

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

Ministère de l'enseignement supérieur et de la recherche scientifique

UNIVERSITE MOULOU MEMMERI DE TIZI OUZOU

FACULTE DU GENIE DE LA CONSTRUCTION

Département de Génie Mécanique



Mémoire de fin d'études

En vue de l'obtention du Diplôme de Master en

Génie Mécanique

Option: Energétique Académique

Thème

*Dispersion eau dans huile dans un dispositif
microfluidique.*

Etude expérimentale et numérique

Proposé par :

Mr A.BELKADI

Mr S.ZOUAOUI

Réalisé par :

M^{elle} Radia BELKACEM

M^{elle} Chahra OUAREZKI

Année universitaire : 2016/2017

Remerciements

Nous tenons tout d'abord à remercier Dieu de nous avoir donné la force d'aller jusqu'au bout de ce travail, et de nous avoir entouré des nombreuses personnes qui nous ont aidés tout au long de notre parcours.

Nous remercions Mr BELKADI Arab et Mr ZOUAOUI Salah, pour leurs présences, leurs aides et leurs patiences qu'ils ont manifestée à notre égard durant l'élaboration de ce mémoire. Nous souhaitons témoigner toute notre reconnaissance aux enseignants ayant contribué et participé à notre formation.

Ce travail a été effectué aux laboratoires du département de génie mécanique de l'Université Mouloud Mammeri de Tizi Ouzou.

Un grand merci pour les responsables des labos de MCI (moteur à combustion interne), SDM (science des matériaux) pour leurs conseils et leurs patiences dont ils ont fait preuve envers nous, aussi pour leurs disponibilités durant notre pratique et pour les informations que nous avons recueillies auprès d'eux.

Nos gratitude vont aussi à l'ensemble des membres du jury composer de Mr. MAKHLOUF et Mr. BOUTOUDJ qui ont donné de leurs temps pour examiner notre mémoire et apporter un regard pertinent sur notre travail.

Radia et Chahra

Dédicace

Je dédie ce modeste travail :

A mes parents

A tous mes frères

A toutes mes sœurs

A mon fiancé SAMIR

*A ma chère collègue RADIA avec laquelle j'ai partagé ce
travail*

A toute ma famille

Et à tous les gens qui m'aime et que j'aime bien sur...

Chahra

Dédicace

Ce modeste travail est dédié :

*A la mémoire de mon cher père, mon cher frère, ma tante
MESSADE que leurs âmes soient tranquilles et que le bon
Dieu leur accorde sa miséricorde.*

*A ma chère mère et mon cher frère Lakhdar qui ont veillé
et souffert pour que je me construisse.*

A ma précieuse sœur : Thiziri et à son fiancé Ramdane.

*A tous mes frères, leurs épouses, mes sœurs et leurs maris, et
à tous mes neveux et nièces.*

A toute ma famille

*A ma très chère collègue Chahra avec laquelle j'ai partagé
ce travail et à toute sa famille et à son adorable sœur
Ghania.*

*A tous mes amies qui étaient fidèles à notre amitié « Asma,
Marwa, Lamia, Saliha
, Lycia, Lydia, Karima et Nadia ».*

Et à tous les gens qui m'aime et que j'aime bien sur.....

Radia

| | |
|--|----|
| Introduction Générale | |
| Introduction générale..... | 1 |
| Chapitre I | |
| I.1. Introduction..... | 3 |
| I.2. Définition..... | 3 |
| I.2.1. La micro-fluidique..... | 3 |
| I.2.2. Emulsion..... | 3 |
| I.2.3. Emulsification..... | 3 |
| I.3. Types d'émulsions..... | 4 |
| I.3.1. Classement selon la nature de la phase dispersée..... | 4 |
| I.3.1.1. Émulsions simples..... | 4 |
| I.3.1.2. Émulsions multiples..... | 5 |
| I.3.2. Selon la taille des gouttelettes de la phase dispersée..... | 5 |
| I.4. Détermination de type d'émulsification..... | 6 |
| I.5. Physico-chimie des interfaces..... | 7 |
| I.5.1. La tension interfaciale..... | 8 |
| I.5.2. La balance Hydrophile-Lipophile (HLB)..... | 9 |
| I.6. Variables de formulation, composition et procédé..... | 9 |
| I.6.1. Variables de formulation physico-chimique..... | 9 |
| I.6.2. Variables de composition..... | 9 |
| I.6.3. Variables mécaniques..... | 10 |
| I.7. Stabilité des émulsions..... | 10 |
| I.7.1. Le mélange eau-huile..... | 10 |
| I.7.1.1. Quel type d'interactions ?..... | 10 |
| I.7.2. Les agents d'émulsions..... | 10 |
| I.7.2.1. Tensioactifs..... | 10 |
| I.8. Mécanismes de déstabilisation des émulsions..... | 11 |
| I.8.1. Déstabilisation chimique..... | 11 |
| I.8.2. Déstabilisation biologique..... | 11 |
| I.8.3. Déstabilisation physique..... | 11 |
| I.8.3.1. Les phénomènes réversibles..... | 12 |
| I.8.3.1.1. La sédimentation et le crémage..... | 12 |
| I.8.3.1.2. La floculation..... | 12 |
| I.8.3.2. Les phénomènes non réversibles..... | 12 |
| I.8.3.2.1. Coalescence..... | 12 |
| I.8.3.2.2. Le phénomène de maturation d'Ostwald (mûrissement d'Ostwald)..... | 13 |
| I.8.3.2.3. L'inversion de phase..... | 13 |
| I.9. Nombre adimensionnels..... | 14 |
| I.9.1. Le nombre capillaire..... | 14 |
| I.9.2. Le nombre de Reynolds..... | 15 |
| I.10. Régime d'écoulements..... | 15 |
| I.10.1. Régime d'écoulements en microfluidique..... | 16 |
| I.11. Ecoulement microfluidique diphasique..... | 16 |
| I.11.1. Ecoulement en gouttelette..... | 16 |
| I.11.2. Ecoulement stratifié..... | 17 |
| I.11.3. Ecoulement annulaire..... | 17 |
| I.12. Fractionnement liquide-liquide..... | 17 |
| I.12.1. Différentes géométries en microfluidique..... | 17 |
| I.12.1.1. Ecoulement en T (T-Jonction)..... | 17 |
| I.12.1.1.1. Ecoulement croisé..... | 17 |

| | |
|---|----|
| I.12.1.1.2. Ecoulement perpendiculaire..... | 17 |
| I.12.1.2. Ecoulement focalisé..... | 17 |
| I.12.1.3. Ecoulement parallèle..... | 18 |
| I.13. Conclusion..... | 19 |
| Chapitre II | |
| II.1. Introduction..... | 20 |
| II.2. Matériels | 20 |
| II.2.1. Équipements de préparation..... | 20 |
| II.2.1.1. La verrerie | 20 |
| II.2.1.2. La balance..... | 21 |
| II.2.1.3. Le Viscosimètre..... | 21 |
| II.2.1.4. Banc d'émulsification..... | 21 |
| II.2.2. Matières premières..... | 24 |
| II.2.2.1. Phase aqueuse..... | 24 |
| II.2.2.1.1. Caractéristiques de Bleu de Méthylène..... | 24 |
| II.2.2.2. Phase huileuse..... | 24 |
| II.2.3. Photographie et camera..... | 24 |
| II.3. ImageJ..... | 24 |
| II.3.1. Caractéristique d'imageJ..... | 25 |
| II.4. Simulation..... | 25 |
| II.4.1. Caractéristique de COMSOL..... | 25 |
| II.5. Protocole d'émulsification..... | 25 |
| II.6. Méthodes..... | 26 |
| II.6.1. Mesure de viscosité..... | 26 |
| II.6.1.1. La procédure de mesure de la viscosité..... | 27 |
| II.6.2. Calcul du débit..... | 27 |
| II.6.3. Calcul de la pression..... | 27 |
| II.6.3.1. Procédure de calcul des pressions..... | 27 |
| II.6.4. Mesure du diamètre des gouttelettes..... | 28 |
| II.7. Conclusion..... | 29 |
| Chapitre III | |
| III.1. Introduction..... | 30 |
| III.2. Calcul de la masse volumique..... | 30 |
| III.3. Mesure de la viscosité dynamique..... | 30 |
| III.3.1. La viscosité de l'eau..... | 31 |
| III.3.2. La viscosité du mélange eau-bleu de méthylène..... | 31 |
| III.3.3. La viscosité de l'huile | 31 |
| III.4. Calcul de la fraction volumique | 31 |
| III.5. Calcul du nombre de Reynolds | 32 |
| III.6. La vitesse moyenne de l'émulsion (v_m)..... | 32 |
| III.6.1. Calcul de la section de passage de l'huile (S_h)..... | 32 |
| III.7. Tests expérimentaux..... | 32 |
| III.7.1. Série N°1 | 32 |
| III.7.2. Influence des paramètres sur le diamètre des gouttelettes..... | 34 |
| III.7.2.1. La pression..... | 34 |
| III.7.2.2. Le débit..... | 34 |
| III.7.2.3. La fraction volumique..... | 35 |
| III.7.3. Série N°2 | 36 |
| III.7.4. Etude de l'influence des conditions opératoires sur la formation des gouttelettes... | 37 |
| III.7.4.1. La pression..... | 37 |

| | |
|---|----|
| III.7.4.2. Le débit..... | 38 |
| III.7.4.3. La fraction volumique | 38 |
| III.8. Conclusion..... | 39 |
| Chapitre IV | |
| IV.1. Introduction | 40 |
| IV.2. Présentation du logiciel de modélisation COMSOL Multiphysics® | 40 |
| IV.2.1. Module de COMSOL Multiphysics® | 40 |
| IV.2.2. Les équations qui gouvernent le processus du fractionnement liquide/liquide (émulsification)..... | 41 |
| IV.2.2.1. Equation de Navier Stokes..... | 41 |
| IV.2.2.2. Equation de continuité (loi de Lavoisier)..... | 42 |
| IV.2.2.3. Equation de « level set »..... | 43 |
| IV.3. Principes étapes de simulation sous COMSOL..... | 44 |
| IV.3.1. Maillage..... | 44 |
| IV.4. Procédure de simulation sous COMSOL..... | 45 |
| IV.4.1. Géométrie..... | 47 |
| IV.4.2. Matériaux..... | 47 |
| IV.4.2.1. Propriétés des fluides | 47 |
| IV.4.3. Maillage..... | 48 |
| IV.4.3.1. Tests de sensibilité du maillage..... | 48 |
| IV.5. Résultats et discussion..... | 52 |
| IV.5.1. Résultats..... | 52 |
| IV.5.1.1. La fraction volumique..... | 52 |
| IV.5.1.2. Champs de vitesse..... | 55 |
| IV.5.2. Analyse des résultats..... | 58 |
| IV.6. Conclusion | 58 |
| Conclusion Générale | |
| Conclusion générale..... | 59 |

| Abréviations | unité |
|---|----------------------|
| a : profondeur du micro-canal | [mm] |
| b : hauteur du micro-canal | [mm] |
| Ca : nombre Capillaire | - |
| D : diamètre | [mm] |
| Dh : diamètre hydraulique | [mm] |
| Dg : diamètre de la gouttelette | [mm] |
| E : phase aqueuse | - |
| E/H : émulsion simple eau dans huile. | - |
| E/H/E : émulsion multiple eau dans huile dans l'eau. | - |
| F : facteur multiplicatif du viscosimètre | - |
| F_{vol} : force volumique. | |
| F_{ST} : force de tension de surface | [N/m] |
| g : gravité $g=9.81$ | [m.s ⁻²] |
| H : phase huileuse (huile) | - |
| H/E : émulsion simple huile dans eau | - |
| H/E/H : émulsion multiple huile dans eau dans huile | - |
| HLB : balance hydrophile lipophile (de l'anglais Hydrophilic Lipophilic Balance) | - |
| I : matrice identité. | - |
| K : degré de Kelvin | - |
| L : lecteur sur le viscosimètre | - |
| M : masse du fluide | [kg] |
| P : pression relative | [Pa] |
| P_{atm} : pression atmosphérique | [Pa] |
| P_e : pression de la phase aqueuse | [Pa] |
| Per : périmètre de la goutte | [mm] |
| P_h : pression de la phase huileuse | [Pa] |
| Q_e : débit de la phase aqueuse | [ml/min] |
| Q_h : débit de la phase huileuse | [ml/min] |
| Re : nombre de Reynolds | - |
| S : surface de la goutte | [mm ²] |
| S_{em} : section du conduit de l'émulsion | [mm ²] |
| S_h : section du conduit de la phase huileuse | [mm ²] |

| | |
|---|---------------------------|
| T : temps | [min] |
| V : volume | [ml] |
| v : vitesse de sédimentation | [m/s] |
| v_m : vitesse moyenne de l'émulsion à la sortie du conduit | [m/s] |
| z : hauteur | [mm] |
| z_e : hauteur du réservoir de la phase aqueuse | [mm] |
| z_h : hauteur du réservoir de la phase huileuse | [mm] |
| γ_{e/h} : tension interfaciale | [N/m] |
| φ_e : fraction volumique de l'eau | - |
| φ : Fraction volumique de l'huile | - |
| Φ : Fonction Level set | |
| μ : viscosité | [Pa.s] |
| μ_c, μ_h : viscosité de la phase continue (phase huileuse) | [Pa.s] |
| μ_d, μ_e : viscosité de la phase dispersée (phase aqueuse) | [Pa.s] |
| ρ : masse volumique. | [kg/m³] |
| ∇ : Operateur nabla | - |
| ε_{ls} : Paramètre de contrôle de l'épaisseur de l'interface. | [m] |
| Δm : variation de la masse des fluides | [kg] |
| ΔT : variation du temps | [min] |

| Chapitre I | |
|---|----|
| Figure I.1. Emulsion simple..... | 4 |
| Figure I.2. Émulsion multiple..... | 5 |
| Figure I.3. Classification des émulsions selon leurs tailles..... | 6 |
| Figure I.4. Variation de la conductivité électrolytique en fonction de la formulation..... | 7 |
| Figure I.5. La position d'une petite particule sphérique à l'interface huile-eau pour des angles de contact..... | 8 |
| Figure I.6. Couche interfacial..... | 8 |
| Figure I.7. Structure d'un tensioactif | 11 |
| Figure I.8. Les phénomènes intervenant dans la déstabilisation des émulsions..... | 14 |
| Figure I.9. Types d'écoulements..... | 16 |
| Figure I.10. écoulement à gouttelette : a) gouttelette sphérique. b) gouttelette allongée ou bouchon..... | 17 |
| Figure I.11. Principales géométries considérées pour la formation des gouttes dans un micro canal. On distingue géométrie à (a)écoulement parallèle (b) écoulement croisé (jonction en T) (c) écoulement focalisé (flow focusing)..... | 18 |
| Figure I.12 Mécanisme de formation des gouttes..... | 18 |
| Chapitre II | |
| Figure II.1. Eprouvette..... | 20 |
| Figure II.2. Becher..... | 20 |
| Figure II.3. Une Balance Electronique | 21 |
| Figure II.4. le viscosimètre..... | 21 |
| Figure II.5 .Vue globale du dispositif microfluidique destinée à l'émulsification eau dans huile..... | 22 |
| Figure II.6. Vue détaillée du canal d'écoulement microfluidique..... | 22 |
| Figure II.7. Seringue..... | 23 |
| Figure II.8. Interface d'image..... | 24 |
| Figure II.9. Interface de COMSOL..... | 25 |
| Figure II.10. Règle de lecture de la viscosité..... | 26 |
| Figure II.11 .Image représentant la méthode de mesure du diamètre des gouttelettes..... | 28 |
| Chapitre III | |
| Figure III.2. Influence de débit sur le diamètre des gouttelettes..... | 35 |
| Figure III.3. Influence de la fraction volumique de l'eau sur la taille des gouttelettes..... | 36 |
| Figure III.4. Influence de la pression sur le diamètre des gouttelettes..... | 37 |
| Figure III.5. Influence du rapport de débits $\left(\frac{Q_{vh}}{Q_{ve}}\right)$ sur le diamètre des gouttelettes (Dg).... | 38 |
| Figure III.6 Influence de la fraction volumique sur la taille des gouttelettes..... | 39 |
| Chapitre IV | |
| Figure IV.1. Module de COMSOL..... | 42 |
| Figure IV.2. Interface Γ dans R^2 | 44 |
| Figure IV.3. Interface graphique de COMSOL Multiphysics..... | 46 |
| Figure IV.4 .Dimension d'étude..... | 47 |
| Figure IV.5. sélection de la physique..... | 47 |
| Figure IV.6. Sélection d'étude..... | 48 |
| Figure IV.7. Interface des deux microcanaux (a) géométrie 1 (b) géométrie 2 | 48 |
| Figure.I V.8 Maillage extrêmement grossier de la géométrie 1..... | 50 |
| Figure IV.9. Maillage normal de la géométrie 1 | 51 |
| Figure IV.10. Maillage extrêmement fin de la géométrie 1..... | 51 |
| Figure IV.11. Maillage extrêmement grossier géométrie 2 | 52 |
| Figure IV.12. Maillage normal geometrie 2..... | 52 |

| | |
|--|----|
| Figure IV.13. Maillage extrêmement fin geometrie 2 | 52 |
| Figure IV.14. Fraction volumique des deux géométries pour un maillage extrêmement grossier (a) géométrie 1 (b) géométrie 2..... | 53 |
| Figure IV.15. La fraction volumique des deux géométries avec un maillage normal (a) géométrie 1(b) géométrie 2..... | 54 |
| Figure IV.16. Fraction volumique des deux géométries avec un maillage extrêmement fin (a) géométrie 1 (b) géométrie 2..... | 55 |
| Figure IV.17. Champ de vitesse des deux géométries avec un maillage extrêmement grossier (a) géométrie 1 (b) géométrie 2..... | 56 |
| Figure .IV.18. Champ de vitesse pour les deux géométries avec un maillage normal (a) géométrie 1 (b) géométrie 2..... | 57 |
| Figure IV.19. Champ de vitesse des deux géométries pour un maillage extrêmement fin (a) géométrie 1 (b) géométrie 2..... | 58 |

Chapitre I

| | |
|--|----------|
| Tableau n°1 : Les deux types d'émulsion | 2 |
|--|----------|

Chapitre III

| | |
|---|-----------|
| Tableau n°1 : Tableau récapitulatif des résultats obtenus lors de la série d'essai n°1.... | 33 |
|---|-----------|

| | |
|--|-----------|
| Tableau n°2 : représente les résultats du calcul de la vitesse moyenne ainsi que le nombre de Reynolds.de la série d'essai n°1..... | 33 |
|--|-----------|

| | |
|---|-----------|
| Tableau n°3 : Tableau récapitulatif des expériences menées lors de la série d'essai n°2..... | 36 |
|---|-----------|

| | |
|---|-----------|
| Tableau n°4 : Tableau récapitulatif des résultats obtenus lors du calcul du nombre de Reynolds et de la vitesse moyenne de la série 2..... | 37 |
|---|-----------|

Chapitre IV

| | |
|--|-----------|
| Tableau n°1 : Les conditions aux limites..... | 49 |
|--|-----------|

| | |
|---|-----------|
| Tableau n°2 : propriétés de chaque type de maillage..... | 50 |
|---|-----------|

Introduction Générale

Introduction Générale

Depuis toujours, les applications faisant intervenir des émulsions sont quasi infinies. Les émulsions sont employées dans l'industrie agroalimentaire (le lait, les mayonnaises, les vinaigrettes, etc.), pharmaceutique (crèmes de soin, etc.), cosmétique (rouges à lèvres, baumes et masque de visage, shampoing et savons liquides, etc.), y compris en énergétique. Depuis trois décennies, des recherches sont menées afin de développer des carburants émulsionnés dit de nouvelle génération. Le but de ces recherches étant de limiter l'effet de pollution que génèrent les moteurs Diesel en employant un carburant diesel conventionnel (Gasoil). En effet, il est prouvé expérimentalement que la dispersion d'une certaine quantité d'eau sous forme de gouttelettes micrométriques dans un carburant Diesel (Gasoil) permet de réduire les imbrulés gazeux et solides.

La présence de microgouttelettes d'eau dans du gasoil conventionnel permet une seconde atomisation de la gouttelette de ce carburant Diesel émulsionné. Lorsque celui-ci est injecté dans une chambre de combustion, la seconde atomisation, après l'injecteur, est le fruit d'un phénomène thermo-physique appelé micro-explosion. Ce phénomène conduit à la vaporisation de l'eau avant celle du Diesel. La micro-explosion intervient avant l'inflammation du mélange air, vapeur d'eau et carburant [22].

Par définition, les émulsions sont des systèmes hétérogènes constitués de deux ou plusieurs phases liquides non miscibles où un liquide est dispersé dans un autre sous forme de gouttelettes [26].

Le but principal du présent travail est de produire une émulsion de type eau dans huile de tournesol en employant un dispositif au sein duquel règnent des écoulements micro-fluidique. En effet, les dimensions des canaux d'écoulement du dispositif ainsi pour les besoins des expériences sont à l'échelle de l'ordre submillimétrique.

Notre étude se compose de quatre chapitres principaux dont le premier chapitre est une présentation générale du thème, le deuxième contient le matériel ainsi que les différentes méthodes utilisées et le troisième est une synthèse des résultats expérimentaux obtenus et le dernier chapitre est une simulation numérique.

Dans le premier chapitre nous avons donné des notions générales sur les émulsions et l'émulsification ainsi que leurs stabilités, et leurs formulations.

Le deuxième chapitre nous décrivons le matériel et l'appareillage utilisé lors de l'expérience ainsi que la méthodologie utilisée pour la recherche expérimentale.

Le troisième chapitre contient les différents résultats obtenus de la manipulation et leurs interprétations.

Le quatrième chapitre est consacré pour la modélisation numérique sous COMSOL Multiphysics version 5.2 de cette technique d'émulsification.

Et une conclusion générale récapitule les résultats obtenus dans notre travail pour clôturer.

