

UNIVERSITÉ LIBRE DE BRUXELLES,  
Service de Chimie Physique et Biologie Théorique

ETUDE EXPÉRIMENTALE DE LA  
DIGITATION VISQUEUSE DE  
FLUIDES MISCIBLES EN CELLULE  
DE HELE-SHAW

Renaud Maes

Thèse réalisée en vue de l'obtention  
du titre de Docteur en Sciences  
sous la direction d'Anne De Wit.

Année académique 2009-2010

*À la mémoire de Maria-Ninucia Pilat (1980–2008)  
et de Willy Hellings (1927–2009)*

---

## PRÉFACE

---

*« A X64 processor is screaming along at billions of cycle per second to run the Xnu kernel, wich is frantically working through all the posix-specified abstraction to create the Darwin system underlying OS X, which in turn is straining itself to run Firefox and its Gecko renderer, which creates a Flash object which renders dozens of video frames every second...  
... Because I wanted to see a cat jump into a box and fall over.*

*I am God.»  
XKCD, 2009*

Parmi les gageures posées par une thèse, l'une des plus difficiles à relever est sans équivoque l'épreuve dite «des remerciements». En effet, il s'agit de n'oublier aucune des contributrices, aucun des contributeurs au travail de recherche doctorale. Le problème est bien évidemment directement lié au caractère polymorphe des contributions et, par là, à la difficulté d'identifier clairement celles qui sont dignes de figurer dans les remerciements : certes, la caféine a permis de me maintenir en éveil, cependant est-il avisé de remercier George Clooney ?

Ce premier aspect n'est pas la seule caractéristique difficile de cet exercice : un autre élément crucial est la somme des contentions nécessaires à la restitution d'une liste exhaustive. Contentions qui supposent, bien évidemment, une exceptionnelle faculté de mémorisation. Ceci étant posé, on peut énoncer la loi suivante : étant donné le niveau de stress inhérent à la conclusion de ce que le règlement des doctorats qualifie de « dissertation originale », les facultés du doctorant sont nécessairement réduites à l'heure de

l'écriture des remerciements et il en résulte que lesdits remerciements sont lacunaires. En vertu de cette loi *d'incomplétude de l'ex-voto*, qu'il ne me soit pas tenu rigueur d'un éventuel oubli ! Cependant, pour mieux encore m'assurer de ménager toutes les susceptibilités, je tiens à remercier avant toute autre chose *toutes les contributrices et tous les contributeurs*, englobant dans cette marque de reconnaissance holistique les potentielles oubliées et potentiels oubliés.

En première place des marques nominatives de gratitude, je tiens à citer ma promotrice, le Prof. Anne De Wit. Le discours apparaît vain pour décrire son soutien tout au long de ces années de recherche doctorale. J'aimerais cependant souligner que les circonstances de réalisation de ce travail ont été pour le moins difficiles pour de multiples raisons. Le soutien d'Anne dans ces moments a été tout bonnement exceptionnel ! Grâce à elle, je retire de ces plus de quatre ans une expérience qui à la fois sur le plan intellectuel et sur le plan humain, a été un véritable plaisir. Plus encore, vu mon CV pour le moins étrange, c'était une véritable gageure de m'engager sur un projet de recherche doctorale. Anne a pris ce risque et je ne sais comment lui en exprimer ma gratitude. J'espère avoir été digne de sa confiance. Je remercie aussi Thomas Erneux, qui a permis l'aboutissement de nos travaux, par son soutien moral et ses remarques toujours pertinentes sur l'évolution des travaux.

