppose à l'effet de la tension de surface qui tend logiquement à former une bulle sphérique de surface minimale (bulle unique).

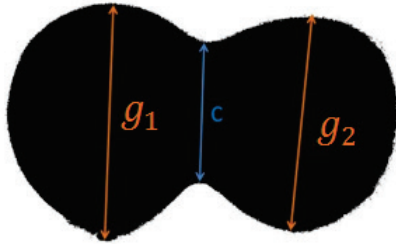


Figure 14. Paramètres géométriques des bulles après coalescence

Le contour des bulles associées constitue un indicateur direct de l'amplitude de la contrainte seuil. A cette fin, un indicateur géométrique r peut être proposé. r est le rapport entre la longueur de la connexion c créée entre les deux bulles et la moyenne des résidus des deux grands axes principaux g_1 et g_2 (Fig. 14) :

$$r = \frac{2c}{g_1 + g_2} \quad (7)$$

L'évolution de r en fonction de la contrainte seuil (Fig. 15) retraduit les observations de la Figure 14.

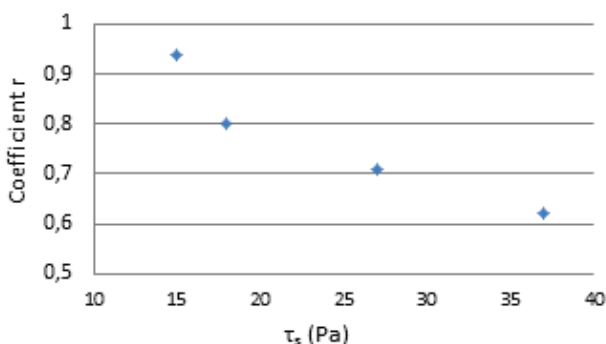


Figure 15. Evolution du coefficient r en fonction du seuil

8. Conclusions

Les conditions de formation, de croissance, de stabilité, l'évolution de la forme des bulles dans un fluide à seuil partiellement représentatif d'une suspension minérale sont assez différentes de celles attendues dans un fluide newtonien. L'utilisation d'un fluide à seuil modèle, transparent, montre que :

- l'introduction d'un tensioactif, favorable à la stabilité de la paroi d'une bulle, induit une réduction de la contrainte seuil ;

- le dosage en tensioactif est un paramètre important pour la stabilité d'une interface entre deux bulles en contact. Le risque de coalescence est alors maîtrisé. La formation d'une courbure de la membrane au contact de deux bulles de diamètres différents est alors possible ;

- une contrainte seuil élevée favorise la production de bulles sphériques et la conservation de cette sphéricité dans une gamme de volume étendue ;

- la stabilité des bulles dans un fluide à seuil se traduit par une forte anisotropie de la croissance des bulles avant leur remontée sous l'effet de la poussée d'Archimède.

On constate également que la pression au sein de la bulle, nécessaire à sa croissance, est une fonction du seuil du fluide. Il convient donc de tenir compte des effets d'une zone plastifiée se formant autour de la bulle en cours d'expansion, qui vient se cumuler aux effets de la tension de surface déjà pris en compte dans l'équation de Laplace.

9. Références

- [1] Coussot P., Ancey C., *Rhéophysique des pâtes et des suspensions*. EDP Sciences (1999).
- [2] Coussot P., Tocquer L., Lanos C., Ovarlez G., Macroscopic vs. local rheology of yield stress fluids. *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 158, 85–90 (2009).
- [3] *Comprendre la rhéologie. De la circulation du sang à la prise du béton*, Grossiord JL., Coussot P. Eds., EDP Sciences, Paris (2002).
- [4] Coussot P., *Rheometry of Pastes, Suspensions, and Granular Materials*, John Wiley, New York (2005).
- [5] Séguineau de Préval E., Impact de la viscoélasticité d'interface sur la taille de bulle de mousses modèles, 48^{ème} Congrès du Groupe Français de Rhéologie, Nantes (2013).
- [6] Samson G., Phelipot-Mardelé A., Lanos C., Influence du tensioactif sur les propriétés des gypses cellulaires. 20^{èmes} Rencontres Universitaires de Génie Civil, Chambéry (2012).
- [7] Beris A.N., Tsamopoulos J.A., Armstrong R.C., Brown R.A., Creeping motion of a sphere through a Bingham plastic. *J. Fluid Mech.*, 158, 219–44 (1985).
- [8] Tokpavi D.L., Jay P., Magnin A., Jossic L., Experimental study of the very slow flow of a yield stress fluid around a circular cylinder. *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 164, 35–44 (2009).
- [9] Jossic L., Magnin A., Drag and stability of objects in a yield stress fluid. *A.I.Ch.E. J.*, 47, 2666–72 (2001).