Chapitre I :

Généralités

Chapitre I :**Généralités****I.1. Introduction :**

Depuis les années 1990, les systèmes microfluidiques subissent une évolution très rapide, plusieurs recherches et articles ont été publiés dans ce domaine comme celle de shoji et esahi en 1994 et Gravesen et al en 1993 [1]. Le nombre d'applications de ces microsystèmes ne cessent d'évoluer et de s'élargir (mécanique, chimie, pharmaceutique, agroalimentaire). La plupart de ces applications sont basés sur la technique de la dispersion d'une phase dans une autre dans un microsysteme en forme de T (T- Junction).

Avant d'aborder le mécanisme de génération des gouttelettes dans les micro canaux et les paramètres de contrôle de cette génération (stabilité des gouttelettes), il est très utile de faire un rappel sur quelques notions de base (généralités et définitions).

I.2. Définitions :**I.2.1. La micro-fluidique :**

La micro-fluidique est définie comme étant la science qui étudie le comportement des fluides dans des canaux dont l'une des dimensions est micrométrique. La micro-fluidique diphasique étudie le comportement de deux fluides non miscibles [2].

I.2.2. Emulsion :

Par définition, le terme émulsion est tiré du latin : emulsus, de emulgere et en français : traire, extraire. Ce terme désigne un système comprenant au moins deux liquides non miscibles dont l'un est dispersé dans l'autre. Généralement on distingue deux phases : l'une aqueuse et l'autre huileuse [3, 4,5].

I.2.3. Emulsification :

C'est le processus permettant le mélange d'au moins deux liquides non miscibles. Cette opération consiste à disperser sous forme de gouttelettes une phase liquide dans un autre liquide immiscible (dispersion liquide-liquide) nécessitant une dépense d'énergie mécanique conséquente qui permet de vaincre la tension à l'interface des liquides immiscibles $\gamma_{e/h}$ [3].

I.3. Types d'émulsions :

Il existe plusieurs types d'émulsions, on peut les classer selon la nature de la phase dispersée ou encore selon la taille des gouttelettes de cette phase.

I.3.1. classement selon la nature de la phase dispersée

I.3.1.1. Émulsions simples :

Elles sont composées d'une phase lipidique, d'une phase aqueuse et d'un émulsifiant. On définit deux types d'émulsions (voir Tableau n°1).

Une émulsion huile dans l'eau (H/E) est formée par une phase huileuse dispersée dans une phase aqueuse. Il s'agit d'une émulsion « directe ». Une émulsion eau dans huile (E/H) est formée à partir d'une phase aqueuse dispersée dans une phase huileuse. L'émulsion est dite « inverse », elle est plus grasse au toucher, car ce dernier correspond majoritairement à la nature de la phase externe (continue) [6,7]

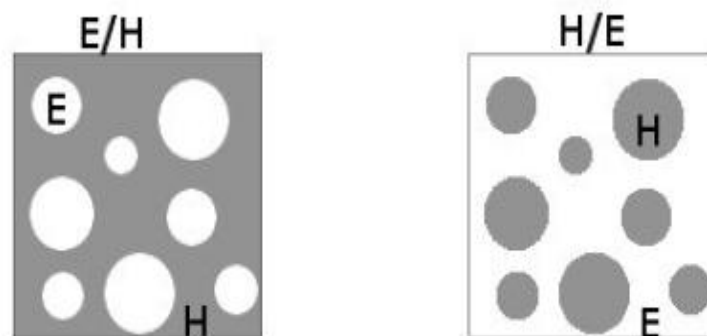


Fig.I.1 : Emulsion simple [4].

| | Phase dispersée | Phase dispersante | symboles |
|--|-----------------|-------------------|----------|
| Emulsion Huile dans Eau (Huile/Eau) =émulsions de type aqueux =émulsions à eau externe | lipidique | aqueuse | H/E |
| Emulsion eau dans huile (Eau/Huile) =émulsions de type huileux =émulsion à huile externe | aqueuse | lipidique | E/H |

Tableau n°1 : Les deux types d'émulsion simple [7].

II.3.1.2.Émulsions multiples :

Dans ce type d'émulsions, on distingue trois phases (interne / intermédiaire/ externe) :

La dispersion d'une émulsion (E/H) dans une phase aqueuse (E) donne une émulsion (E/H/E);

A l'inverse, la dispersion d'une émulsion (H/E) dans une phase huileuse (H) donne une émulsion (H/E/H) [5].

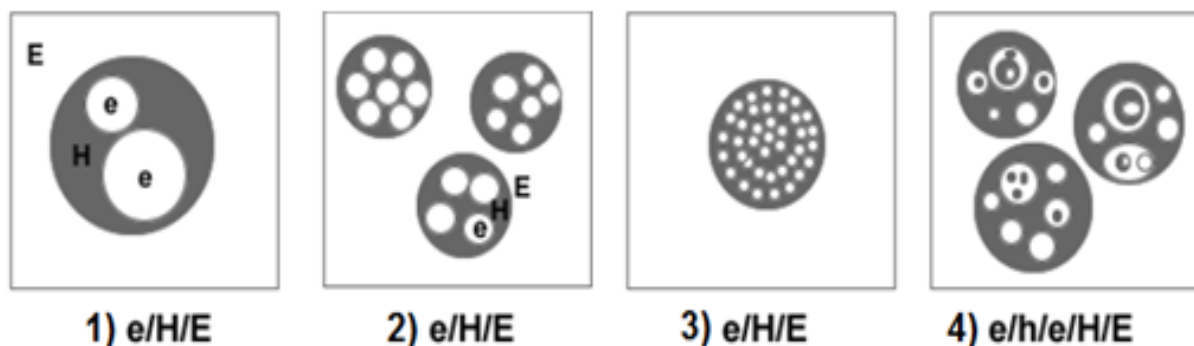


Fig.I.2 : Émulsion multiple [4,7].

I.3.2. Selon la taille des gouttelettes de la phase dispersée :

Suivant les tailles des gouttes d'un liquide dispersé dans un autre liquide, on définit:

- ✓ **Macro émulsions** : Emulsions instables thermodynamiquement, d'une transparence opaque et de couleur blanche laiteuse. La taille des gouttelettes dispersées est supérieure à 1 micromètre.
- ✓ **Les microémulsions** : émulsions obtenues en présence de deux tensioactifs. Visuellement, elles sont constituées d'une seule phase continue, incolores et d'un aspect transparent. La taille des gouttelettes est de l'ordre de 10 à 50 nm. Ces émulsions sont stables thermodynamiquement.

- ✓ **Les nano-émulsions** : La taille des gouttelettes de ce type d'émulsion est très inférieure à 1 micromètre, elles sont instables thermodynamiquement, de couleur blanche bleuâtre ou incolore et d'un aspect translucide ou transparent [8].

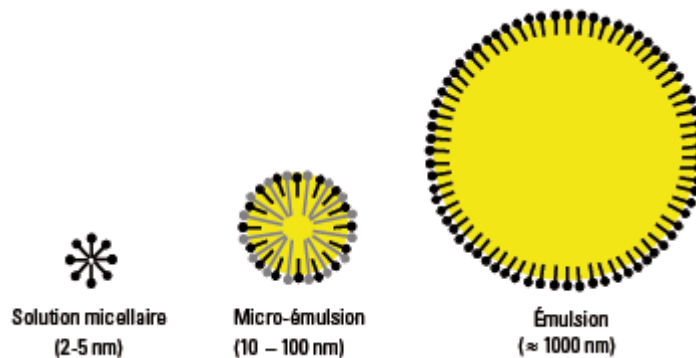


Fig.I.3. Classification des émulsions selon leurs tailles [6].

I.4. Détermination de type d'émulsification :

Il existe diverses méthodes expérimentales pour déterminer le type d'une émulsion, mais la mesure de la conductivité électrolytique est la méthode la plus utilisée. La phase aqueuse, qui contient généralement des électrolytes, se caractérise par une conductivité élevée (de l'ordre de quelques milis siemens par centimètre mS/cm), tandis que la phase huileuse, par sa nature apolaire, présente une très faible conductivité (de l'ordre de quelques μ S/cm). Ainsi, une émulsion directe H/E sera conductrice quand le système inverse E/H ne donnera pas lieu à une conductivité significative [9].

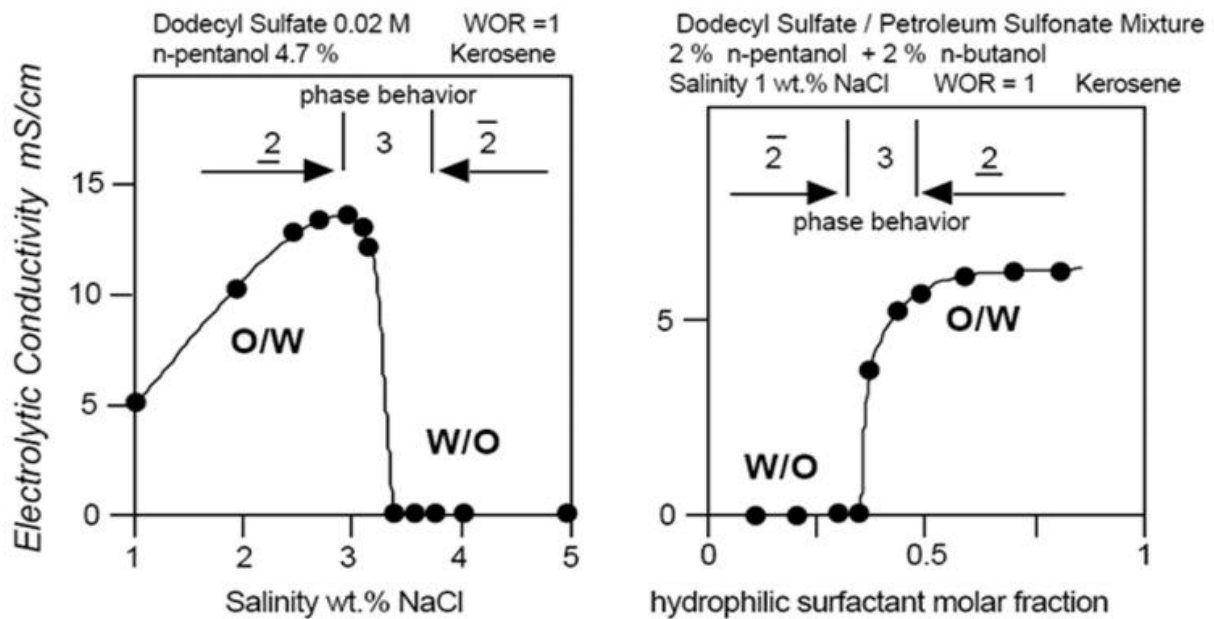


Fig.I.4 : Variation de la conductivité électrolytique en fonction de la formulation [9].

I.5. Physico-chimie des interfaces :

A l'échelle micrométrique, l'effet de l'interface est dominant et crucial. Dans les écoulements diphasiques les interfaces se divisent en deux catégories : interfaces fluide-paroi et interfaces fluide-fluide.

Pour que les gouttelettes s'adsorbent à l'interface, il est nécessaire qu'elles soient partiellement mouillées par les deux phases. L'angle formé entre la phase aqueuse, la phase huileuse et le solide noté θ est l'angle de contact qui caractérise la mouillabilité. La valeur de cet angle détermine le positionnement de la particule à l'interface.

D'après Zhao et Middelberg, il est prouvé que lorsque l'angle de contact est inférieur à 90° ($\theta < 90^\circ$) seulement l'écoulement désordonné est observé. Si l'angle de contact est supérieur à 90° ($\theta > 90^\circ$), un écoulement ordonné des gouttelettes peut être achevé [10, 11].

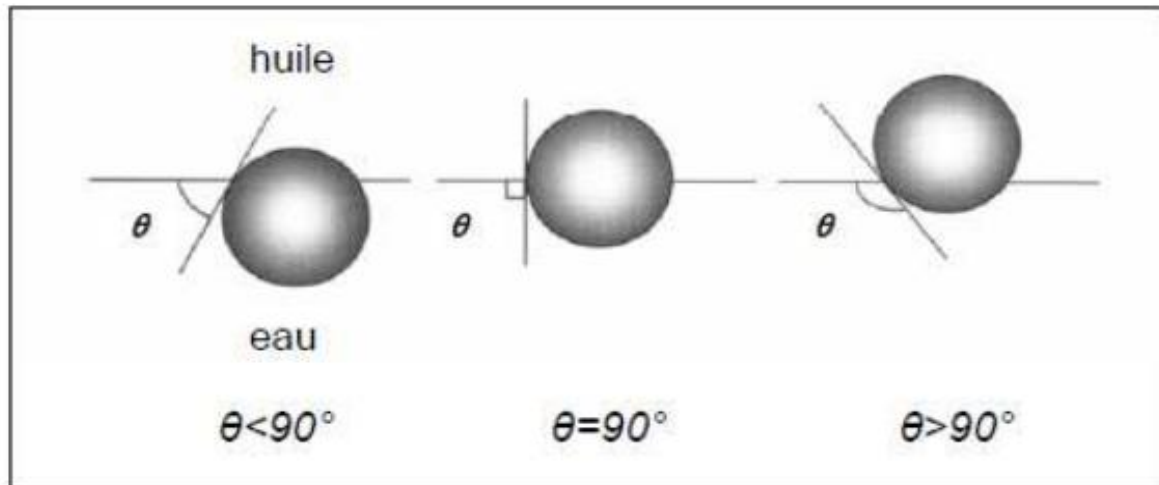


Fig.I.5. La position d'une petite particule sphérique à l'interface huile-eau pour des angles de contact [11].

I.5.1. La tension interfaciale :

L'équilibre entre deux phases non miscibles est maintenu que s'il existe une stabilité inter-faciale entre les deux fluides. Le traitement thermodynamique des surfaces et des interfaces a été introduit pour la première fois par Gibbs. L'interface est caractérisée par son énergie libre F_s .

$$F_s = \frac{\partial F}{\partial A} A = \gamma \cdot A \quad (I.1)$$

Par définition, la tension interfaciale (γ) est une énergie par unité de surface. Elle représente l'énergie qu'il faut fournir au système pour augmenter l'aire interfaciale A [13,14].

Plus la tension interfaciale est élevée, plus l'énergie nécessaire pour la vaincre est plus importante.

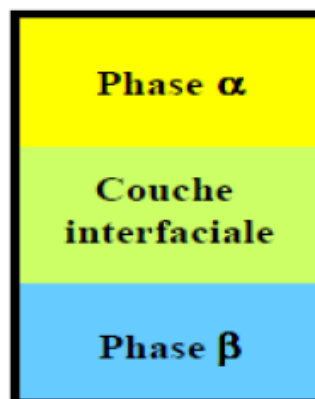


Fig.I.6. Couche interfaciale [12].

I.5.2. La balance Hydrophile-Lipophile (HLB) :

Il s'agit d'une échelle semi empirique proposée par Griffin en 1949 qui va de 0 à 20 et qui nous permet de classer chaque groupe tensioactif suivant son indice HLB [13]

Elle nous permet de formuler des émulsions stables (elle correspond au rapport entre la proportion hydrophile, ayant une affinité pour l'eau et la longueur de la chaîne lipophile, ayant une affinité pour l'huile). Cette méthode est basée sur l'utilisation d'une règle simple de calcul des propriétés de mélange de tensioactifs [15].

En dessous d'un HLB d'une valeur de 7, l'émulsifiant est de caractère lipophile (formation d'une émulsion e/h) tandis qu'en dessus de 8, il a un caractère hydrophile (formation d'une émulsion h/e) [22].

Il existe plusieurs formules pour le calcul du HLB [4], on cite :

$$HLB = \frac{100 \text{ masse de la tete hydrophile}}{5 \text{ masse totale}} \quad (I.2)$$

Aujourd'hui, il est possible de trouver le HLB de tensioactifs reporté dans la littérature ou dans des catalogues de produits chimiques [15].

I.6. Variables de formulation, composition et procédé :

Il existe trois catégories de variables qui influencent le type d'émulsion:

I.6.1. Variables de formulation physico-chimique :

Ce sont les variables intensives (indépendantes des concentrations) associées à l'état d'équilibre du système. Il s'agit de tous les paramètres physiques ou chimiques comme la température, la pression, la nature des constituants, le type d'électrolyte, les alcools [8].

I.6.2. Variables de composition :

Ce sont les variables extensives associées aux quantités et proportions des composants principaux du système : l'eau, l'huile et le tensioactif. Les deux variables les plus communément utilisées sont la concentration en tensioactif et le rapport eau/huile (ou rapport WOR, de l'Anglais, Water in Oil Ratio) [8].

I.6.3. Variables mécaniques :

Ce sont les variables associées au protocole d'émulsification comme l'ordre d'incorporation des composants, la géométrie du dispositif d'agitation, la vitesse d'agitation ou l'énergie mécanique fournie [9,16].

I.7. Stabilité des émulsions :

Il est possible de stabiliser les émulsions sur une durée qui peut aller de quelques heures à quelques années. On parle alors de la stabilité cinétique ou d'état métastable

I.7.1. Le mélange eau-huile**I.7.1.1. Quel type d'interactions ?**

Lorsque deux gouttelettes se rapprochent, elles subissent des interactions de deux sortes : hydrodynamiques et thermodynamiques :

Les interactions hydrodynamiques résultent du mouvement des interfaces. Elles deviennent significatives lorsque la distance entre les surfaces est du même ordre de grandeur que la taille des gouttes.

Les interactions thermodynamiques sont dues aux forces de Van der Waals, aux forces électrostatiques et stériques. Elles ne dépendent que de la distance qui sépare les gouttes et persistent même lorsque les gouttes sont au repos.

Généralement, les interactions thermodynamiques deviennent importantes lorsque le film qui sépare les gouttes est très mince [17].

I.7.2. Les agents d'émulsions :

Les émulsions ne peuvent être conservées que si leurs interfaces sont protégées par un système stabilisant qui peut être naturel ou bien synthétique. Les trois principaux types de systèmes stabilisants sont les tensioactifs, les polymères et les particules solides.

Pour qu'une émulsion soit stabilisée, il faudrait que :

- La tension interfaciale soit faible,
- La couche interfaciale soit résistante,
- Le diamètre des gouttelettes soit faible [13].

I.7.2.1. Tensioactifs :

Un tensioactif, appelé aussi agent de surface, est un composé qui modifie la tension superficielle entre deux surfaces. Les composés tensioactifs sont amphiphiles et formés de

deux parties, Une tête polaire soluble dans l'eau dite hydrophile et une chaîne carbonée de dix à vingt atomes de carbone qui sont repoussés par l'eau qualifiée d'hydrophobe et donc apolaire [15].

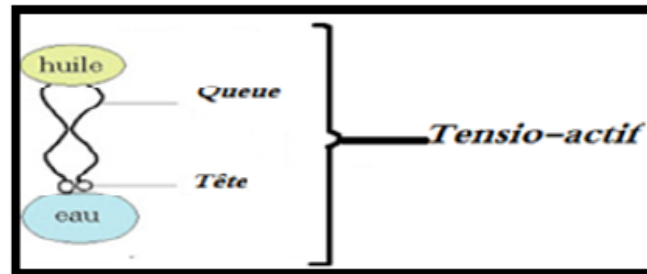


Fig.I.7: Structure d'un tensioactif [15]

On distingue quatre types de composés tensioactifs, regroupés selon la nature de la partie hydrophile : tensioactifs ioniques (anioniques, cationiques), amphotères ou zwitterioniques et tensioactifs non ioniques

I.8. Mécanismes de déstabilisation des émulsions :

Les émulsions sont des systèmes métastables qui peuvent se déstabiliser. On distingue trois formes d'instabilité [9].

I.8.1. Déstabilisation chimique :

Dans ce cas l'instabilité est due à des réactions chimiques entre les différents composants [9].

I.8.2. Déstabilisation biologique :

Sous l'effet de micro-organismes, une contamination de l'émulsion peut avoir lieu ; ce qui donne la rupture de système [9].

I.8.3. Déstabilisation physique :

Les émulsions sont thermodynamiquement instables, ceci conduisant inéluctablement à la séparation des phases. Ce constat demeure valable en présence d'émulsifiants car tout système a tendance à regagner son état d'énergie stable (séparation des phases).

Ces phénomènes peuvent être classés en deux grandes catégories : les phénomènes réversibles et non réversibles [4].

I.8.3.1. Les phénomènes réversibles :**I.8.3.1.1. La sédimentation et le crémage**

Dans le cas d'une émulsion inversée (e/h) la sédimentation est une précipitation de la phase dispersée, contrairement au crémage qui lui est une ascension de la phase dispersée dans une émulsion (h/e). L'apparition de ces phénomènes physiques est le résultat d'une déstabilisation des émulsions dont le moteur est constitué respectivement par la pesanteur et la poussée d'Archimède.

- Le crémage : C'est le déplacement des gouttelettes dispersées vers le haut de l'émulsion.

- La sédimentation : C'est la chute au fond du récipient des gouttelettes dispersées.

Une simple agitation permet de retourner à l'émulsion de départ [4,5].

$$v = \frac{2(\rho_{goutte} - \rho_{fluide})gr^2}{9\eta} \quad (I.3)$$

Avec

v est la vitesse de sédimentation ($m.s^{-1}$), ρ_{goutte} masse volumique de la phase dispersée, ρ_{fluide} masse volumique de la phase continue ($kg.m^{-3}$), g accélérations due à la pesanteur ($m.s^{-2}$), r rayon des gouttes, η la viscosité de la phase continue (Pa.s).

L'équation illustre bien l'influence de la taille des gouttes et de la viscosité de la phase continue sur l'évolution de l'état de l'émulsion dans le temps sous l'effet de la sédimentation ou du crémage [12].