Je veux également remercier en « pôle position » Jean-Charles Dupin, contributeur essentiel au montage de la manipulation. Sans ses idées brillantes et sa maîtrise des aspects techniques, son aide dans les commandes aux fournisseurs et son soutien, la réalisation de ce travail aurait tout bonnement été impossible. Il en est de même pour Christophe Minetti et Patrick Queekers, qui ont permis le développement d'outils logiciels « à la carte » (à ce sujet, une invitation au resto est toujours lancée)... Grand merci également à Benoît Scheid, Pierre Colinet et Germain Rousseaux : ce fut un plaisir et un honneur de travailler avec des scientifiques aussi brillants ! Toujours parmi les contributeurs à la manipulation, je me dois de citer Léo Granger, dont le stage à l'ULB est passé trop vite, ainsi que les contributeurs aux différents codes que j'ai utilisé pour le post-traitement : Manoranjan Mishra, Mariana Baroni et Pierre de Buyl. Pierre fut, outre un contributeur essentiel à mon travail, mon dealer de café attitré durant un peu plus de deux ans et l'un de mes soutiens moraux les plus efficaces ! Pour la mise à disposition de locaux, merci à Jean-Claude Legros, Pierre Colinet, Jean-Louis Deneubourg et Michele Sferrazza.

Je me dois aussi de remercier grandement Quentin Baire, relecteur attitré de cette thèse, qui a accepté d'en commenter les très nombreuses versions « bêta » tout en me suggérant le thème musical adéquat pour chaque nouvelle

version, de *Paradise Circus* de Massive Attack à *Pretty when you cry* de VAST.

Le 5ème niveau du youtubesque<sup>1</sup> «NO-building» est un petit monde à part... Le fréquenter permet un enrichissement intellectuel permanent. Ceci n'est possible que grâce à ses membres, toutes et tous des personnages hors du commun. En particulier, j'aimerais citer Jessica D'Hernoncourt, Laurence Rongy, Philip Trevelyan (le plus grand connaisseur de séries télés qu'il m'ait été donné de rencontrer), Thomas Gérard, Yannick De Decker, Christophe Almarcha, Pierre Borckmans, Luis Riolfo, Pauline Assemat, Domenico Bullara, Nicole Aelst, Fabian Trillet. Une mention particulière pour Yasmina R'Honi, colocataire du O5.111, qui dut supporter mes interminables conversations téléphoniques et mon amas d'articles au sujet duquel le deuxième principe de la thermodynamique s'applique parfaitement.

Je remercie également chaleureusement toutes et tous les scientifiques avec lesquels il m'a été possible de discuter des problèmes abordés dans cette thèse et en particulier, Andreï Vedernikov, Laurent Talon, Dominique Salin, George 'Bud' Homsy, Alessandro D'Onofrio, Eckart Meiburg, Michel Martin ainsi que le président de mon comité d'accompagnement, Léon Brénig.

J'en viens à mes soutiens moraux, qui furent nombreux. Il me faut tout d'abord remercier mon compagnon, Mathieu De Backer et lui demander aussi d'excuser l'enfer que je lui ai fait vivre, particulièrement dans la dernière ligne – plus ou moins – droite de la rédaction de ma thèse. Je remercie aussi toute ma famille et en particulier mon frère, Lionel Maes, mais aussi mes amies et amis — en vrac : Séverine Robert, Ninucia Pilat, Azzedine Hajji, Gérald Renier, Marie Cappart, Sophie Grafé, Cédric Libert, Frédéric Schmitz, Cécile Sztalberg, Anita Mathieu, Adrien Antoniol, Sophie Heine, Gilles Maufroy, Carlos Crespo, Catherine Moureaux, Jean-Luc de Meulemeester, Jonathan Brauner, Catherine Henry, Valérie Desomer, Jean-François Wilock, Laurence Hiernaux, Michel Sylin.

Pour conclure, je remercie la Communauté française de Belgique (programme ARC-Archimedes), le F.R.I.A et le programme Prodex pour leur soutien financier.