- [10] Atapattu D.D., Chhabra R.P., Uhlherr P.H.T., Wall effect for spheres falling at small Reynolds number in a viscoplastic medium. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 38, 31–42 (1990).
- [11] Hariharaputhiran M., Subramanian R.S., Campbell G.A., Chhabra R.P., The settling of spheres in a viscoplastic fluid. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 79, 87–97 (1998).
- [12] Gheissary G., van den Brule B.H.A.A., Unexpected phenomena observed in particle settling in non-Newtonian media. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 67, 1–18 (1996).
- [13] Putz A.M.V., Burghilea T.I., Frigaard I.A., Martinez D.M., Settling of an isolated spherical particle in a yield stress shear thinning fluid. *Phys. Fluids*, 20, 033102–033102–11 (2008).
- [14] Snabre P., Magnifotcham F.I., Formation and rise of a bubble stream in a viscous liquid. *Eur. Phys. J. B*, 4, 369–77. (1998).
- [15] Chen L., Garimella S.V., Reizes J.A., Leonardi E., The development of a bubble rising in a viscous liquid. *J. Fluid Mech.*, 387, 61–96 (1999).
- [16] Sikorski D., Tabuteau H., de Bruyn J.R., Motion and shape of bubbles rising through a yield-stress fluid. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 159, 10–6 (2009).
- [17] Mougin N., Magnin A., Piau J-M., The significant influence of internal stresses on the dynamics of bubbles in a yield stress fluid. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 171–172, 42–55 (2012).
- [18] Terasaka K., Tsuge H., Bubble formation at a nozzle submerged in viscous liquids having yield stress. *Chem. Eng. Sci.*, 56, 3237–45 (2001).
- [19] Dubash N., Frigaard I., Conditions for static bubbles in viscoplastic fluids. *Phys. Fluids*, 16, 4319–30 (2004).
- [20] Dubash N., Frigaard I.A., Propagation and stopping of air bubbles in Carbopol solutions. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 142, 123–34 (2007).
- [21] Cantat I., Cohen Addad S., Elias F., Graner F., Höhler R., Pitois O., Rouyer F., Saint-Jalmes. A., *Mousses liquides : structure et dynamique*. Belin, Paris (2010).
- [22] Duineveld P.C., Bouncing and coalescence of bubble pairs rising at high Reynolds number in pure water or aqueous surfactant solutions. *Appl. Sci. Res.*, 58, 409–39 (1997).
- [23] Lehr F., Millies M., Mewes D., Bubble-size distributions and flow fields in bubble columns. *A.I.Ch.E. J.*, 48, 2426–43 (2002).
- [24] Crabtree J.R., Bridgwater J., Bubble coalescence in viscous liquids. *Chem. Eng. Sci.*, 26, 839–51 (1971).
- [25] Kazakis N.A., Papadopoulos I.D., Mouza A.A., Bubble columns with fine pore sparger operating in the pseudo-homogeneous regime: Gas hold up prediction and a criterion for the transition to the heterogeneous regime. *Chem. Eng. Sci.*, 62, 3092–103 (2007).
- [26] Kazakis N.A., Mouza A.A., Paras S.V., Experimental study of bubble formation at metal porous spargers: Effect of liquid properties and sparger characteristics on the initial bubble size distribution. *Chem. Eng. J.*, 137, 265–81 (2008).
- [27] Yu Z., Yang H., Fan L-S., Numerical simulation of bubble interactions using an adaptive lattice Boltzmann method. *Chem. Eng. Sci.*, 66, 3441–51 (2011).
- [28] Li H.Z., Frank X., Funfschilling D., Mouline Y., Towards the understanding of bubble interactions and coalescence in non-Newtonian fluids: a cognitive approach. *Chem. Eng. Sci.*, 56, 6419–25 (2001).
- [29] Lin T-J., Lin G-M., The mechanisms of bubble coalescence in a non-Newtonian fluid. *Can. J. Chem. Eng.*, 81, 476–82 (2003).
- [30] Liu J., Zhu C., Fu T., Ma Y., Li H., Numerical simulation of the interactions between three equal-interval parallel bubbles rising in non-Newtonian fluids. *Chem. Eng. Sci.*, 93, 55–66 (2013).
- [31] Pierre A., Lanos C., Estellé P., Extension of spread-slump formulae for yield stress evaluation. *Appl. Rheol.*, 23, 14 (2013).
- [32] Pierre A., *Rhéologie de suspensions concentrées de sulfate de calcium*. Thèse de doctorat. Université de Rennes (2013).
- [33] Ovarlez G., Caractérisation rhéologique des fluides à seuil. *Rhéologie*, 28–43 (2011).
- [34] Rasband W., ImageJ.
- [35] Germain P., *Introduction à la mécanique des milieux continus*. Dunod, Paris (1997).
- [36] Ansley R.W., Smith T.N., Motion of spherical particles in a Bingham plastic. *A.I.Ch.E. J.*, 13, 1193–6 (1967).
- [37] Ahonguio F., Jossic L., Magnin A., Influence of surface properties on the flow of a yield stress fluid around spheres. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 206, 57–70 (2014).

[Abridged English version]**Bubble(s) stability within yield stress fluid**

The thermal and mechanical properties of cementitious materials strongly depend on the presence of air bubbles in the matrix. These bubbles are formed at fresh state in the mineral suspensions whose rheological behaviour is characterized by the presence of a shear yield stress. The study of the formation, the growth, the stability of air bubbles in these yielded fluids is considered. Work is performed using a transparent yielded fluid model (Carbopol®) in which the air bubbles are injected. Pictures and image processing make possible to obtain the bubbles geometrical characteristics. The influence of the yield stress on the growth of bubble is shown. The progressive expansion of bubble makes it possible to define a criterion of stability beyond which the buoyancy effects overcome the effects of yield stress what leads to the movement of the bubble. The tests reveal that the introduction of surfactant changes the rheological behavior of Carbopol® gels and contributes to stabilize the wall of the bubbles and leads to the formation of a membrane between two bubbles. Its stability depends on surfactant content. The risk of coalescence can then be controlled.