I.8.3.1.2. La floculation :

La floculation a pour origine une "adhésivité" des gouttelettes, elle résulte d'une compétition entre agitation thermique et forces de Van der Waals. Les gouttelettes d'une émulsion sont en effet animées d'un mouvement brownien, qui induit des chocs entre gouttelettes. Si une interaction attractive suffisante existe entre les gouttes ainsi mises en contact, elles restent associées. La floculation est le rassemblement de gouttelettes de la phase dispersée en donnant des agrégats [4,5].

I.8.3.2. Les phénomènes non réversibles.**I.8.3.2.1. Coalescence**

La coalescence est le phénomène de dégradation ultime des émulsions. La coalescence est l'inverse de l'étape de dispersion : deux ou plusieurs gouttes vont fusionner pour former une goutte plus grosse. Le processus se répétant, la phase dispersée dé-mixe, et l'on revient au

système diphasique de départ. Tous les phénomènes qui favorisent un rapprochement durable des gouttes placent le système dans une situation a priori favorable à la coalescence. Les mécanismes intimes de la coalescence sont encore mal connus, mais la physique des films minces (séparant deux gouttes en contact) est un domaine actif de la recherche contemporaine. La coalescence est les gouttelettes dispersées de l'émulsion se fusionnent pour donner des gouttelettes plus grosses [5].

I.8.3.2.2. Le phénomène de maturation d'Ostwald (mûrissement d'Ostwald) :

La taille des gouttelettes augmente sous l'effet de transfert de masse entre gouttelettes via la phase continue. On l'observe surtout entre les bulles d'air d'une mousse (émulsion air dans-eau), l'air étant faiblement soluble dans l'eau. Pour l'éliminer, il faut minimiser la solubilité dans la phase continue des molécules qui constituent la phase dispersée (inhibition du transport de matière) ou de diminuer l'énergie interfaciale (diminution de la surpression de Laplace) [5].

I.8.3.2.3. L'inversion de phase

C'est un passage brutal d'une émulsion « huile-dans-eau » à une émulsion « eau-dans-huile ». La stabilité physique d'une émulsion peut influencer sa stabilité chimique. En effet, une phase crémée représente une émulsion concentrée dans laquelle les probabilités de collisions entre gouttelettes augmentent et par la suite et les vitesses de réaction pourraient ainsi augmenter [5].

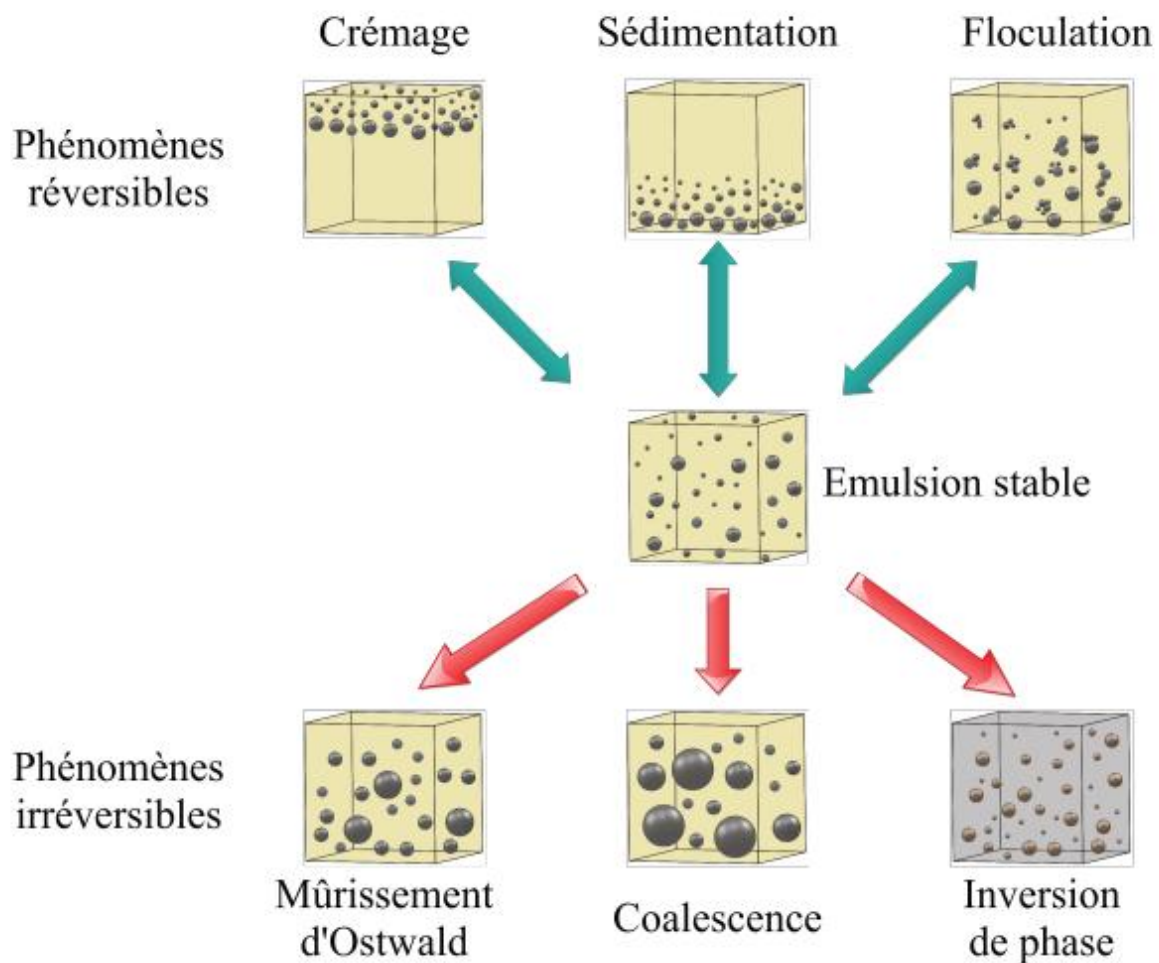


Fig.I.8. : Les phénomènes intervenant dans la déstabilisation des émulsions [4].

I.9. Nombre adimensionnels :

L'écriture adimensionnelle des équations fait apparaître plusieurs groupements adimensionnels. Ces groupements permettent de prendre en compte l'importance des propriétés d'écoulements diphasiques tels que : la géométrie du canal, les propriétés des deux fluides et les conditions d'écoulements [3,20].

I.9.1. Le nombre capillaire :

C'est un nombre adimensionnel qui représente le fractionnement de la phase dispersée dans la phase continue et sur le plan physique. Il représente le rapport entre les forces de cisaillement et des forces interfaciales, représentées par la pression de Laplace [3],

$$Ca = \frac{\mu_c v_m}{\gamma_e / h} \quad (\text{II.4})$$

Avec :

μ_c : viscosité dynamique du fluide [Pa.s].

v_m : vitesse moyenne de l'émulsion en sortie [m/s].

$\gamma_{e/h}$: la tension inter faciale [N/m].

I.9.2. Le nombre de Reynolds :

Par définition le nombre de Reynolds a pour expression $Re = \frac{\rho v D_h}{\mu}$ utilisé en mécanique des fluides pour caractériser un régime d'écoulement monophasique. Il est mis en évidence en 1883 par Osborne Reynolds. Ce nombre a été adapté pour être employé dans des écoulements diphasiques. Ainsi, le nombre de Reynolds appliqué aux émulsions en écoulement permet de décrire l'importance relative des forces d'inertie ($\rho_d v_m^2 S_{emul}$) opposées par la phase dispersée et les forces visqueuses appliquées par la phase continue ($\frac{\mu_c v_m}{d_{goutte}} S_{emul}$) et a pour expression [3]:

$$Re = \frac{\rho_d v_m d_g}{\mu_c} \quad (I.6)$$

Avec :

D_H : diamètre hydraulique du canal [m]

d_g : diamètre de la gouttelette [mm]

ρ : masse volumique du fluide [kg/m^3]

v : vitesse du fluide [m/s]

μ_c : viscosité dynamique du fluide [Pa.s]

ρ_d : masse volumique de la phase dispersée [kg/m^3]

v_m : vitesse moyenne de l'émulsion en sortie [m/s].

II.10. Régime d'écoulement dans les conduits :

A l'échelle micrométrique, la typologie des écoulements est analogue aux écoulements dans des conduites macroscopiques, c'est-à-dire les écoulements laminaires ou turbulents.

- **Écoulement laminaire** : un écoulement est laminaire si les lignes de courant glissent les unes sur les autres en restant parallèles : Un écoulement laminaire existe généralement si la vitesse est faible.

On dit qu'un écoulement est laminaire si le nombre de Reynolds est inférieur à 2000 ($Re < 2000$) [21].

- **Écoulement turbulent** : si la vitesse est élevée, l'écoulement est dit turbulent. C'est un écoulement instable et sa structure est chaotique.

On dit qu'un écoulement est turbulent lorsque le nombre de Reynolds est supérieur à 2000 ($Re > 2000$) [21].

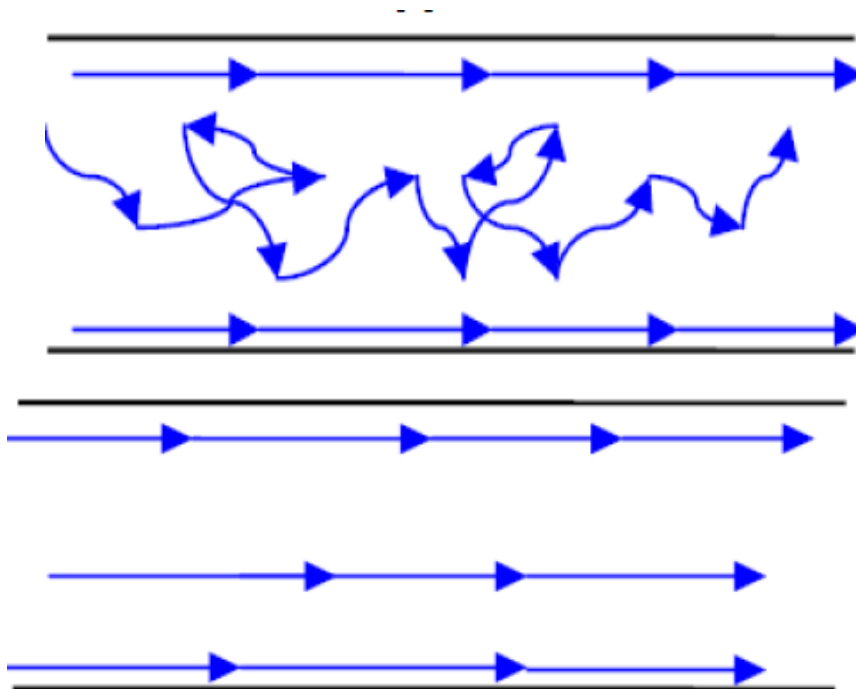


Fig.I.9. Types d'écoulements [20].

I.10.1. Régime d'écoulement en microfluidique :

A l'échelle micrométrique, le nombre de Reynolds est généralement inférieur à 1 (entre 10^{-3} et 10^{-1}). L'hydrodynamique est alors dominée par les effets visqueux, et le fluide est en régime laminaire. Ce dernier est décrit dans le cas stationnaire par l'équation de Stokes [2] :

$$\overline{grad}P = \mu \Delta \vec{v} \quad (I.7)$$

I.11. Ecoulement microfluidique diphasique :

Lors de l'introduction de deux phases immiscibles dans un micro canal, trois types d'écoulements stables peuvent apparaître :

I.11.1. Ecoulement en gouttelette : un fluide (phase dispersée) forme des gouttelettes à l'intérieur d'un deuxième fluide immiscible (phase continue). La gouttelette peut présenter sous deux formes : forme sphérique si sa taille est inférieure à la dimension du micro canal ou forme allongée si sa longueur est supérieure à la dimension du micro canal.

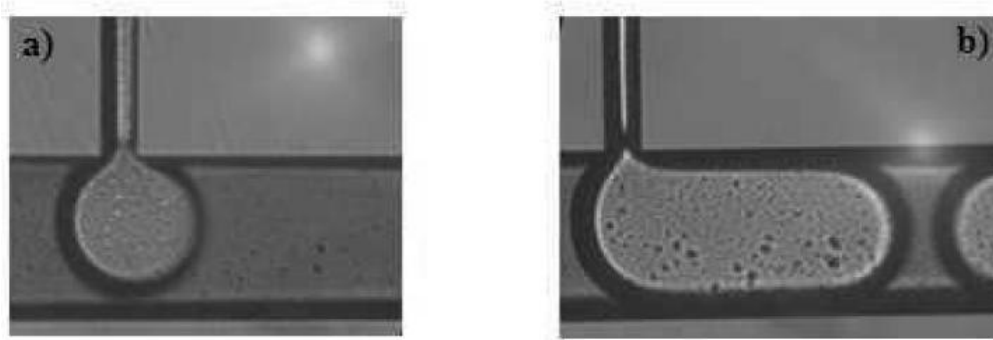


Fig.I.10. Écoulement en gouttelettes : a) gouttelette sphérique. b) gouttelette allongée ou bouchon [2].

I.11.2. Écoulement stratifié : deux fluides s'écoulent parallèlement l'un par rapport à l'autre.

I.11.3. Écoulement annulaire : un fluide s'écoule au milieu du canal et le deuxième s'écoule à proximité des parois [2].

I.12. Fractionnement liquide-liquide :

I.12.1. Différentes géométries en microfluidique :

Dans la microfluidique la géométrie joue un rôle important pour le contrôle de l'écoulement liquide-liquide. Dans cette partie les géométries les plus utilisées sont présentées. Ce sont les trois structures essentielles : géométrie en T (T jonction), flow focusing, co-courant (Co-flowing).

I.12.1.1. Écoulement en T (T-Jonction) :

Le micro canal en T est le plus utilisé en microfluidique, généralement on a deux types d'écoulement :

I.12.1.1.1. Écoulement croisé : la phase continue est produite dans le canal horizontal et la phase dispersée dans le canal perpendiculaire.

I.12.1.1.2. Écoulement perpendiculaire : contrairement à l'écoulement croisé, la phase continue est introduite dans le canal perpendiculaire et la phase dispersée est introduite dans le canal horizontal.

I.12.1.2. Écoulement focalisé ou écoulement par pincement (flow focusing) : cette structure est utilisée pour la génération des gouttelettes mono-dispersées sphériques.

Dans cet écoulement, la phase continue pénètre à travers les côtés du canal où elle rencontre la phase dispersée dans la zone de pincement et qui engendre ensuite la formation des gouttelettes sphériques.

I.12.1.3. Écoulement parallèle ou Co-courant : une phase dispersée est introduite par un tube capillaire ou une aiguille dans un co-courant de la phase continue [22].

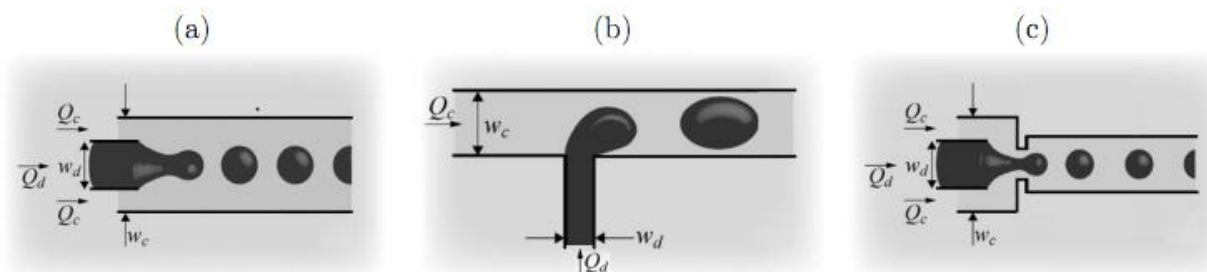


Figure I.11. Principales géométries considérées pour la formation des gouttes dans un micro canal. On distingue la géométrie à (a) écoulement parallèle (b) écoulement croisé (jonction en T) (c) écoulement focalisé (flow focusing) [23].

Une seconde classification est selon le mécanisme de formation des gouttes, trois mécanismes ont été décrits : compression (squeezing), égouttement (dripping), et jaillissement (jetting)

a) Compression : Ce régime d'écoulement est observé lorsque le nombre capillaire est très petit et la phase dispersée a une tendance à avoir une forme en bouchon.

b) Égouttement : Ce régime est produit lorsque le nombre capillaire augmente et observé à la sortie de croisement dans la T-Jonction, à la sortie du capillaire en Co-flowing et de l'orifice en flow-focusing.

c) Jaillissement : ce régime d'écoulement se produit lorsque le nombre capillaire est très grande c'est-à-dire la force de liquide introduit dépasse la force de tension de surface.

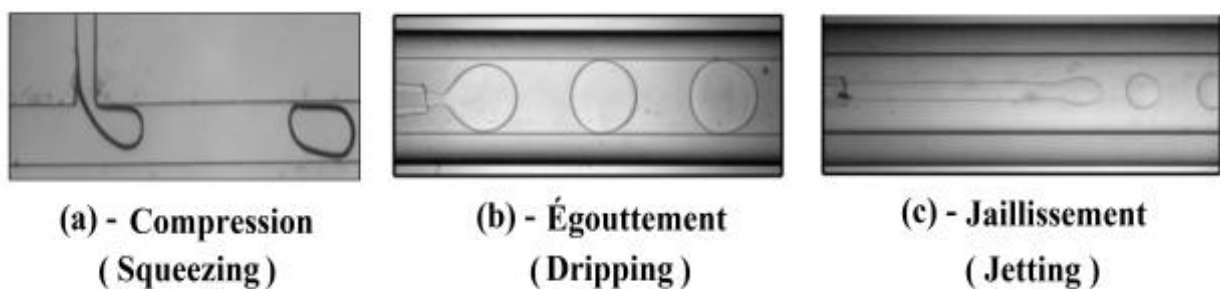


Fig.I.12 Mécanisme de formation des gouttes [3].

I.13. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons établi l'état de l'art dans le domaine des écoulements microfluidiques appliqués aux procédés servant à formuler des émulsions de manière contrôlée. Les notions de bases traitant du domaine de la microfluidique et des émulsions y sont largement récapitulées.

Ainsi, les types d'émulsions recensées, leur stabilité, le rôle des agents déstabilisants mais aussi les différents mécanismes de déstabilisation y sont discutés. Enfin, les différentes géométries formées à partir de conduits d'écoulement, appelés micro-canaux et conçues pour réaliser une émulsion y sont présentées.

Chapitre II :

Matériels Et Méthodes

Chapitre II: Matériels et Méthodes

II.1.Introduction :

Dans ce chapitre, nous décrivons avec plus de précision le dispositif expérimental (banc d'emulsification) la méthodologie et l'appareillage utilisé pour la préparation d'une émulsion simple (eau/huile) sans adjonction d'un tensioactif.

II.2.Matériels :

II .2.1.Équipements de préparation

II .2.1.1. La verrerie :

La préparation de l'émulsion a nécessité :

Une éprouvette graduée de 50 ml avec une précision de $[\pm 1.0]$ et un bécher gradué de 10ml avec une précision de $[\pm 1]$ (voir les figure Fig.II.1 et Fig.II.2).



Fig.II.1. Epreuve



Fig.II.2. Becher

II.2.1.2 La balance :

Une balance de marque KERN PCB a été utilisée pour la mesure de la masse volumique des liquides utilisés (voir la figure Fig.II.3).



Fig.II.3 : Une Balance Electronique

II.2.1.3. Le Viscosimètre :

Un viscosimètre de type **BROOKFIELD ENGINEERING LABORATORIES, INC** nous a permis de mesurer la valeur de la viscosité (voir la figure Fig.II.4).

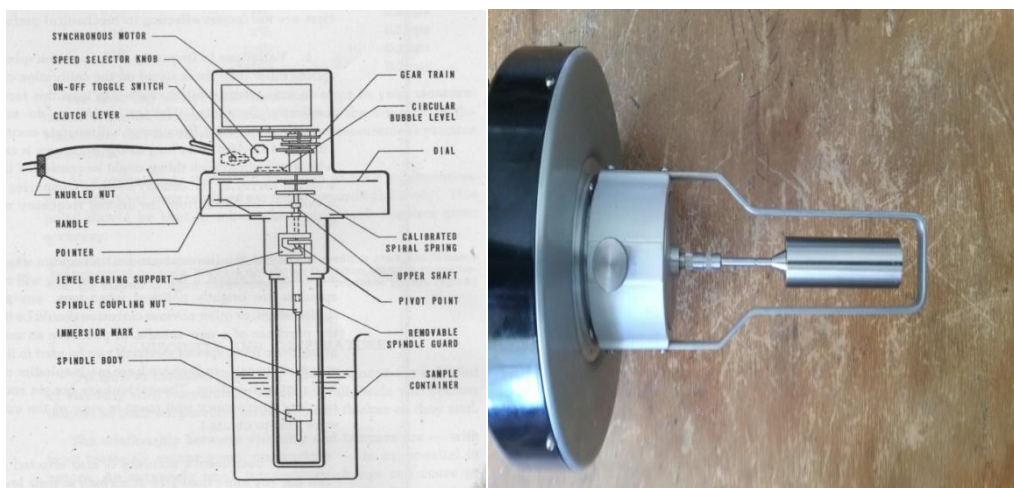


Fig.II.4 : le viscosimètre.

II.2.1.4. Banc d'émulsification : L'installation a été conçue afin d'étudier la production d'émulsions e/h dans les micro-canaux (voir la figure Fig.II.5).