---

1. <http://www.youtube.com/watch?v=303D04EfExk&feature=related>

---

# TABLE DES MATIÈRES

---

<b>Avant-propos</b>	<b>8</b>
<b>1 La digitation visqueuse</b>	<b>12</b>
1.1 La digitation visqueuse de fluides miscibles . . . . .	15
1.2 Quelques applications . . . . .	18
1.2.1 Application à la chromatographie . . . . .	18
1.2.2 Applications à la contamination de nappes aquifères . .	23
1.3 Objectifs de la thèse . . . . .	23
<b>2 La cellule de Hele-Shaw</b>	<b>25</b>
2.1 Dispositif expérimental . . . . .	30
2.1.1 Profil du champ de vitesse dans la cellule . . . . .	33
2.1.2 Dispositif d'injection . . . . .	35
2.1.3 Evolution du champ de concentration et intensité lu- mineuse . . . . .	38
2.1.4 Configurations du dispositif . . . . .	41
2.2 Conclusions . . . . .	44
<b>3 Dispersion dans la cellule de Hele-Shaw</b>	<b>45</b>
3.1 Régime dispersif . . . . .	48
3.2 Régime advectif . . . . .	52
3.3 Echantillons stables : mise en évidence d'un régime advectif et d'un régime dispersif . . . . .	55
3.3.1 Critère de Taylor . . . . .	57
3.3.2 Détermination du coefficient de diffusion . . . . .	59
3.3.3 Temps caractéristique de la transition entre régime ad- vectif et régime dispersif . . . . .	63
3.3.4 Régime advectif . . . . .	63

<i>TABLE DES MATIÈRES</i>	7
3.3.5 Simulations du cas advectif . . . . .	64
3.4 Effet de la taille de l'échantillon . . . . .	66
3.5 Effet de l'épaisseur de la cellule . . . . .	70
3.6 Conclusions . . . . .	71
<b>4 Effets de densité</b>	<b>73</b>
4.1 Etude paramétrique . . . . .	76
4.1.1 Effet de la différence de densité et de la vitesse d'injection	77
4.1.2 Effet de l'épaisseur de la cellule . . . . .	78
4.2 Largeur de l'interface . . . . .	80
4.3 Minimisation des effets de densité . . . . .	82
4.4 Conclusion . . . . .	82
<b>5 Digitation visqueuse...</b>	<b>85</b>
5.1 La digitation visqueuse d'échantillons finis . . . . .	85
5.1.1 Echantillons initialement rectangulaires déplacés linéairement . . . . .	86
5.1.2 Echantillons initialement circulaires déplacés linéairement . . . . .	93
5.2 Résultats expérimentaux . . . . .	94
5.2.1 Dynamique de digitation . . . . .	94
5.2.2 Analyse quantitative . . . . .	102
5.3 Conclusions . . . . .	113
<b>6 Digitation visqueuse induite...</b>	<b>115</b>
6.1 Effet de la concentration en colorant . . . . .	121
6.2 Hauts débits $Q > 0.1$ ml/s . . . . .	124
6.3 Bas débits $Q < 0.05$ ml/s . . . . .	128
6.3.1 Effet du débit d'injection . . . . .	130
6.3.2 Effet des variations de concentration avec $\phi = 1$ . . . . .	130
6.3.3 Effet des variations de concentration lorsque $\phi \neq 1$ . . . . .	133
6.4 Conclusions . . . . .	136
<b>Discussion et perspectives</b>	<b>138</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>142</b>

---

## AVANT-PROPOS

---

L'instabilité « de digitation visqueuse » apparaît lorsque, dans un milieu poreux, un liquide est déplacé par un autre liquide moins visqueux : pour un gradient de pression donné, l'interface entre les deux liquides se déstabilise et forme des « doigts ». L'amplitude de l'instabilité et les motifs qu'elle engendre dépendent de la nature des fluides, de la géométrie de l'écoulement et des propriétés du milieu poreux (Homsy, 1987; Saffman et Taylor, 1958a).