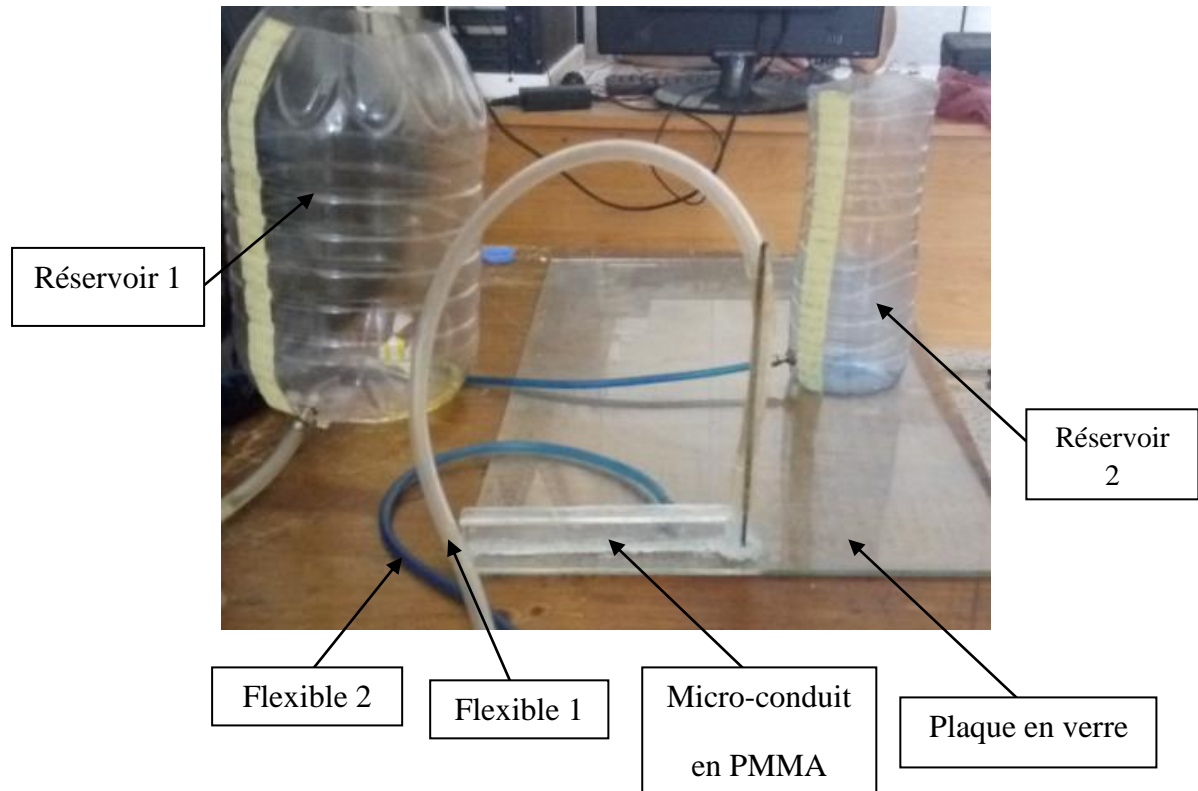


Fig.II.5 : Vue globale du dispositif micro-fluidique destiné à l'émulsification eau dans huile.

Pour la fabrication de ce dispositif d'émulsification, nous avons utilisé le matériel suivant :

- a) **un micro conduit** : Il est de forme parallélépipédique de largeur 150mm de hauteur 5mm et de profondeur 3mm ($150 * 5 * 0.3\text{mm}$) formé de deux plaques de PMMA.



Fig.II.6. Vue détaillée du canal d'écoulement micro-fluidique.

Le PMMA (polyméthylméthacrylate) : connu sous son nom commercial plexiglas, le plexiglas est un polymère thermoplastique transparent qui fut fabriqué pour la première fois

en 1933 et vendu sous plusieurs noms tels que : perspex, cristallite, lucite ou encore Altuglas. Il a été choisi pour servir de support à nos expériences de microfluidique pour deux raisons majeures : pour sa tension de surface faible ($\gamma = 41,1\text{mN/m}$) en comparaison avec celle de verre ($\gamma = 1200 \text{ mN/m}$), ce qui favorise la production de l'émulsion et aussi les propriétés optiques permettant des observations des écoulements à l'aide d'une camera ou d'un appareil photographique [3,25].

Le PMMA est un matériau robuste et léger, de densité de $1,15\text{-}1,19\text{g/cm}^3$; il résiste bien aux chocs.

- Il filtre la lumière ultra-violette au-dessous de 300nm.
 - Il transmet plus de 93% de la lumière.
 - PMMA a une stabilité environnementale supérieure en comparaison avec d'autres matériaux plastiques.
 - Il a une compatibilité avec une immense variété de polymères [25].
- b) **Le réservoir(1)** : une bouteille en plastique de 5L graduée à 200 ml qui sert de réservoir d'huile.
- c) **Le réservoir (2)** : une bouteille en plastique de 1.5L graduée à 50 ml qui sert de réservoir d'eau.
- d) **Les flexibles** : Deux tuyaux transparents l'un a pour diamètre (intérieur, extérieur) (9mm, 14mm) et l'autre (6mm, 12mm).

Respectivement, Le premier tuyau est une conduite d'huile et le deuxième tuyau est une conduite d'eau.

- e) **La plaque de verre** : elle a été utilisée comme support du dispositif.
- f) **La seringue** : de diamètre 0.3 mm, elle a été utilisée comme conduite de faible diamètre pour la circulation d'eau (voir la figure Fig.III.7).



Figure II.7 : Seringue.

II.2.2. Matières premières

II.2.2.1. Phase aqueuse :

Cette phase comporte :

- ✓ De l'eau de robinet fournie par l'ADE de la willaya de Tizi Ouzou.
- ✓ Du bleu de Méthylène : Ce dernier est un produit pharmaceutique connu composé de bleu de méthylène et de l'eau traitée [24].

II.2.2.1.1. Caractéristiques de Bleu de Méthylène : chlorure de methythioninium est un composé organique synthétisé la première fois par Heinrich Caro en 1876. Ce dernier est un fluide de couleur bleu foncé utilisé comme colorant pour faciliter la visualisation des gouttelettes [24].

II.2.2.2. Phase huileuse :

L'huile utilisée est une huile alimentaire commerciale constituée d'un mélange d'huile de tournesol et de soja. Cette huile contient des lipides qui sont insolubles dans l'eau.

II.2.3. Photographie et camera :

Pour la prise des photos, un téléphone de marque condor Allure A8 d'une résolution 13 méga pixels a été utilisé et les images prises par ce dernier ont été traitées avec un logiciel **imageJ**.

II.3. ImageJ :

C'est un logiciel libre multiplateforme, il a été développé par l'institut national de santé (National Institute of Health) pour l'analyse de l'image médicale, imageJ peut réaliser la plupart des opérations de traitement d'images tels que la visualisation et correction des contours, détection des contours, seuillage (situer les valeurs destinées à séparer des classes). [27]

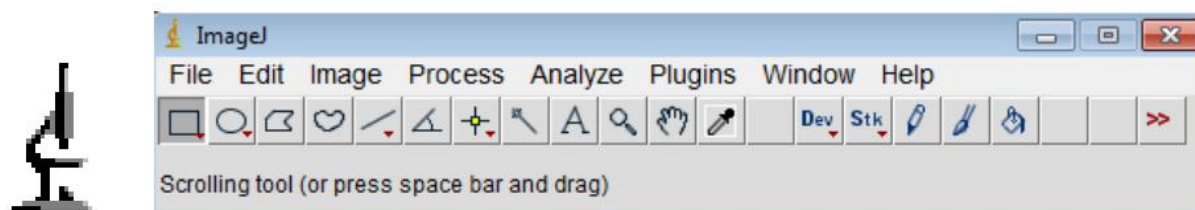


Fig.II.8: Interface d'imageJ

II.3.1. Caractéristique d'ImageJ :

ImageJ est un logiciel multifonction qui peut visualiser, éditer, traiter et analyser des images en 8, 16, et 32bits.

1. C'est un logiciel libre (son code source peut être modifié).
2. C'est un logiciel multiplateforme (il est encodé en JAVA et permet l'ajout des fonctionnalités via plugin et macros).
3. ImageJ est un logiciel capable d'ouvrir et d'enregistrer des images sous nombreux formats (TIFF, PNG, GIF, JPEG, FITS) et même sous formes brute (RAW) [27].

II.4. Simulation :

La modélisation de cette expérience a été faite par COMSOL MULTIPHYSICS[®] version 5.2

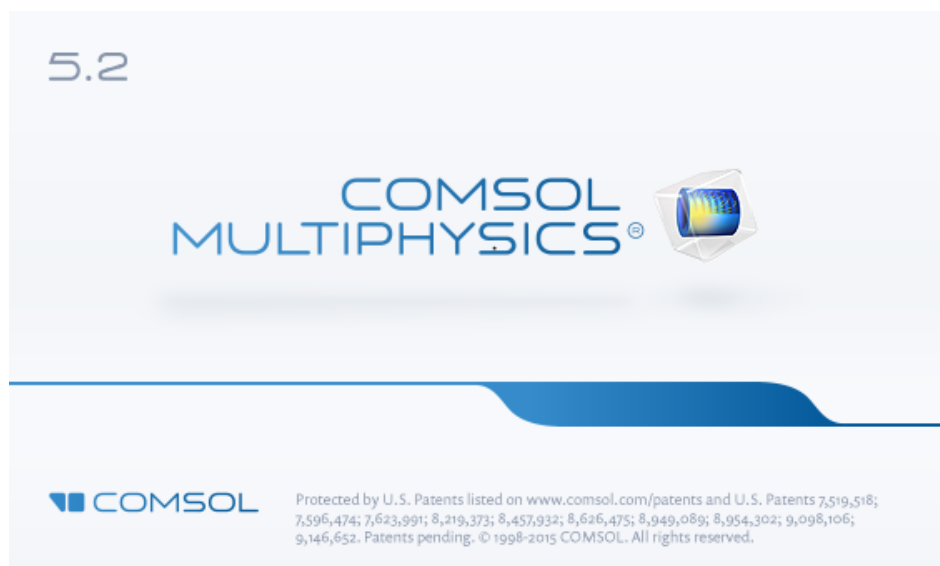


Fig.II.9: Interface de COMSOL.

II.4.1. Caractéristique de COMSOL :

C'est un logiciel de simulation numérique basé sur la méthode des éléments finis. Ce dernier permet de simuler des phénomènes couplés ou simulation multi-physiques [28].

II.5. Protocole d'émulsification :

L'émulsion a été préparée en mélangeant une phase continue (l'huile de tournesol et l'huile de soja) et une phase dispersée (l'eau) sans ajout d'agents stabilisants. L'écoulement a

eu lieu à travers un micro canal où des gouttelettes se sont formées. Nous avons divisé notre étude en deux parties (manipulation)

En variant les différents débits nous avons obtenu des diamètres différents, cités dans le chapitre qui suit.

II.6.Méthodes :

II.6.1.Mesure de viscosité :

La mesure de la viscosité des fluides employés dans l'expérience a été faite par un **Viscosimètre rotatif** ou **viscosimètre de Couette**.

Un récipient cylindrique tourne autour de son axe de rotation. Il contient le liquide visqueux et un cylindre plein. Ce cylindre, mobile sur son axe de rotation, est entraîné par le fluide. Cependant un ressort fixé sur ce cylindre le tient en équilibre.

On montre que la viscosité dynamique μ est proportionnelle à l'angle de rotation :

$$\mu = L * F \quad (\text{II.1})$$

μ : viscosité dynamique de fluide en centpoise ou mPa.s.

L : lecture donnée par le curseur.

F : facteur caractérisant chaque vitesse de rotation de la tige.

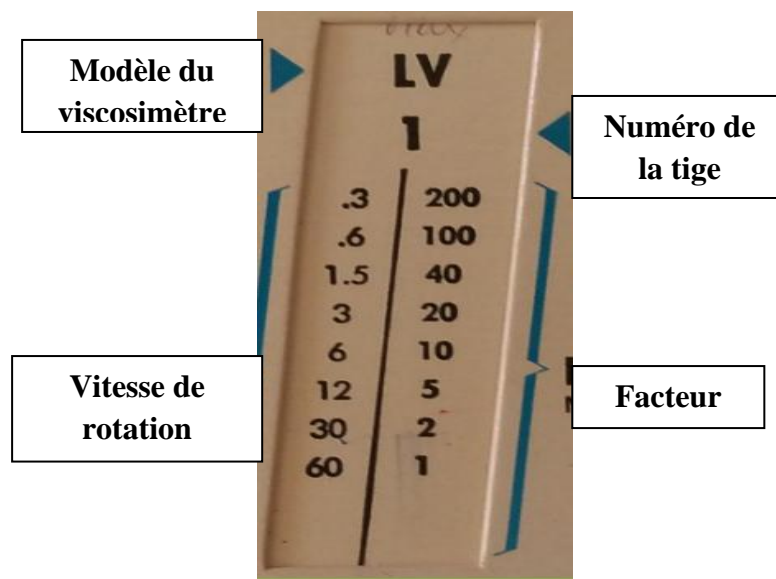


Fig.II.10 : Règle de lecture de la viscosité.

II.6.1.1. La procédure de mesure de la viscosité :

D'abord, nous avons pris la tige numéro1 (spindel1) du viscosimètre de type LV, on place le viscosimètre dans son support, on règle sa vitesse de rotation. Après ce réglage, la valeur de facteur « F » est déterminée. Nous avons fait une lecture du curseur et extrait sa valeur « L », enfin, la viscosité dynamique μ a été déterminée en appliquant la loi ci-dessous :

$$\mu = F * L$$

II.6.2.calcul du débit :

La mesure du débit dans cette émulsion e/h est obtenue par la relation suivante :

$$Q = \frac{1 \Delta m}{\rho \Delta t} \quad (\text{III.2})$$

Q : débit volumique.

ρ : masse volumique.

Δm : variation de la masse

Δt : variation de l'unité du temps.

II.6.3. Calcul de la pression :

La pression est calculée par l'application de l'équation de Bernoulli :

$$P = \rho g z + P_{atm} \quad (\text{II.3})$$

P : pression.

g: gravité terrestre.

z : hauteur.

P_{atm} : pression atmosphérique.

Dans notre expérience, nous avons calculé la pression relative, donc nous avons l'expression ci-dessous :

$$P = \rho g z \quad (\text{II.4})$$

II.6.3.1. Procédure de calcul des pressions :

Nous avons réalisé deux manipulations. Dans la première, nous avons laissé la hauteur de la phase aqueuse constante ($z_e = 88,3$ cm) et nous avons fait varier la hauteur de la phase

huileuse et dans la deuxième nous avons pris la hauteur de la phase huileuse constante ($z_h = 73,5\text{cm}$) et celle de la phase aqueuse est variée.

La relation utilisée dans nos manipulations est celle faisant appel à la pression relative citée ci-dessus.

II.6.4. Mesure du diamètre des gouttes :

Le logiciel utilisé pour la détermination de la granulométrie des émulsions est imageJ.

La procédure de mesure de la granulométrie :

La mesure débute en prélevant un échantillon d'émulsion à l'aide d'une règle à la sortie du micro canal, cet échantillon est ensuite présenté devant le capteur de caméra d'un téléphone condor ou une photo a été prise et ensuite analysée par ImageJ.

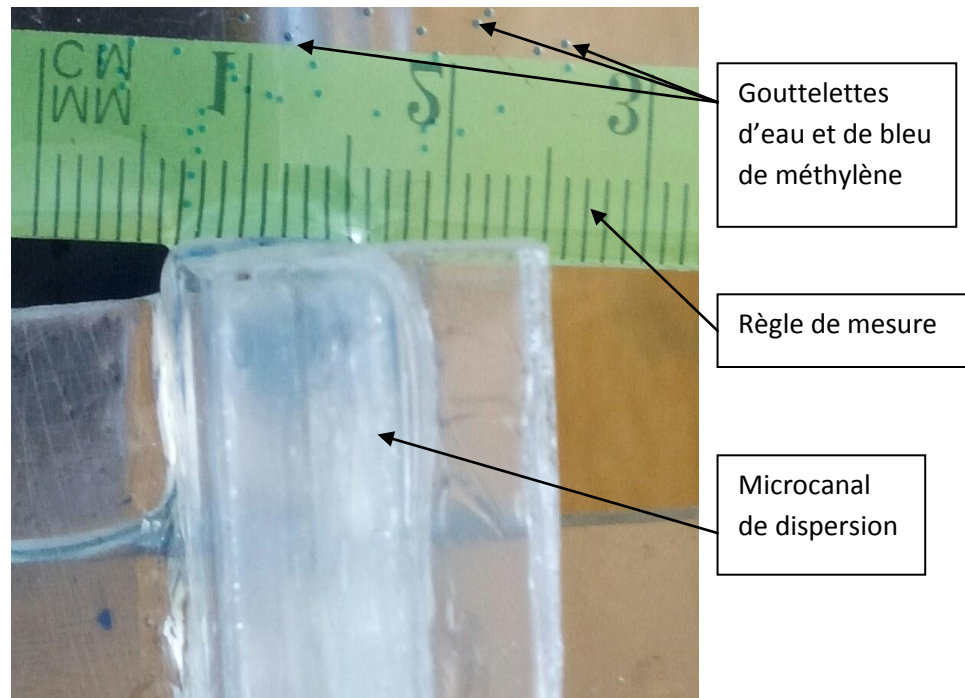


Fig.II.11 : Image représentant la méthode de mesure du diamètre des gouttelettes.

- Etape d'analyse sous imageJ :
 - Dénumbrer les particules.
 - Evaluer leurs ratios d'aspect.
 - Mesurer diverses grandeurs (distances, surfaces).
 - Extraire des coordonnées de contours.
 - Obtention des résultats sous forme d'une feuille de calcul EXCEL.

- Le calcul du diamètre de chaque gouttelette se fait soit en passant par la formule de la surface :

$$S = \pi \frac{D^2}{4} \quad (\text{II.5})$$

Avec :

$$D = \sqrt{\frac{4*S}{\pi}} \quad (\text{II.6})$$

Ou bien la formule du périmètre :

$$P_{er} = \pi D \quad (\text{II.7})$$

D'où

$$D = \frac{P_{er}}{\pi} \quad (\text{II.8})$$

II.7.Conclusion :

Dans ce chapitre, nous avons commencé par décrire l'appareillage employé tout au long du travail expérimental (verrerie, viscosimètre, balance), ainsi que les matières premières (huile de tournesol et eau du robinet).

Ensuite, nous avons décrit le protocole d'émulsification employé et les procédures utilisées pour la mesure des conditions opératoires durant l'émulsification à savoir le débit, la pression, la viscosité et la masse volumique des fluides utilisés.

La mesure des diamètres des gouttelettes formées lors de l'émulsion a été établie à l'aide d'un logiciel dit imageJ dont nous avons décrit les caractéristiques et la procédure de mesure.

Pour le calcul du diamètre des gouttelettes, nous avons utilisé deux formules mathématiques.

Les résultats obtenus sont présentés et discutés dans le prochain chapitre.

Chapitre III :
Résultats Expérimentaux Et
Discussion

Chapitre III :**Résultats Expérimentaux et Discussion****III.1. Introduction :**

L'objectif de cette étude est la génération des gouttelettes en employant un système microfluidique dont les canaux forment un T (T-Junction). Pour ce faire, un dispositif d'émulsification (banc d'émulsification) a été conçu et deux séries d'essais ont été effectués à travers ce dispositif.

III.2. Calcule de la masse volumique :

Pour le calcul de la masse volumique nous avons utilisé la balance électronique mentionnée dans le chapitre intitulé « matériel et méthodes ».

Nous avons pris un volume d'huile mesuré puis nous l'avons pesé sur une balance. La formule ci-dessous permet de calculer la masse volumique:

$$\rho = \frac{m}{v} \quad \text{(III.1)}$$

Après l'application numérique, nous avons obtenu :

$$\rho_h = 936 \text{ kg/m}^3$$

Remarque : ce résultat est utilisé dans la suite de ce chapitre.

III.3. Mesure de la viscosité dynamique :

La viscosité est un paramètre important dans l'évaluation de la stabilité rhéologique de l'émulsion; sa mesure s'avère très importante pour le suivi et le contrôle de cette dernière ; sa mesure a été faite à l'aide d'un viscosimètre (Figure III.2.). Une première lecture sur l'appareil employé permet de relever le facteur « L ». Pour une vitesse de rotation déterminée on trouve sur la réglette de la figure III.7. Le facteur « F ». Enfin, le calcul de la viscosité se fait selon la formule suivante :

$$\mu = L * F \quad \text{(III.2)}$$

Sachant que nous avons utilisé la tige (spindle) n°1(LV1), et les mesures ont été effectués pour les conditions suivantes :

- Température T=30°C ;
- Vitesse de rotation de la tige (spindle) est de 30 tours par minute ;

- Pour une vitesse de rotation 30tr/mn, nous avons : $F=2$

III.3.1. La viscosité de l'eau :

Pour l'eau, nous avons lu sur l'écran une constante appelée L qui est égale à 1,5. La viscosité de l'eau sera calculée en multipliant les deux constantes L et F comme suit :

$$\mu_e = L * F = 1,5 * 2 = 3 \text{ mPa.s} = 3 \cdot 10^{-3} \text{ Pa.s}$$

$$\mu_e = 3 \cdot 10^{-3} \text{ Pa.s}$$

III.3.2. La viscosité du mélange eau-bleu de méthylène :

Pour ce mélange, nous avons lu : $L=1,5$. La viscosité dynamique s'écrit alors :

$$\mu_{e+m} = L * F = 1,5 * 2 = 3 \text{ mPa.s} = 3 \cdot 10^{-3} \text{ Pa.s}$$

$$\mu_{e+m} = 3 \cdot 10^{-3} \text{ Pa.s}$$

N.B. : le bleu de méthylène n'a pas eu d'influence sur la viscosité de l'eau.

III.3.3. La viscosité de l'huile :

Pour la mesure de la viscosité de l'huile, les mêmes conditions expérimentales que cités ci-avant ont été appliquées, nous avons lu : $L=22,25$. La viscosité dynamique s'écrit alors :

$$\mu = L * F = 22,25 * 2 = 44,5 \text{ mPa.s} = 44,5 \cdot 10^{-3} \text{ Pa.s}$$

$$\mu_h = 44,5 \cdot 10^{-3} \text{ Pa.s}$$

III.4. Calcul de la fraction volumique :

La fraction volumique de l'eau est le pourcentage de l'eau par rapport à l'huile. Celle-ci est calculée à l'aide de la formule suivante :

$$\varphi_e = \frac{Q_e}{Q_e + Q_h} \quad (\text{III.3})$$

Avec : φ_e : fraction volumique de l'eau.

Q_e : débit de l'eau.

Q_h : débit de l'huile.

III.5. Calcul du nombre de Reynolds :

$$\text{Re} = \frac{\rho_d v_m d_g}{\mu_c} \quad (\text{III.4})$$

Avec :

- ρ_d : étant la masse volumique de la phase dispersée en l'occurrence ici c'est l'eau [kg/m³].
- v_m : étant la vitesse moyenne de l'émulsion [m/s].
- d_g : diamètre moyen de dispersion de l'eau [m].
- μ_c : viscosité dynamique de la phase continue en l'occurrence ici l'huile [Pa.s].

III.6. La vitesse moyenne de l'émulsion (v_m) :

La vitesse moyenne de l'émulsion se calcul suivant l'équation ci-dessous :

$$v_m = \frac{Q_e + Q_h}{2 * S_h} \quad (\text{III.5})$$

Avec :

- Q_e : débit de la phase aqueuse (eau) [m³/s].
- Q_h : débit de la phase huileuse (huile) [m³/s].
- S_h : étant la section de passage de l'huile [m²].

III.6.1. Calcul de la section de passage de l'huile (S_h) :

$$S_h = a * b \quad (\text{III.6})$$

Avec :

- a : profondeur de la conduite d'huile qui est de 0,23 mm.
- b : la hauteur de la conduite d'huile qui est de 15 mm.

Donc : $S_h = 0,230 * 15 = 3,45$

$$S_h = 3,45 \text{ mm}^2$$

III.7. Tests expérimentaux**III.7.1. Série N°1 :**

Les expériences dans cette série N°1 ont été effectuées à travers un micro-canal en T (T-Junction micro-Channel) et à une hauteur fixe pour la phase dispersée (eau) ($z_e=88,3\text{cm}$) et avec des valeurs de viscosité fixe pour la phase continue et la phase dispersée et qui sont respectivement $\mu_h=44,5.10^{-3}\text{Pa.s}$; $\mu_e=3.10^{-3}\text{Pa.s}$.

| | T [min] | Z_H [cm] | V_g [m/s] | $(P_e ; P_h)$ [Pa] | $\frac{p_h}{P_e}$ | $(Q_{ve} ; Q_{vh})$ [ml/min] | $\frac{Q_{ve}}{Q_{vh}}$ | D_g [μm] | ϕ_e % |
|---------------------|--------------|---------------|----------------|-----------------------|-------------------|---------------------------------|-------------------------|----------------------------|---------------|
| Expérience 1 | 33,5 | 35,6 | $1,34.10^{-2}$ | (8653,6 ; 3268,8) | 0,34 | (0,42 ; 6,27) | 0,07 | 1246 | 6,3 |
| Expérience 2 | 20,1 | 59,1 | $1,49.10^{-2}$ | (8653,6 ; 5426,6) | 0,63 | (0,497 ; 9,94) | 0,05 | 516 | 4,7 |
| Expérience 3 | 17,4 | 65,5 | $2,05.10^{-2}$ | (8653,6 ; 6014,3) | 0,67 | (0,34 ; 11,5) | 0,03 | 492 | 2,9 |
| Expérience 4 | 15,7 | 67,4 | $2,52.10^{-2}$ | (8653,6 ; 6188,7) | 0,72 | (0,32 ; 12,74) | 0,03 | 455 | 2,0 |
| Expérience 5 | 14,2 | 74,8 | $3,18.10^{-2}$ | (8653,6 ; 6868,3) | 0,79 | (0,22 ; 14,1) | 0,02 | 243 | 1,5 |

Tableau N°1 : Tableau récapitulatif des résultats obtenus lors de la série d'essai n° 1

| | V_m [m/s] | Re |
|---------------------|----------------|----------------|
| Expérience 1 | $1,62.10^{-2}$ | $4,52.10^{-1}$ |
| Expérience 2 | $2,52.10^{-2}$ | $2,52.10^{-1}$ |
| Expérience 3 | $2,86.10^{-2}$ | $3,15.10^{-1}$ |
| Expérience 4 | $3,15.10^{-2}$ | $3,22.10^{-1}$ |
| Expérience 5 | $3,46.10^{-2}$ | $1,88.10^{-1}$ |

Tableau n°2 : Tableau récapitulatif des résultats obtenus lors du calcul du nombre de Reynolds

Le tableau n°1 représente une synthèse des résultats obtenus lors de la série d'essais n°1, il contient 5 expériences dont nous avons calculé les différents paramètres tels que les pressions d'entrée de la phase huileuse P_h , et celle de la phase aqueuse P_e , les débits des deux phases Q_h et Q_e , la fraction volumique de l'eau dans chaque expérience ainsi que le diamètre des gouttelettes obtenues.

Le tableau n°2 représente les résultats du calcul de la vitesse moyenne ainsi que le nombre de Reynolds.

III.7.2. Influence des paramètres sur le diamètre des gouttelettes :

III.7.2.1. La pression :

En faisant varier la pression de la phase huileuse de 2093 à 6868 Pa et en maintenant la pression de la phase aqueuse constante $P_e = 8653$ Pa, on constate une diminution dans la taille des gouttelettes et cela est vrai tout au long de nos expériences et qui est clairement montré dans la Fig.IV.1.

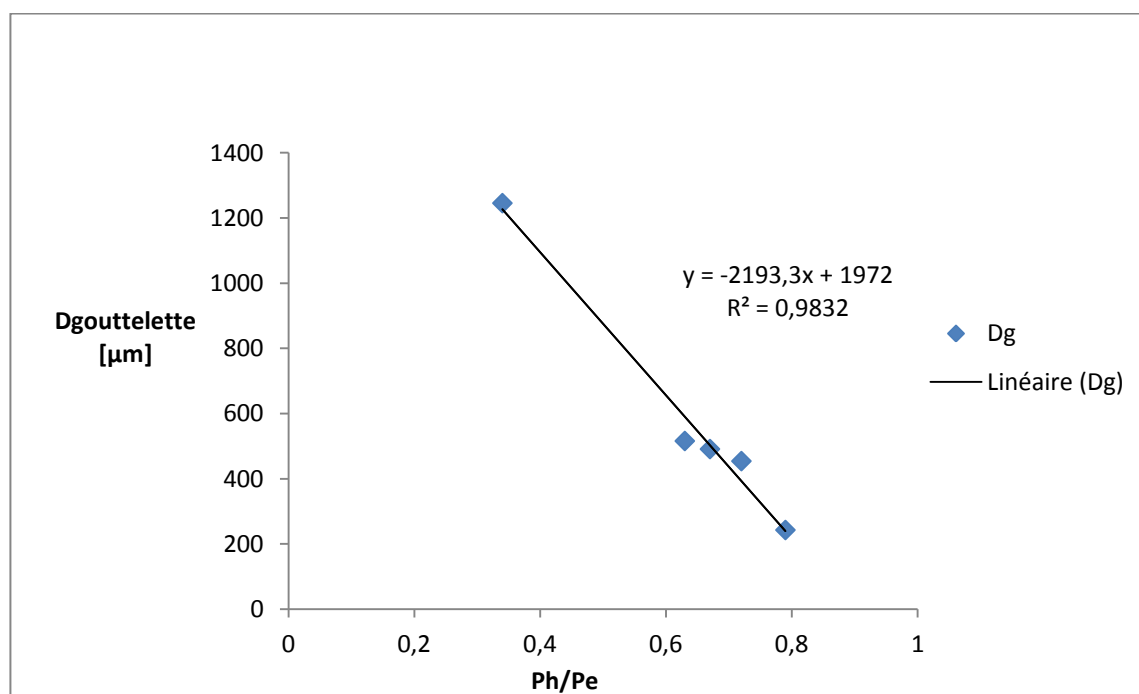


Fig.III.1 : Influence de la pression d'huile sur le diamètre des gouttelettes.

III.7.2.2. Le débit :

Pour un débit de la phase continue (huile) variant de 3,608 ml/min à 14,1ml/min et pour un débit de la phase dispersée (eau) diminuant de 0,497ml/min à 0,2 ml/min, nous avons constaté une décroissance dans la taille des gouttelettes, et cela est bien expliqué par la loi de cisaillement citée en dessous.

Lors de l'interaction entre les deux phases (continue et dispersée), l'augmentation du débit de la phase continue est proportionnelle à la vitesse d'écoulement de cette dernière. Ce

qui engendre une force de cisaillement plus importante et par conséquent une diminution de la taille des gouttelettes.

a) Loi de cisaillement (force de cisaillement) :

La contrainte de cisaillement τ entre les couches d'un fluide s'écoulant sur une paroi fixe, est proportionnelle au gradient de vitesse $\frac{\partial v}{\partial y}$ dans la direction perpendiculaire aux couches : [7]

$$\tau = \mu \left(\frac{\partial v}{\partial y} \right) \quad (\text{III.7})$$

Avec τ : contrainte de cisaillement [N/m^2].

μ : viscosité dynamique du fluide [Pa.s].

$\frac{\partial v}{\partial y}$: Gradient de vitesse.

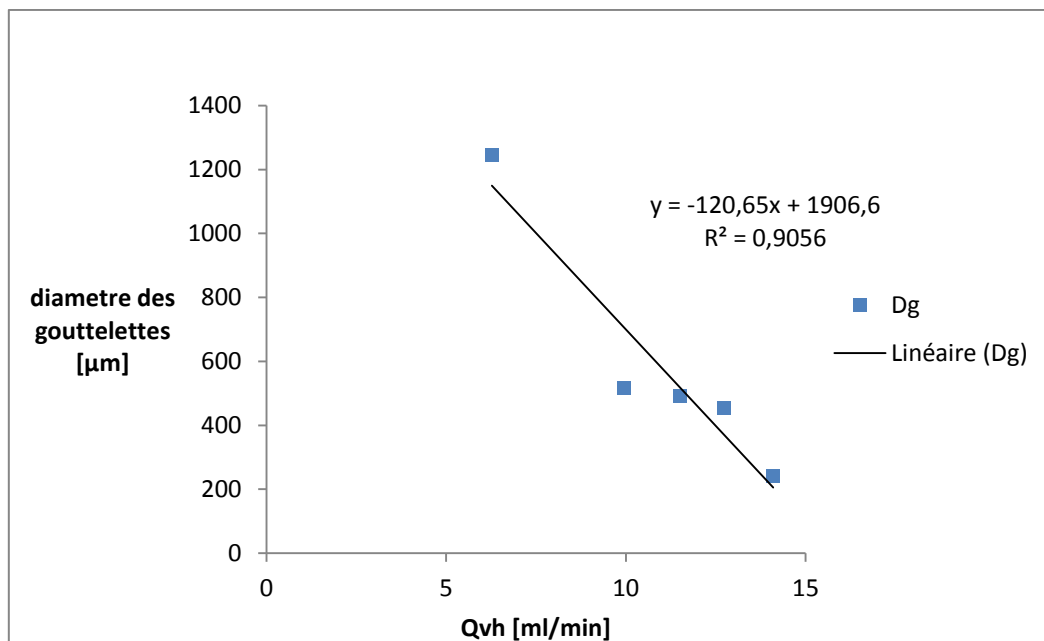


Fig.III.2 : Influence du débit sur le diamètre des gouttelettes

III.7.2.3. La fraction volumique :

En augmentant le débit de la phase continue (huile), la fraction de la phase dispersée (eau) décroît, passant de 7% à 1,5%. La figure III.3 illustre clairement que le diamètre des gouttelettes décroît avec la diminution de la fraction volumique d'eau et se dirige vers plus de stabilité.

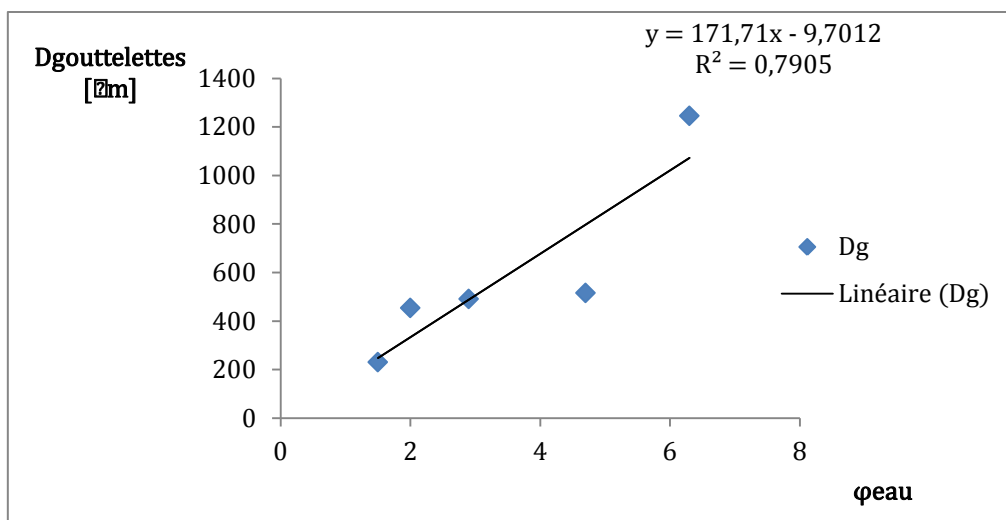


Fig.III.3 : Influence de la fraction volumique de l'eau sur la taille des gouttelettes

III.7.3.Série N°2 :

Les expériences dans cette série n°2 ont été effectuées à travers un microcanal en T (T-Junction). Comme la première est à une hauteur fixe pour la phase continue (huile) ($z_c=73,5cm$) et avec des valeurs de viscosité fixe pour la phase continue et la phase dispersée et qui sont respectivement $\mu_h=44,5.10^{-3}Pa.s$; $\mu_e=3.10^{-3}Pa.s$.

| | Temps [mn] | Z_c [cm] | V_g [m/s] | (P_h, P_e) [Pa] | $\frac{p_{eau}}{P_{huile}}$ | $(Q_{ve} ; Q_{vh})$ [ml/min] | $\frac{Q_{vh}}{Q_{ve}}$ | D_g [μm] | ϕ_{eau} % |
|---------------------|---------------|---------------|----------------|----------------------|-----------------------------|---------------------------------|-------------------------|----------------------|-------------------|
| Expérience 1 | 32,02 | 73,5 | $1,4.10^{-2}$ | (5435,8 ; 7203,1) | 1,33 | (0,031 ; 10,24) | 328,21 | 581 | 0,30 |
| Expérience 2 | 30,85 | 75,5 | $1,68.10^{-2}$ | (5435,8 ; 7418,74) | 1,36 | (0,033 ; 10,26) | 313,76 | 489 | 0,32 |
| Expérience 3 | 30,38 | 89,1 | $1,69.10^{-2}$ | (5435,8 ; 8731,9) | 1,61 | (0,033 ; 11,49) | 349,08 | 377 | 0,29 |

Tableau n°3 : Tableau récapitulatif des expériences menées lors de la série d'essai n°2.

| | V_m [m/s] | Re |
|---------------------|-----------------|-----------------|
| Expérience 1 | $2,477.10^{-2}$ | $3,232.10^{-1}$ |
| Expérience 2 | $2,506.10^{-2}$ | $2,752.10^{-1}$ |
| Expérience 3 | $2,781.10^{-2}$ | $2,355.10^{-1}$ |

Tableau n°4 : Tableau récapitulatif des résultats obtenus lors du calcul du nombre de Reynolds.

III.7.4. Etude de l'influence des conditions opératoires sur la formation des gouttelettes :

III.7.4.1. La pression :

Pour cette expérience, la pression d'huile est maintenue constante ($P_h=5436\text{Pa}$). En revanche, la pression d'eau augmente de 7203 Pa à 8732 Pa. On constate une diminution dans le diamètre des gouttelettes.

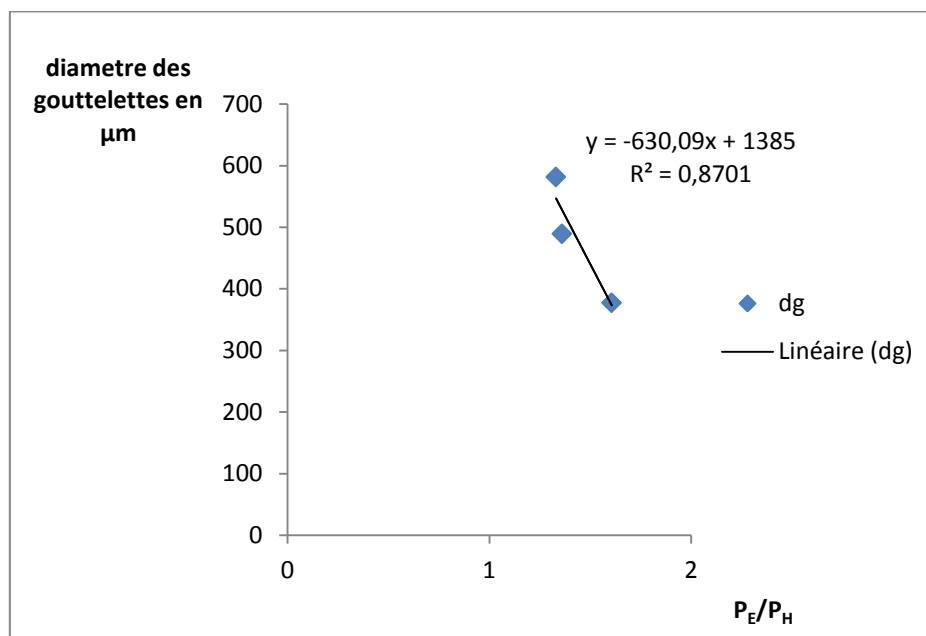


Fig.III.4. Influence de la pression sur le diamètre des gouttelettes

La figure ci-dessous montre clairement qu'avec l'augmentation du rapport des pressions eau/huile de 1,3 à 1,6, le diamètre des gouttelettes formées diminue de 581 μm à 377 μm .

III.7.4.2. Le débit :

Pour un débit d'eau très petit variant de 0,031 ml/min à 0,033 ml/min et pour un débit d'huile variant de $10 \pm 0,4$ ml/s on remarque une diminution dans le diamètre des gouttelettes.

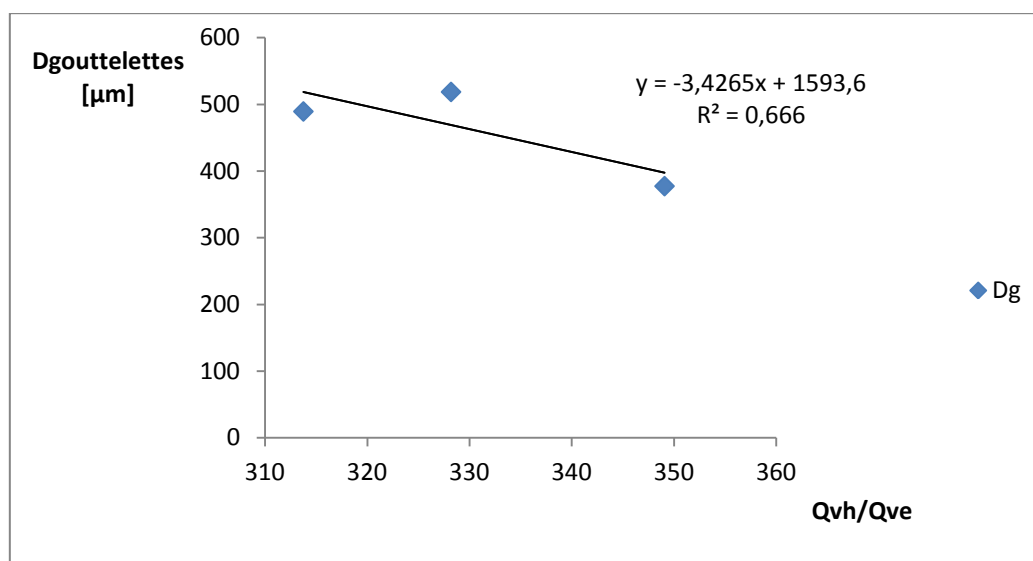


Fig.III.5. Influence du rapport de débits $\left(\frac{Q_{vh}}{Q_{ve}}\right)$ sur le diamètre des gouttelettes (D_g).

La Fig.III.5 montre clairement qu'avec l'augmentation des rapports des débits huile-eau de 328,2 à 349,1 ml/min une diminution dans le diamètre des gouttelettes est constatée et cela est dû à l'augmentation de l'effet des forces de cisaillement.

III.7.4.3. La fraction volumique :

Pour une augmentation du débit de la phase continue de 10,24 ml/min à 11,49 ml/min, et pour une faible augmentation du débit de la phase dispersée de 0.031 ml/min à 0.033 ml/min, nous constatons une augmentation de la fraction volumique de l'eau (phase dispersée) de 0.3% jusqu'à 0.32%, puis une diminution pour atteindre 0.29%. Par conséquent, le diamètre des gouttelettes diminue de 581 μm à 377 μm .

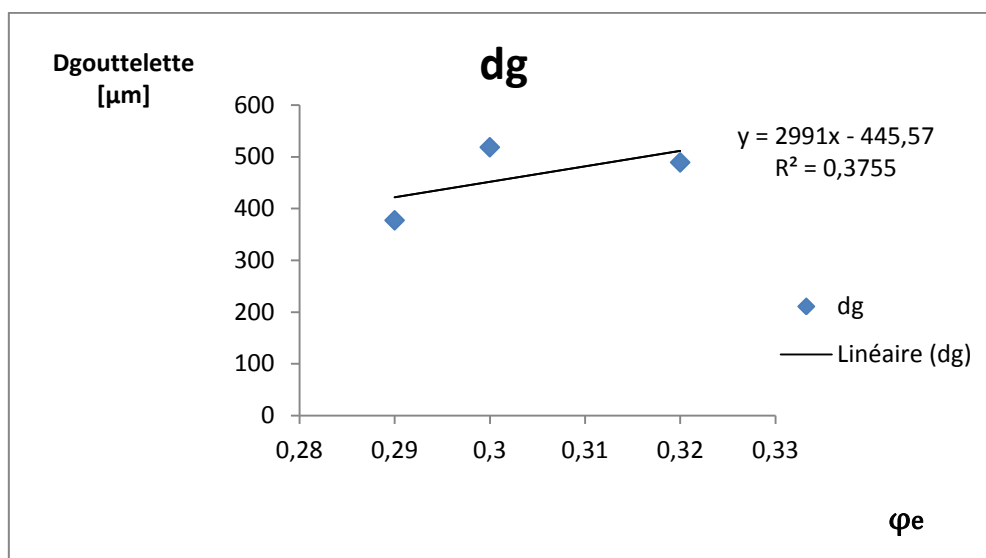


Fig.III.6 Influence de la fraction volumique sur la taille des gouttelettes.

La Fig.III.6 ci-dessus montre qu'avec l'augmentation de la fraction volumique de la phase dispersée (eau), une diminution de diamètre des gouttelettes est observée.

III.8. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié l'influence de quelques paramètres expérimentaux et les propriétés rhéologiques (viscosité) des fluides utilisés sur la granulométrie. Ainsi, nous avons bien constaté qu'avec l'augmentation du débit de la phase continue, en maintenant le débit de la phase dispersée (eau) constant, la taille des gouttelettes diminue, et avec l'augmentation du débit de la phase dispersée (eau) et en maintenant le débit de la phase continue (huile), la taille des gouttelettes diminue aussi.

Nous avons vu le rôle important exercé par la viscosité de la phase continue sur la phase dispersée et qui est bien expliqué par la loi de force de cisaillement.

À partir du nombre de Reynolds qui est très petit c'est -à-dire $Re < 1$ nous pouvons conclure que l'écoulement dans notre expérience est un écoulement laminaire rampant.

Chapitre IV :
Modélisation Numérique Sous
COMSOL Multiphysics

Chapitre IV :**Modélisation Numérique****IV.1.Introduction :**

La résolution des équations qui décrivent les phénomènes physiques, liés à l'écoulement du fluide, défini dans le chapitre précédent, ne peut pas toujours se faire analytiquement. Par conséquent, une approche numérique qui transforme ces équations sous formes d'un système algébrique est indispensable. Pour cela, nous avons recouru à un logiciel de simulation dit COMSOL Multiphysics[®]. Les résultats obtenus par notre code de calcul seront confrontés aux résultats expérimentaux présentés dans le chapitre III.

Il est à noter que certains paramètres, utilisés dans le programme de calcul, sont tirés à partir de l'expérience (tension interfaciale).

IV.2. Présentation du logiciel de modélisation COMSOL Multiphysics[®] :

COMSOL est un logiciel qui s'exécute sous plusieurs plateformes telles que Windows, Mac, linux.

Sa première apparition fut en 1925 sous le nom FEMLAB, développé par les étudiants de Germund Dahlquist à Royal Institute of Technology de Stockholm [29].

IV.2.1. Module de COMSOL Multiphysics[®] :

Ce logiciel contient 25 modules illustrés dans la figure IV.1. La case encadrée en rouge est le module employé dans le présent travail de modélisation.



Fig.IV.1 : Module de COMSOL Multiphysics® [29].

IV.2.2. Les équations qui gouvernent le processus du fractionnement liquide/liquide (émulsification) :

IV.2.2.1. Equation de Navier Stokes :

Les équations de Navier stokes interprètent le principe de conservation de la quantité de mouvement (2^{ème} loi de newton) c'est-à-dire le taux de variation de la quantité de mouvement, contenu dans le volume de contrôle est égal à la somme de toutes les forces extérieures, qui lui sont appliquées.

La formule mathématique de cette équation est :

$$\rho \frac{D\vec{v}}{Dt} = \vec{f}_{vol} - \overrightarrow{gradP} + \mu \Delta \vec{v} \quad (V.1a)$$

Avec ρ : masse volumique.

\vec{v} : vitesse.

\vec{f}_{vol} : Force volumique.

μ : viscosité dynamique.

P : Pression.

La formule donnée par le logiciel est :

$$\rho \frac{\partial v}{\partial t} + (v \cdot \nabla)v = \nabla[-pI + v(\nabla v + (\nabla v)^T)] - 12 \frac{\mu v}{a_z^2} + \rho g + F_{ST} + F \quad (V.1b)$$

IV.2.2.2. Equation de continuité (loi de Lavoisier) :

L'équation de continuité doit traduire le principe de la conservation de la masse, l'augmentation de masse d'un fluide dans un volume durant un temps, doit être égale à la somme des masses de fluides qui y entrent [30]

La formule mathématique est :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div} \rho \vec{V} = \sum \rho Q_V \quad (\text{IV.2})$$

Les composantes de champ de vitesse : $V = \begin{bmatrix} u \\ v \\ w \end{bmatrix}$

Dans la plupart des cas pratiques, l'écoulement est conservatif.

$$\sum \rho Q_V = 0 \quad (\text{IV.3})$$

D'où l'équation de continuité :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div} \rho \vec{V} = 0 \quad (\text{IV.4})$$

Or lorsque l'écoulement du fluide est permanent, la masse volumique ne dépend pas du temps :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = 0 \quad (\text{IV.5})$$

L'équation aura la forme :

$$\text{Div} \rho \vec{V} = 0 \quad (\text{IV.6})$$

De plus, si le fluide est incompressible la masse volumique ρ est constante :

$$\text{Div} \vec{V} = 0 \quad (\text{IV.7})$$

Nous avons fait intervenir l'opérateur ∇

$$\overline{\text{Div}} \cdot \vec{V} = \vec{\nabla} \cdot \vec{V} = 0 \quad (\text{IV.8})$$

∇ =Vecteur Nabla.

$$\nabla \cdot V = 0 \quad (\text{IV.9})$$

IV.2.2.3. Equation de « level set »:

COMSOL Multiphysics[®] fait appel à une méthode « level set » introduite par Oschen et Sethan ; qui permet de simuler l'écoulement de deux fluides immiscibles, séparés par une interface en mouvement [28].

La méthode « level set » consiste à définir l'interface comme étant une courbe de niveau ($\Phi=0$) d'une fonction régulière $\Phi(x, t)$ de $\mathbb{R}^2 \times \mathbb{R}^2$ dans \mathbb{R} [30].

L'interface est implicitement définie par Φ , elle est appelée fonction de « level set ».

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} + u \nabla \Phi = 0 \quad (\text{IV.10.a})$$

L'interface est déterminée par simple localisation de l'ensemble $\Gamma(t)$ pour lequel $\Phi=0$. Cette approche est appelée capture d'interface [24].

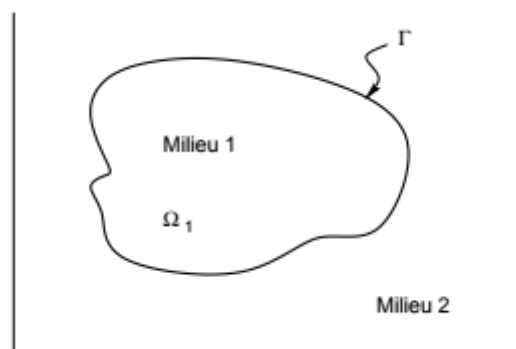


Fig.IV.2 : Interface Γ dans \mathbb{R}^2 [33].

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} + v \cdot \nabla \Phi = \gamma \nabla \cdot (\epsilon_{1s} \nabla \Phi - \Phi(1 - \Phi) \frac{\nabla \Phi}{|\nabla \Phi|}). \quad \Phi = \text{phils} \quad (\text{V.10.b})$$

Avec : Φ : la fraction volumique de la phase dispersée.

v : vitesse en [m/s]

∇ : Vecteur nabla

γ : Tension interfaciale [N/m]

ϵ_s : Paramètre de contrôle de l'épaisseur de l'interface

t : Temps [s]

IV.3. Principales étapes de simulation sous COMSOL :

COMSOL est un code de calcul qui emploie la méthode des éléments finis comme procédé de discrétisations. Les équations qui le gouvernent, telles que l'équation de continuité, l'équation de conservation de la masse ainsi que d'autres scalaires, sont résolues par cette méthode statistique. En utilisant cette technique, COMSOL Multiphysics® passe par les étapes suivantes :

- ❖ Définition de l'environnement de l'étude :
 1. La sélection de la dimension d'espace (3D ,2D axisymétrique, 2D, 1D axisymétrique 1D).
 2. La sélection de la physique (écoulement fluide, transfert de chaleur, optique, électrochimie)
 3. La sélection de l'étude (étude prédéfinie, étude personnalisée, étude vierge).
- ❖ Création de la géométrie.
- ❖ Désignation des propriétés des matériaux (la viscosité, la masse volumique).
- ❖ Définition des conditions aux limites (entrées, sorties, valeurs initiales).
- ❖ Création de maillage (Conçu par l'utilisateur ou bien par la physique)
- ❖ Lancement de l'étude.
- ❖ Interprétation des résultats. [29]

IV.3.1. Maillage :

Le maillage est l'une des étapes la plus importante de la modélisation numérique. Il existe plusieurs types, le plus utilisé est le maillage uniforme. Le maillage consiste à diviser le domaine à des petites surfaces appelées « mailles ». Une maille est un élément de base d'un grillage, d'un quadrillage ou d'un filet [26] ...etc.

Dans COMOL Multiphysics® le maillage peut être généré par l'utilisateur comme si l'on utilisait Gambit ou bien on peut choisir un mode automatique piloté par le modèle physique.

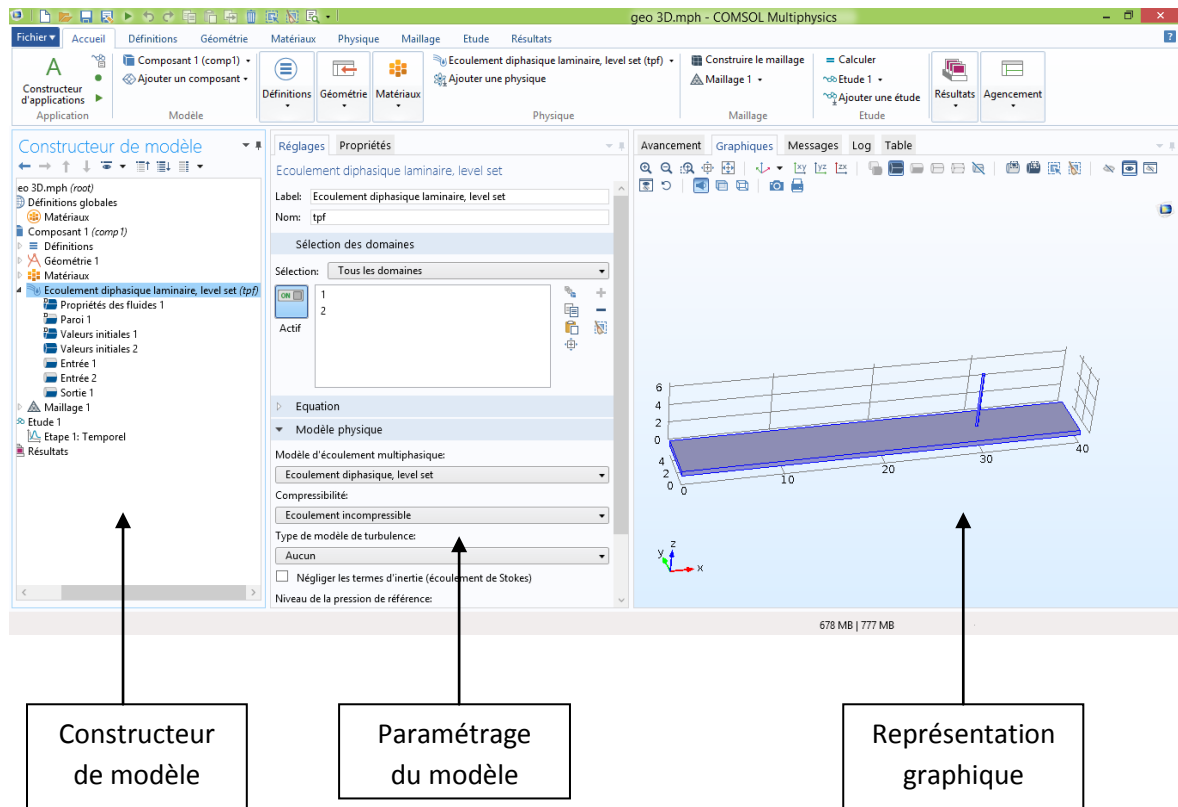


Fig.IV.3: Interface graphique de COMSOL Multiphysics®.

– Constructeur de modèle :

La fenêtre nommée « constructeur de modèle » avec son arbre de modèle permet de donner une vue globale du modèle. Le processus de modélisation peut être contrôlé par le menu qui a accès grâce au bouton droit de la souris.

– Paramètres de modèle :

En cliquant sur n'importe quel nœud de l'arbre de modèle pour voir ces paramètres associés.

– Représentation graphique :

Cette fenêtre permet de voir les différents résultats tels que : la géométrie, le maillage, et les résultats de la simulation. Et les opérations contenant la rotation, le zoom et la sélection.

IV.4. Procédure de simulation sous COMSOL :

La simulation numérique de l'écoulement microfluidique sous COMSOL Multiphysics® débute par la détermination de l'environnement de l'étude. La dimension d'espace dans notre cas est en 2 D.

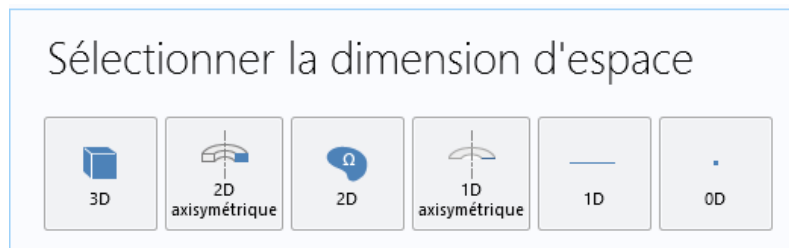


Fig.IV.4 : Dimension d'étude

Pour notre étude, nous avons choisi le module microfluidique ou bien écoulement des fluides et la physique choisie consiste en un écoulement fluide diphasique, le régime d'écoulement étant écoulement diphasique laminaire avec fonction Level set.

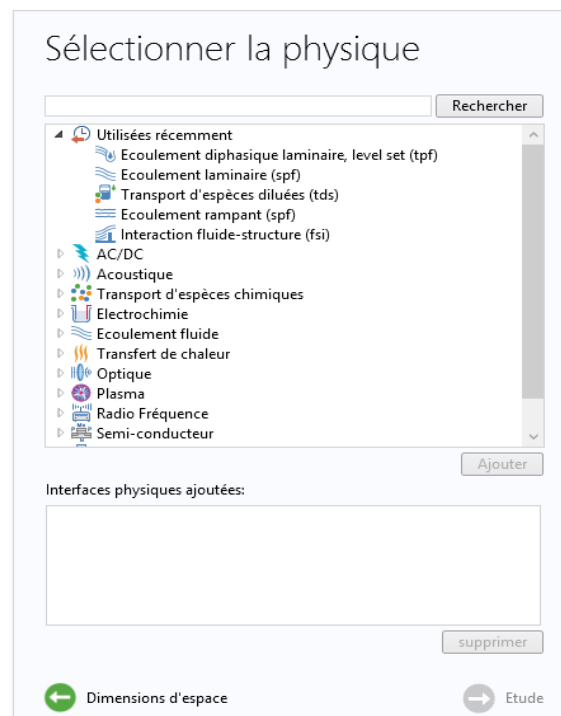


Fig.IV.5 : sélection de la physique.

L'étude de cette simulation est une étude prédéfinie temporelle.

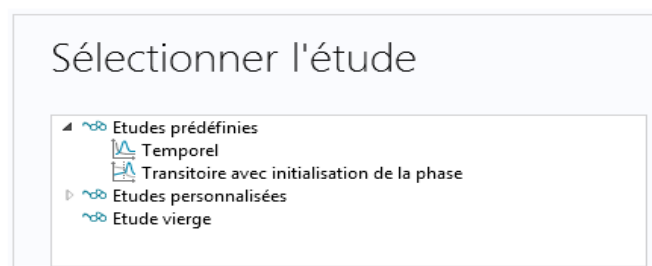


Fig.IV.6 : Sélection d'étude

IV.4.1. Géométrie

Cette modélisation sous COMSOL a été faite en réalisant un modèle 2 D de microcanal expérimental. Deux géométries ont été adoptées, chacune d'elle est formée par deux rectangulaires dont la première géométrie a comme dimensions ((40*0,3) mm et (0,3*9) mm) et l'autre a comme dimensions ((40* 0,5) mm et (0,2*9) mm).

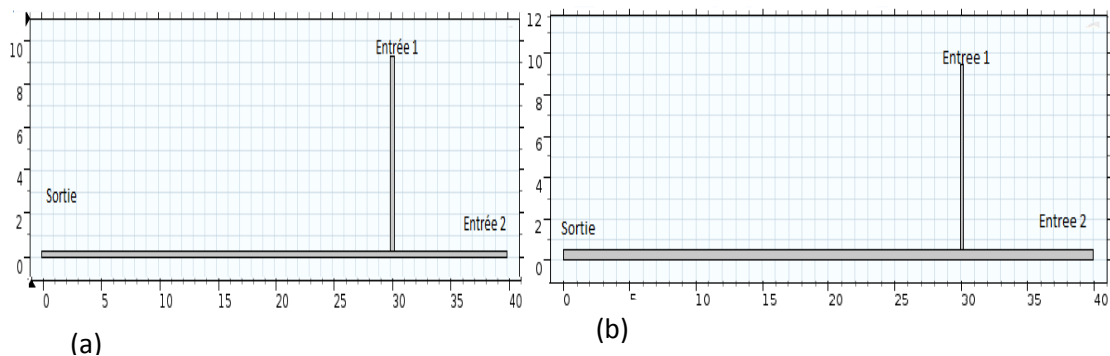


Fig.IV.7. Interface des deux micro-canaux (a) géométrie 1 (b) géométrie 2

La figure V.6 représente les deux géométries utilisées lors de la simulation.

(a) représente la première géométrie avec les dimensions suivantes : microcanal de l'entrée 1 (0,3*9mm) et le microcanal de l'entrée 2(40*0.3mm).

(b) représente la deuxième géométrie avec les dimensions suivantes : microcanal de l'entrée 1 (0,2*9mm) et celles de l'entrée 2 sont (40*0.5mm).

IV.4.2. Matériaux

Les matériaux utilisés lors de la simulation choisie de la bibliothèque des matériaux de COMSOL, ils sont respectivement l'eau (water) et l'huile (transformer oil) dont les propriétés (viscosité dynamique et masse volumique) sont définies automatiquement par le logiciel.

IV.4.2.1. Propriétés des fluides

La tension de surface (interfaciale) est définie par l'utilisateur dont la valeur numérique est presque identique à celle de l'expérimentale qui est de 41,5mN/m.

La température est définie par l'utilisateur, elle est de 293,15K (20°C)

| | | Pression [Pa] | φ |
|-------------|---------------------|---------------|-----------|
| Géométrie 1 | Entrée 1 (eau) | 6000 | 0 |
| | Entrée 2 (huile) | 7400 | 1 |
| | Sortie | 0 | / |
| Géométrie 2 | Entrée 1 (eau) | 6000 | 0 |
| | Entrée 2 (huile) | 7400 | 1 |
| | Sortie | 0 | / |

Tableau n°1 : Les conditions aux limites.

IV.4.3. Maillage :

Dans notre étude, le maillage a été conçu par l'utilisateur, les géométries 1 et 2 finalisées possèdent deux domaines (un domaine pour chacune des deux phases), neuf frontières et huit points. Trois maillages ont été testés pour chacune des deux géométries.

IV.4.3.1. Tests de sensibilité du maillage :

Un test de maillage a été réalisé en adoptant trois types de maillage (extrêmement grossier, normal et extrêmement fin),

| Type de maillage | Taille des éléments | Géométrie 1 | Géométrie 2 |
|-------------------------------|-----------------------|--|---|
| Maillage extrêmement grossier | Taille d'élément max | 2,05mm | 2,09mm |
| | Taille d'élément mini | 0,0651mm | 0,0665mm |
| | Taux de croissance | 1,4 | 1,4 |
| | Facteur de courbure | 1 | 1 |
| Maillage normal | Taille d'élément max | 0,419mm | 0,428mm |
| | Taille d'élément mini | 0,0186mm | 0,019mm |
| | Taux de croissance | 1,15 | 1,15 |
| | Facteur de courbure | 0,3 | 0,3 |
| Maillage extrêmement fin | Taille d'élément max | 0,0623mm | 0,0637mm |
| | Taille d'élément min | $1,86 \cdot 10^{-4} \text{mm}$ | $1,9 \cdot 10^{-4} \text{mm}$ |
| | Taux de croissance | 1,05 | 1,05 |
| | Facteur de courbure | 0,2 | 0,2 |

Tableau n°2 : propriétés de chaque type de maillage.

Le maillage obtenu pour la géométrie 1 :

- Le maillage extrêmement grossier : le maillage consiste en 214 éléments de domaines, 217 éléments de frontières.

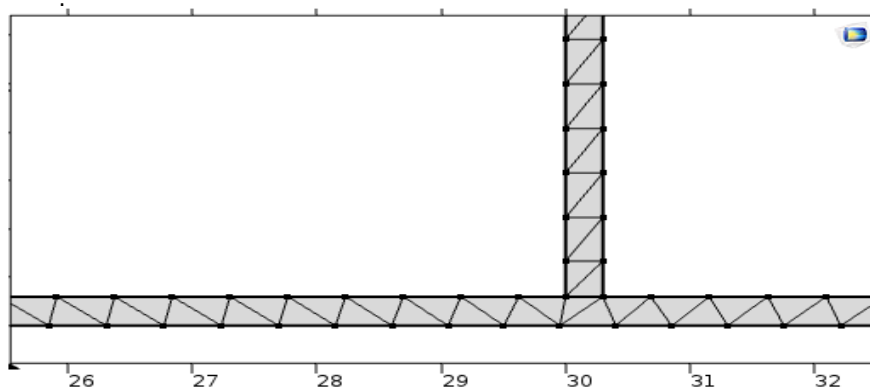


Fig.V.8 Maillage extrêmement grossier de la géométrie 1.

- Le maillage normal: le maillage consiste en 253 éléments de domaine et 244 éléments de frontières.

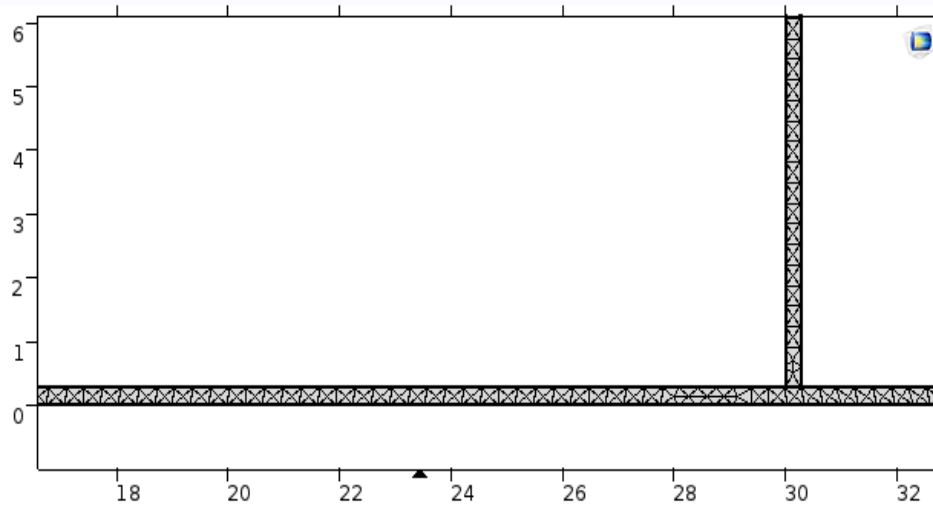


Fig.V.9. Maillage normal de la géométrie 1.

- Le maillage extrêmement fin : le maillage consiste en 9747 éléments de domaines et 1590 éléments de frontières, le nombre de degré de liberté est 68907.

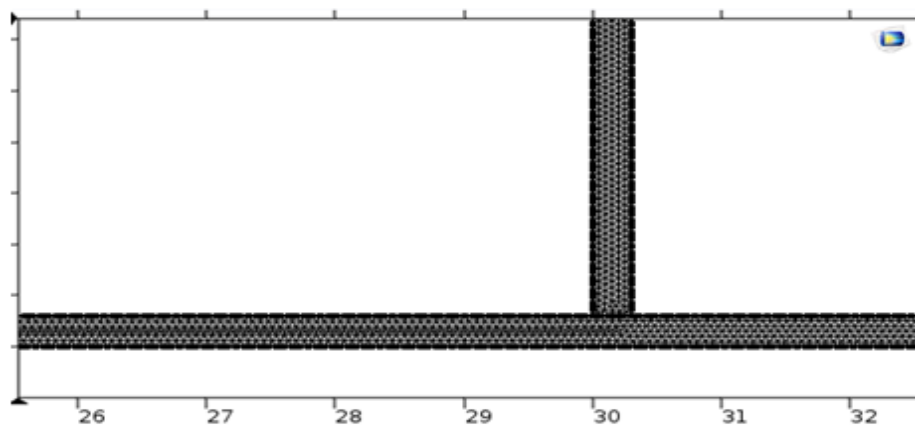


Fig.IV.10 Maillage extrêmement fin de la géométrie 1

Les figures fig.IV.8 Fig.IV.9 et Fig.IV.10 représentent les trois types de maillage utilisés pour la géométrie 1, ils sont respectivement : maillage extrêmement grossier, maillage normal et maillage extrêmement fin.

Le maillage obtenu pour la géométrie 2 :

- Le maillage extrêmement grossier consiste en 185 éléments de domaines et 174 éléments de frontières.

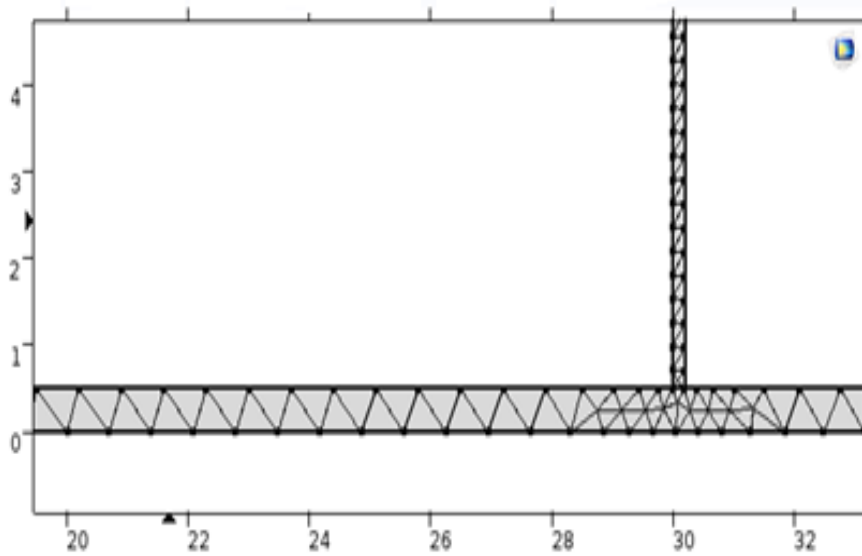


Fig.IV.11. Maillage extrêmement grossier géométrie 2.

- Le maillage normal consiste en 472 éléments de domaine et 263 éléments de frontières

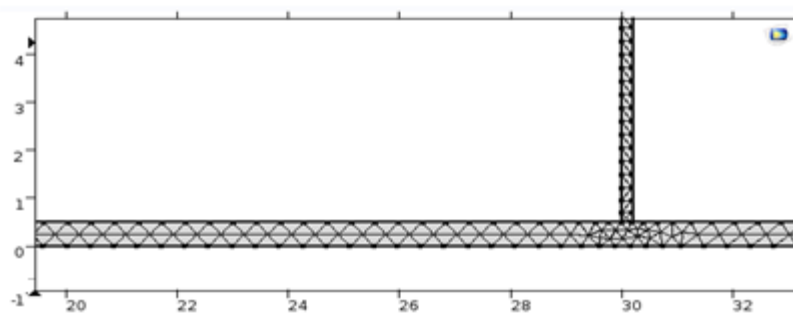


Fig.IV.12. Maillage normal géométrie 2.

- Le maillage extrêmement fin consiste 13704 éléments de domaines et 1559 éléments de frontières.

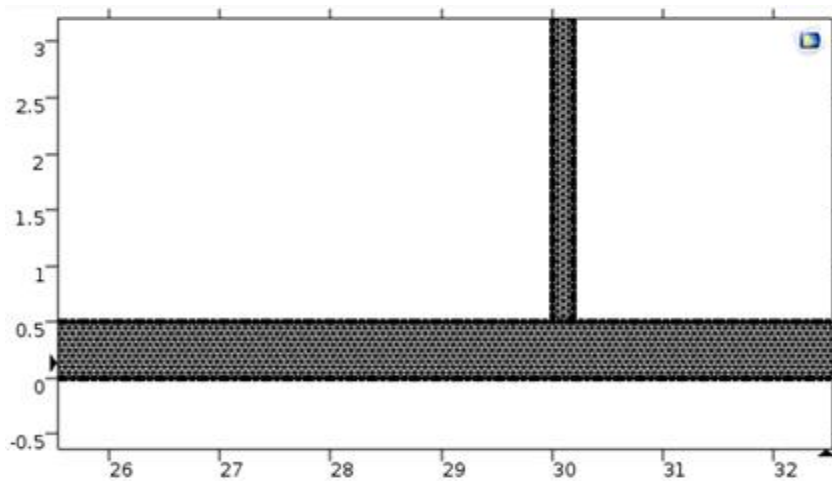


Fig.IV.13. Maillage extrêmement fin géométrie 2.

Les trois figures Fig.IV11, 12 et 13 représentent respectivement le maillage extrêmement grossier, normal et extrêmement fin de la géométrie 2.

Après avoir bien posé le problème sous « COMSOL Multiphysics® » et établi le maillage, puis vérifié les conditions aux limites, la simulation a été lancée.

IV.5.Résultats et discussion

Une fois la simulation achevée, après avoir atteint la convergence, il nous reste qu'à extraire les différents résultats.

IV.5.1. Résultats:

IV.5.1.1. La fraction volumique :

- Pour le maillage extrêmement grossier, nous avons obtenu les résultats suivants

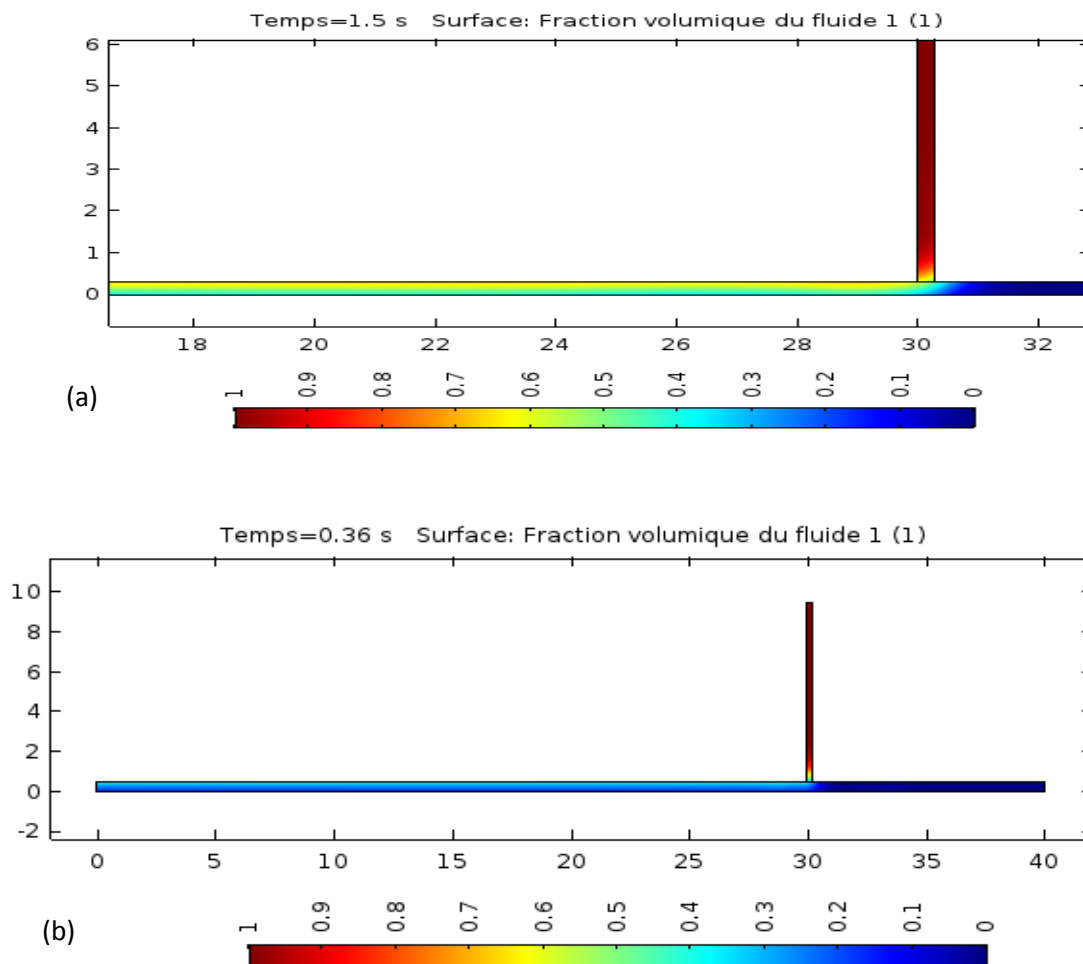


Fig.IV.14. Fraction volumique des deux géométries pour un maillage extrêmement grossier (a) géométrie 1 (b) géométrie 2

La figure Fig.IV.14 représente les résultats obtenus pour la fraction volumique lors de la simulation sous COMSOL des deux géométries 1 et 2. Nous n'avons constaté aucune apparition d'émulsion (gouttes d'eau) avec ce type de maillage.

Pour le maillage normal :

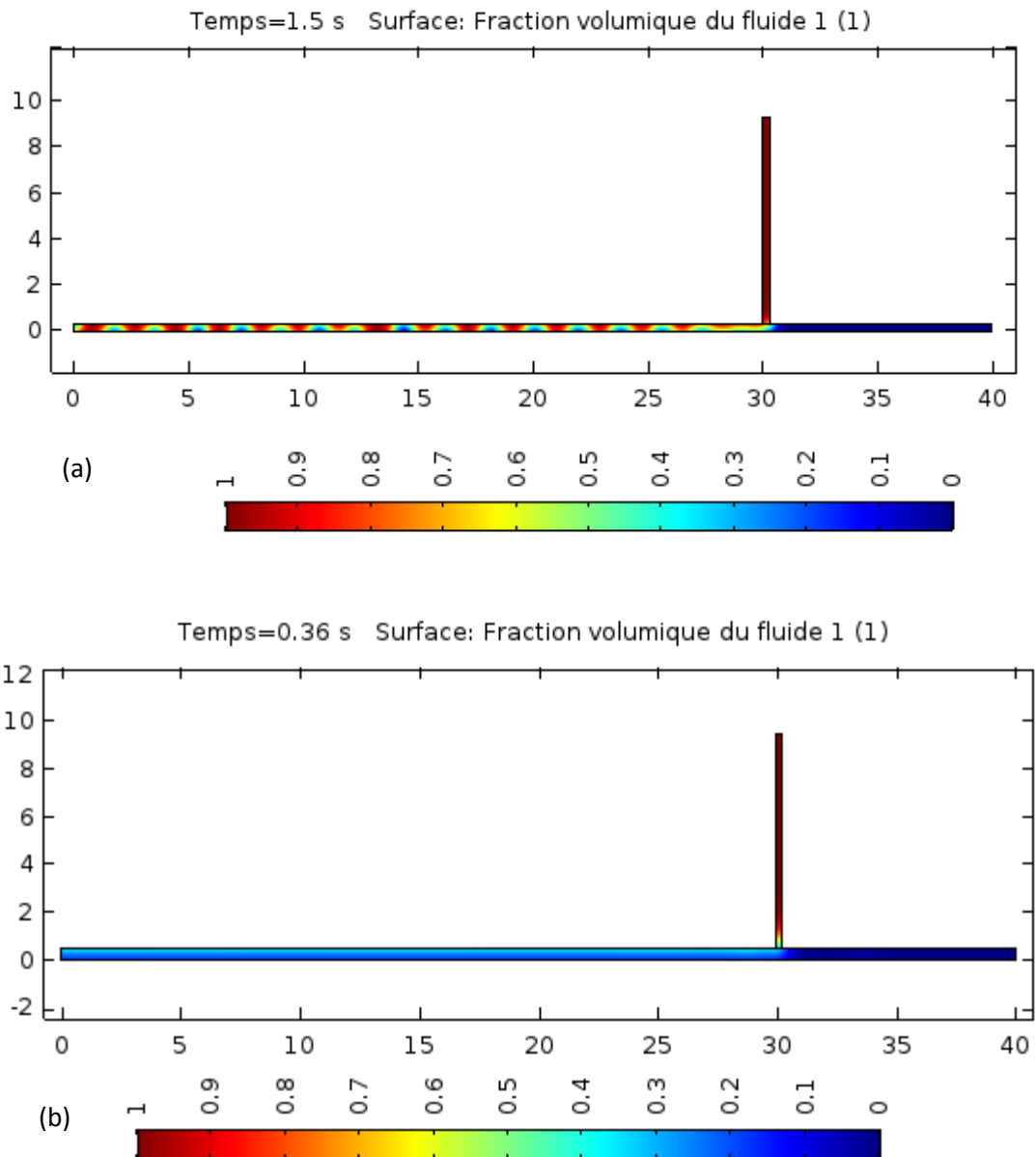


Fig.IV.15. La fraction volumique des deux géométries avec un maillage normal (a) géométrie 1

(b) géométrie 2

Le maillage normal appliqué sur les deux géométries n'a pas abouti à un résultat. La figure IV.15 (a) donne des demi sphères tandis que dans la figure IV.15 (b) l'écoulement des deux phases est parallèle l'une par rapport à l'autre.

- Pour le maillage extrêmement fin :

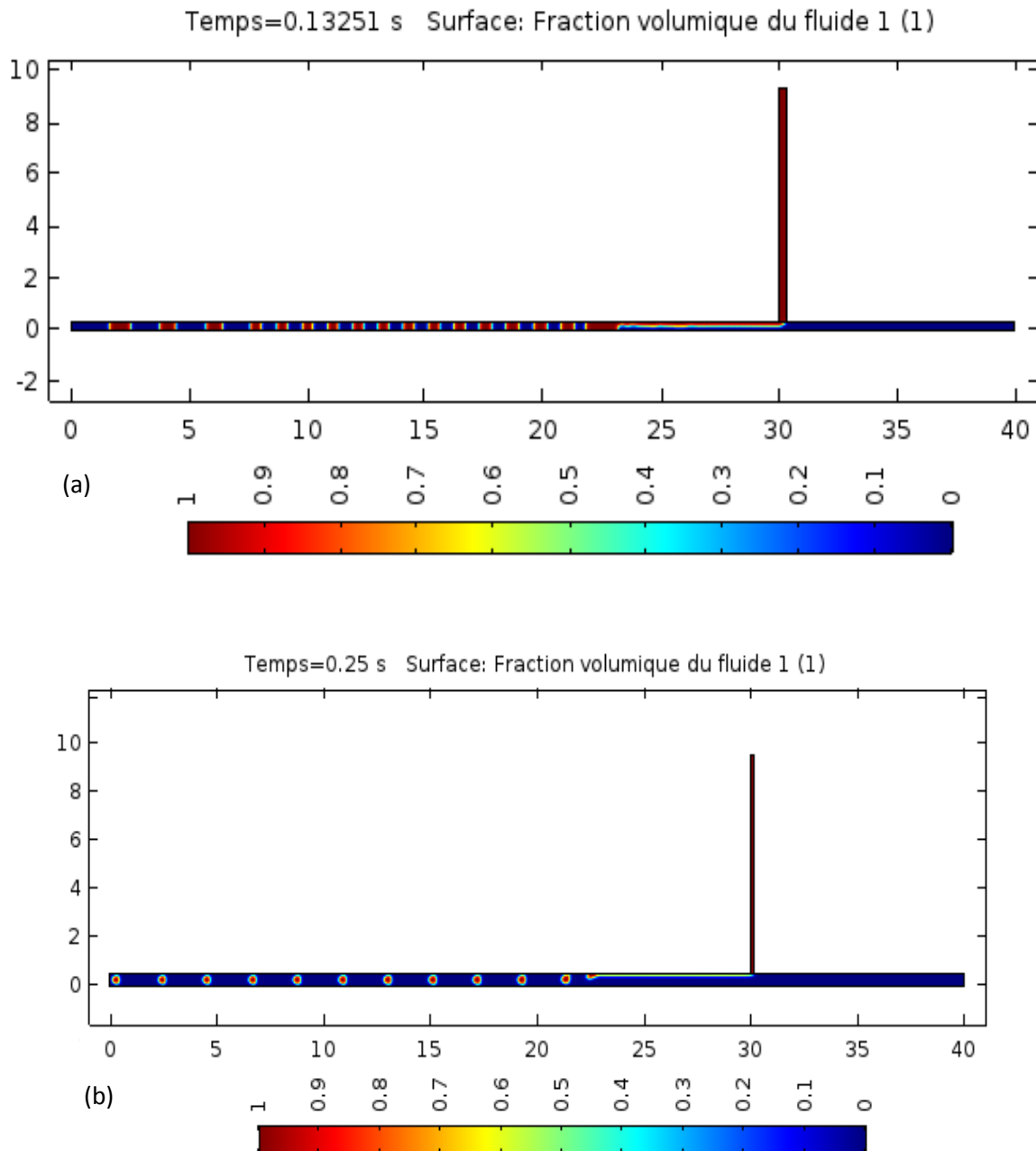


Fig.IV.16. Fraction volumique des deux géométries avec un maillage extrêmement fin (a) géométrie 1 (b) géométrie 2

La fig.IV.16 représente la fraction volumique des deux géométries avec un maillage extrêmement fin. Dans les deux figures (a) et (b), nous avons constaté une convergence. Les

résultats obtenus par ce maillage sont proches de ceux obtenus expérimentalement, c'est-à-dire il y a formation des gouttelettes d'eau dispersées dans un écoulement principal d'huile.

IV.6.1.2. Champs de vitesse :

Maillage extrêmement grossier :

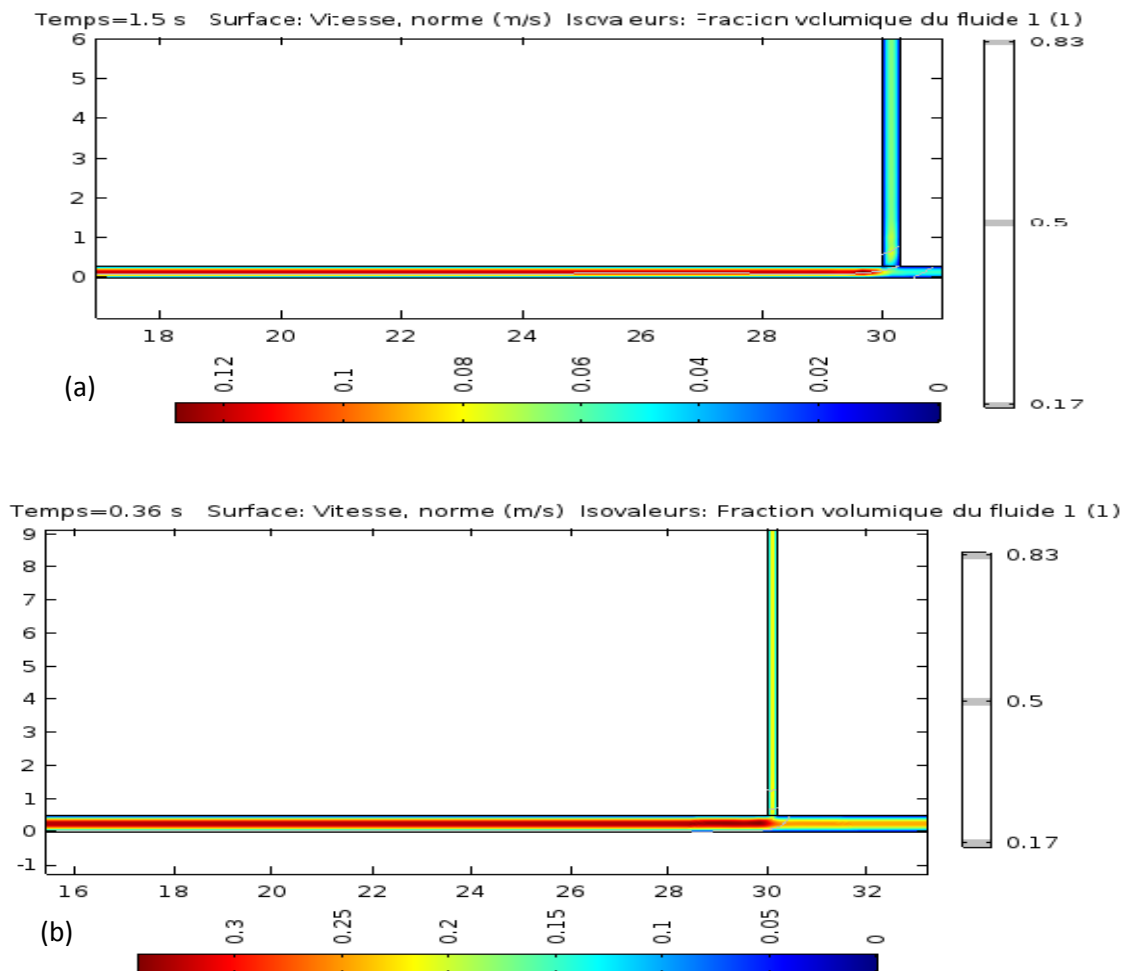


Fig.IV.17. Champ de vitesse des deux géométries avec un maillage extrêmement grossier (a) géométrie 1 (b) géométrie 2

La figure IV.17 représente les résultats obtenus des champs de vitesse des deux géométries. Des deux figures (a) et (b), on constate que la vitesse maximum est atteinte au centre du micro-canal de l'émulsion.

Maillage normal :

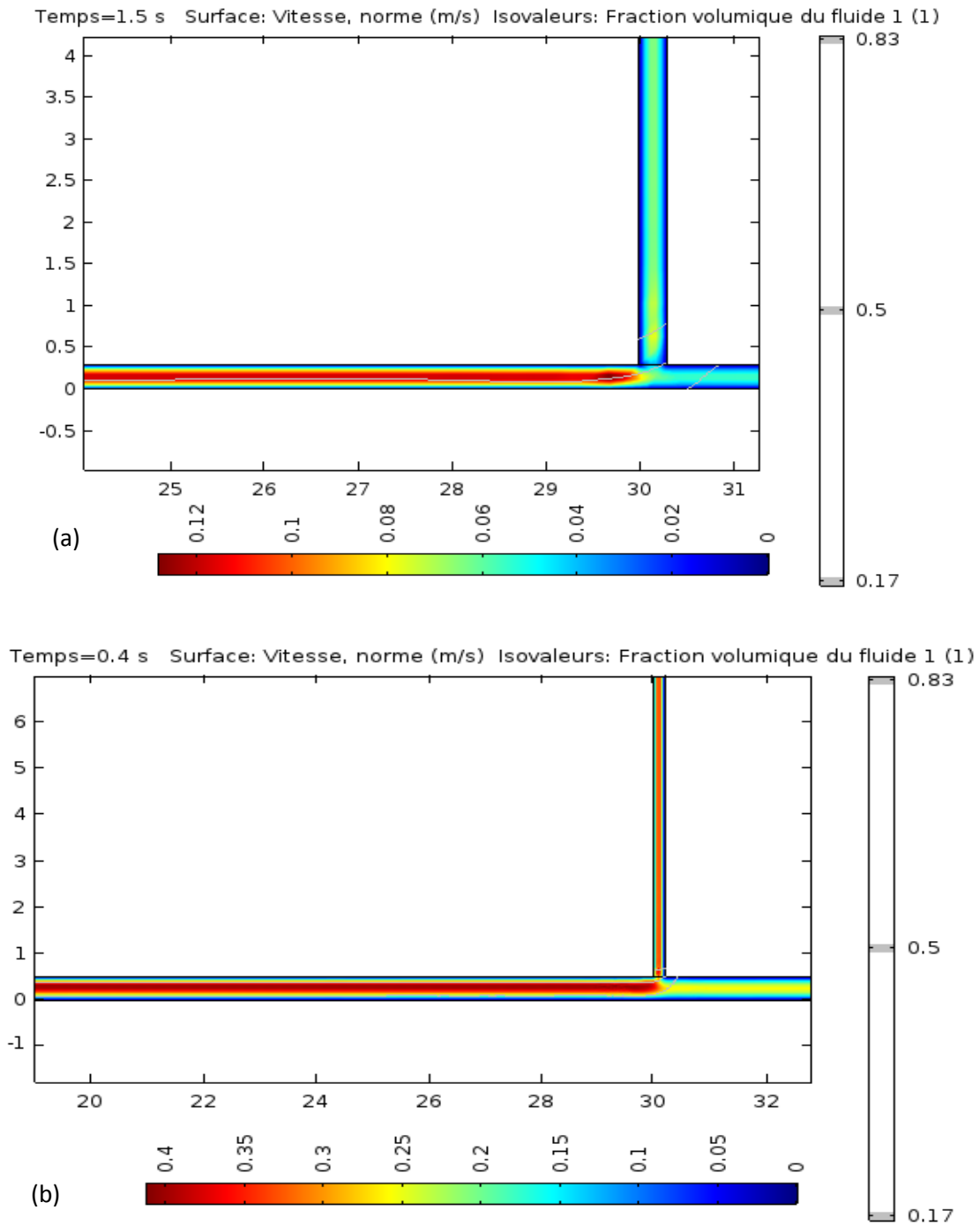


Fig.IV.18. Champ de vitesse pour les deux géométries avec un maillage normal (a) géométrie 1
(b) géométrie 2

La figure IV.18 illustre les résultats obtenus en utilisant le maillage normal.

- Maillage extrêmement fin :

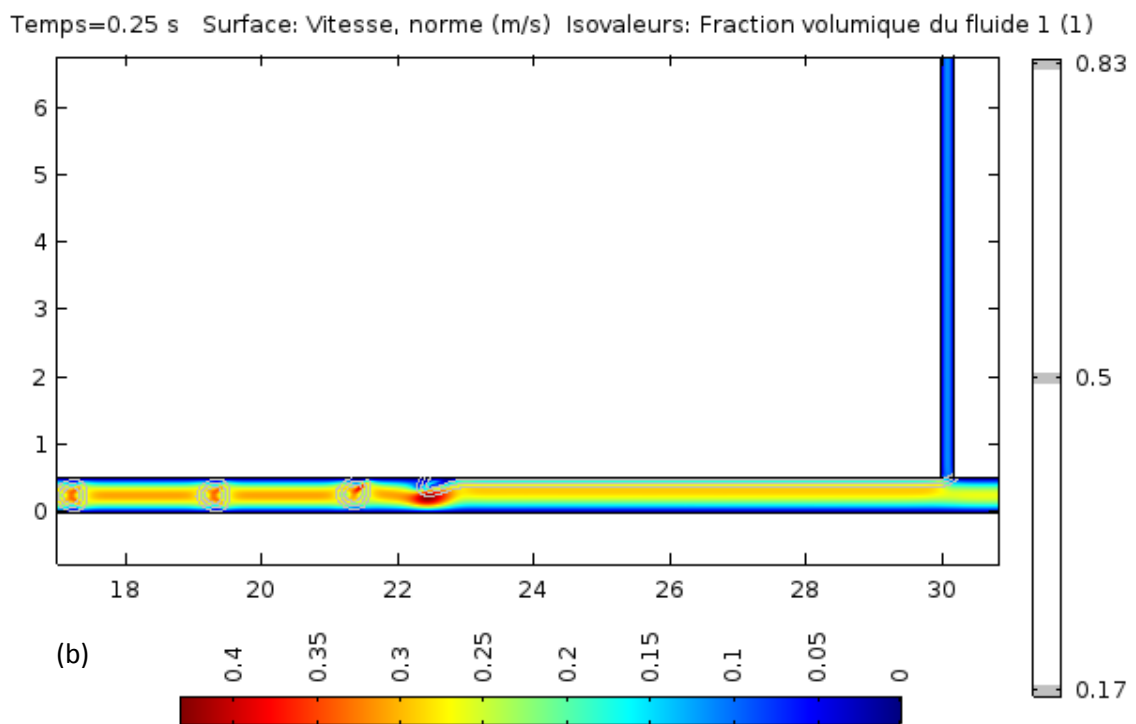
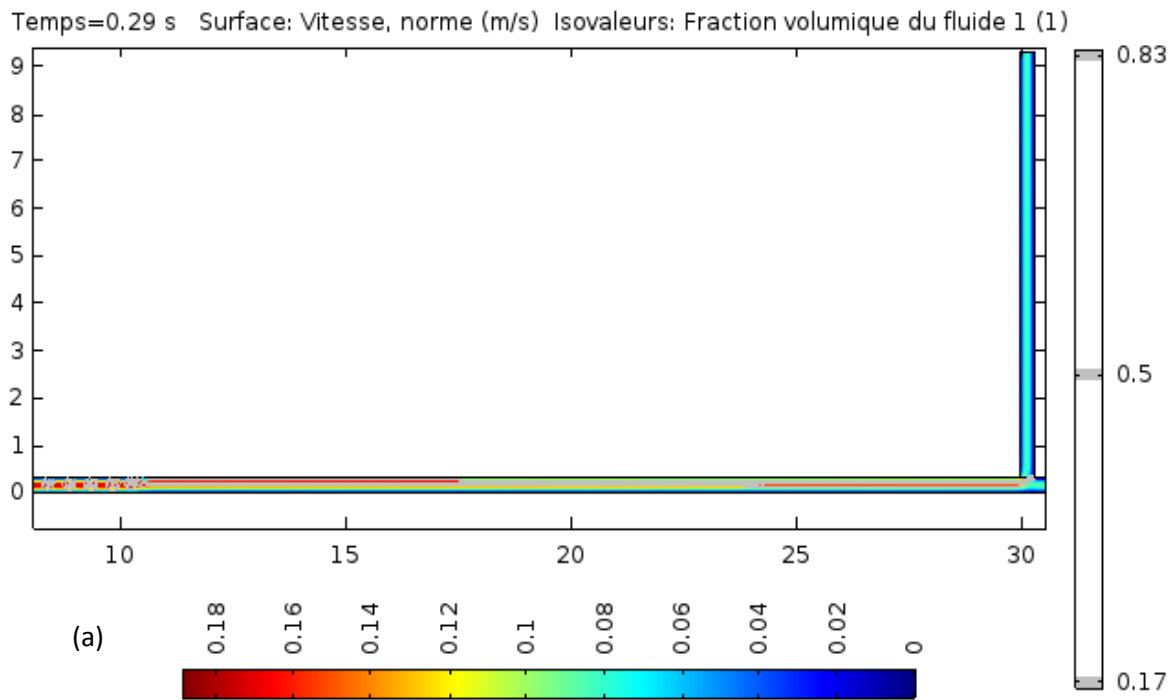


Fig.IV.19. Champ de vitesse des deux géométries pour un maillage extrêmement fin (a) géométrie 1 (b) géométrie 2

IV.6.2. Analyse des résultats :

D'après les figures obtenues et les résultats pour les trois types de maillage utilisé (extrêmement grossier, normal, extrêmement fin), nous avons constaté que les meilleurs résultats sont obtenus avec un maillage extrêmement fin où des gouttelettes sphériques sont identique à celles de l'expérience sont générées.

Ces gouttelettes sont obtenues pour les deux géométries pour des pressions de 6000Pa pour la phase huileuse et 7400 Pa pour la phase aqueuse.

IV.7. Conclusion :

La simulation numérique en 2D sous COMSOL Multiphysics[®] a abouti à des résultats proches de ceux obtenus lors des expériences, c'est-à-dire la formation de gouttelette d'eau dispersée dans un écoulement principal d'huile.

Afin de mieux modéliser la déformation de l'interface eau-huile induit dans la géométrie en T l'emploi d'un maillage extrêmement fin est nécessaire.

Ce maillage a été choisi après avoir établi un test de maillage sur les trois types de maillages employés à savoir extrêmement grossiers, normal et extrêmement fin).

Conclusion Générale

Conclusion générale

Ces dernières décennies, il y a eu une augmentation des efforts pour le développement des systèmes micro-fluidique destinés à la dispersion d'un fluide dans un autre fluide immiscible [2].

L'objectif de ce travail est de concevoir un système micro-fluidique en forme de T (T-Junction) permettant la génération d'une émulsion de type eau dans huile. La principale caractéristique d'un tel système est de générer une émulsion mono-disperse c'est-à-dire que les gouttelettes possèdent le même diamètre. La visualisation de la formation des gouttelettes d'eau dispersées dans un écoulement principale d'huile obtenue grâce à ce dispositif expérimental est confrontée à une modélisation sous COMSOL Multiphysics. Afin de mieux modéliser les déformations de l'interface eau/huile, le modèle Level Set à été sélectionné dans COMSOL.

Dans ce cadre, nous avons réalisé un travail expérimental sur un écoulement diphasique de deux fluides dans un microcanal en T (T-Junction) sans utiliser de tensioactifs. L'influence de certains paramètres tels que la fraction volumique et le débit sur la stabilité des émulsions (gouttelettes) formées.

Afin d'atteindre l'objectif cité, nous avons commencé notre étude par une recherche bibliographique qui illustre la définition de l'émulsion et de l'emulsification et l'ensemble de mécanismes et des procédés de formulations, les phénomènes de déstabilisations, géométrie des différents microsystèmes. Par la suite nous avons décrit :

- L'appareillage (verrerie, balance, viscosimètre) et le dispositif utilisé lors de notre manipulation ainsi que les fluides utilisés.
- Méthodologie (mesure des pressions, débits)
- Les logiciels (ImageJ, COMSOL MULTIPHYSICS) avec tout leurs caractéristiques.

A travers les résultats expérimentaux que nous avons obtenus, nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

- L'écoulement dans notre système microfluidique est un écoulement laminaire rampant ($1,88.10^{-1} < Re < 4,52.10^{-1}$)
- La diminution des diamètres des gouttelettes est proportionnelle à l'augmentations de la pression et de débit de la phase continue (phase huileuse).
- Le diamètre maximal des gouttelettes est atteint pour une fraction volumique de la phase aqueuse de 6,3%, et le diamètre minimal est atteint pour la phase dispersée 1,5%.

La partie simulation a été réalisée avec le logiciel COMSOL Multiphysics, ce logiciel utilise la méthode Level set qui consiste en un suivie de l'interface liquide/liquide à la périphérie de la gouttelette.

A travers les résultats obtenus numériquement, nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

- Le meilleur résultat de dispersion eau dans huile est obtenu pour un maillage extrêmement fin.
- La taille des gouttelettes dépend de l'équilibre des deux débits, à savoir la phase dispersée et la phase continue. C'est-à-dire que pour un écoulement de la phase dispersée fixe, on peut adapter le débit de la phase continue pour obtenir le diamètre de dispersion voulu, à condition que la pression totale dans le micro-canal de la phase continue n'excède pas celui de la phase dispersée. Si tel est le cas la phase continue s'engouffrerait dans le micro-canal de la phase dispersée.

La comparaison des résultats a montré une certaine concordance entre les résultats obtenus numériquement et expérimentalement.

En guise de perspective, une modélisation en 3D pourra être envisagée afin de mieux expliquer les mécanismes de fractionnement de l'écoulement de l'eau par la phase continue.

Références Bibliographique

- [1] M. CHABERT, « *Microfluidique de gouttes pour les analyses biologique* », thèse de doctorat, institut Curie, Université Paris VI. 2007.
- [2] N. TARCHICHI, « *Microfluidique diphasique accordable* », thèse de doctorat, université de Franche –Comte, 2013.
- [3] A. BELKADI, « *Étude expérimentale du fractionnement liquide-liquide en micro-canaux pour la production en continue de biodiesel émulsionnées* », thèse doctorat, Ecole polytechnique de Nantes, 2015.
- [4] GALINDO ALVAREZ, « *Etude de l'inversion de phase catastrophique lors de l'émulsification des produits visqueux* », thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2008.
- [5] O.A. ALVAREZ SOLANO, « *Emulsion inverses très concentrées influence du procédé et de la formulation sur les propriétés rhéologique* », thèse de doctorat, Ecole polytechnique de LORRAINE, 2006.
- [6] O. DOUMEIX, « *Les émulsions* », Opérations unitaires en génie biologique. Scéren. CNDPCRD, 2001.
- [7] B. CABANE, S. HENON, « *Liquide solution, dispersion, émulsion, gels* » Belin, nouvelle édition, J2 185, 2007.
- [8] F. PUISIEUX, « *Les surfactifs et les émulsionnants* », Labo- Pharma Problème et Techniques, Centre d'étude pharmaceutique, Paris, 1973.
- [9] E. PARUTA, « *Emulsion inverse très concentrées : formulation, comportement rhéologique et modélisation* », thèse de doctorat, institut national polytechnique de Lorraine, 2010.
- [10] C.X. ZHAO, A.P.J. MIDDELBERG, « *two phase micro fluidic flows* », chemical engineering sciences 66(2011) 1394-1411.s
- [11] C. AISSAOUI, L. OURAK, « *étude de l'influence de la température sur la stabilité de l'émulsion de Pickering* », mémoire de master, Université Mouloud Mammeri de Tizi Ouzou
- [12] S. LIGNEL, « *Emulsion eau dans l'huile générées par un procédé microfluidique : contribution à l'étude de la congélation l'eau dispersée en émulsion* », thèse de doctorat, université Technologique Compiègne, 2014.
- [13] L. GHERAIRI « *étude de l'effet de la température sur la stabilité des émulsions à base de caséinate de sodium à l'aide des plans d'expériences* », mémoire de fin d'étude de master 2, université Kasdi Marbah Ouargla, 2011.
- [14] P. HE, « *conception et réalisation d'un système microfluidique pour la production de gouttes calibrées et leur encapsulation* » thèse de doctorat, Université de Technologie de Compiègne, France, 2009.

Références Bibliographique

- [15] M. CHABNI, « *Etude de la stabilité physique des systèmes dispersés* », thèse de doctorat, faculté des sciences, université Mouloud Mammeri, Tizi-Ouzou, 2012.
- [16] J.-L. SALAGER, R. ANTON, J. M. AUBRY, « *formulation des émulsions par la méthode du HLD* » technique de l'ingénieur, vol. Génie des procédés J2, chapitre 158, 1-16, 2006.
- [17] F. PUISIEUX, M. SEILER, « *Les systèmes dispersés, Agents de surface et Galenica 5, émulsions* », Ed Technique & Documentation, Lavoisier, 1983.
- [18] N. ATBA, « *Formulation d'une émulsion pharmaceutique huile de soja/eau, caractérisation et étude de stabilité physique* » Mémoire de magister, Ecole National Polytechnique, Département de Génie Chimique, 2008.
- [19] P. BROCHETTE, « *Emulsification : Elaboration et étude des émulsions.* » Techniques de l'ingénieur, traité Génie des procédés J2150v2 : 1-28. ,2013.
- [20] S. KLALECHE, A. MADJOUR, « *Simulation numérique de la convection forcée entre deux disques en présence d'un nanofluide* » mémoire de master, Université Mouloud Mammeri Tizi Ouzou, 2015.
- [21] J.-M. BREBEC, « *Mécanique des fluides* », 2^{ème} édition collection 06 ,2008.
- [22] S. NEDJAR, « *synthèse des émulsions de type « eau dans l'huile » dans des microsystèmes de géométrie en croix et mise au point d'un système d'alimentation pneumatique* », université de M'Hamed Bougara Boumerdes UMBB, 2011.
- [23] M. ROBERT DE SAINT VINCENT « *Ecoulement microfluidique pilotes sans contact par une onde laser* », thèse de doctorat, université de bordeaux 1, 2010
- [24] M. LECOMTE, « *bleue de méthylène* », cercle mycologique Namur et cercle de MLB.
- [25] M. KOLEVA, « *Poly (methyl Methacrylate* », technical university Gabrovo.
- [26] Dictionnaire le petit Larousse 2007.
- [27] J. BICO, M. REYSSAT, M. FERMIGIER « *Opérations de base sur ImageJ* » Tps d'hydrodynamiques de l'ESPCI
- [28] Introduction to COMSOL Multiphysics 1998-2016 COMSOL.
- [29] E. FERRET, C. IACONELLI, « *utilisation de COMSOL Multiphysics dans la réalisation de modèles numérique : une aide au calcul et l'interprétation de phénomènes physique complexe* » réunion GMN 3A 06-12-2011.
- [30] Reymond Comolet
- [31] Grzybowski et R. Mosdorf, “*Modelling of two-phase flow in minichannel using level-set method*”. Journal of Physics: Conference Series, 2014.