De nombreux travaux théoriques et expérimentaux se sont consacrés à l'étude de cette instabilité tant comme paradigme d'instabilité source de brisure de symétrie et génératrice de structures spatio-temporelles complexes qu'à cause de son importance pour des applications de l'ingénierie du pétrole par exemple. La quasi majorité de ces études s'est focalisée sur l'analyse de la déstabilisation d'une interface entre deux fluides miscibles ou immiscibles. Plus le rapport entre la viscosité du fluide injecté et celle, plus élevée, du fluide déplacé est important, plus le système est instable. De même, le système est d'autant plus instable que la vitesse d'injection est augmentée. Selon que les fluides en présence sont miscibles ou non, la diffusion ou la tension de surface fournissent le mécanisme stabilisant qui participe à fixer la longueur d'onde du motif de digitation lors de la naissance de l'instabilité. Dans le régime non linéaire, la digitation se caractérise par des dynamiques complexes d'écrantage ou de fusion entre les doigts voire dans certains cas, par des phénomènes de « tip splitting » par lesquels un doigt devenu suffisamment large se scinde en deux doigts plus petits.

Dans ce cadre, deux courants de recherche se développent actuellement dans les travaux consacrés à la digitation visqueuse : l'étude de la digitation d'échantillons de taille finie et l'analyse de phénomènes de digitations dans des systèmes réactifs.

Dans le cas de systèmes de taille finie, il ne s'agit plus d'examiner la dynamique d'une seule interface entre deux zones semi infinies de viscosité différente mais bien la digitation d'une des deux interfaces délimitant une zone de viscosité donnée et d'extension spatiale finie plongée dans un environnement

de viscosité différente. L'intérêt pour l'étude de cette configuration particulière de taille finie est lié au fait que cette situation connaît des applications importantes. En effet, la digitation visqueuse d'échantillons de taille finie se produit par exemple lors du déplacement dans des milieux poreux de zones localisées d'une solution donnée par un fluide de viscosité différente dans des réacteurs industriels et en chromatographie ou lors de la contamination des sols par certains polluants (De Wit *et al.*, 2005).

Dans le cadre de la chromatographie, on injecte dans une colonne emplie d'une matrice poreuse un volume fini d'un mélange de composés à séparer que l'on déplace par un fluide appelé éluant. La dispersion et l'interaction sélective de chaque constituant du mélange avec la matrice poreuse fait que chaque composé a un temps de passage à travers la colonne qui lui est propre ce qui mène *in fine* à la séparation des composés. On peut ainsi récolter à la sortie de la colonne les différents constituants du mélange l'un à la suite de l'autre. L'efficacité de la séparation est liée à l'obtention successivement en fin de colonne de chacun des composés du mélange sous sa forme la plus pure possible ce qui implique de minimiser le recouvrement des pics de concentration en sortie. Tout phénomène menant à un accroissement de l'étalement dans l'espace de la zone couverte dans la colonne par un composé donné est de ce fait nuisible à la qualité de la séparation. Or, dans plusieurs types de chromatographies, les échantillons considérés sont des mélanges concentrés de molécules de poids moléculaires importants. Ces échantillons sont dès lors nettement plus visqueux que l'éluant et la digitation visqueuse apparaît à l'interface où l'éluant moins visqueux déplace l'échantillon plus visqueux. Cette digitation cause une distorsion et un élargissement des pics néfastes pour la qualité de la séparation.

Dans le cas de la contamination des sols, si le polluant a une viscosité différente de celle de l'eau par exemple (ce qui est typiquement le cas pour des rejets d'hydrocarbures ou d'huiles), la digitation va apparaître si ces polluants sont déplacés par un fluide vecteur moins visqueux. Ceci empêche l'interface eau-polluant de rester plane et accentue l'étalement de la zone de contamination. Dans la mesure où la viscosité de solutions contaminantes est presque toujours différente de celle de l'eau, la digitation est un phénomène d'amplification de la pollution des nappes aquifères quasi inévitable mais cependant largement ignoré dans la littérature.

Dans ces applications écologiquement et industriellement importantes, il est donc crucial de comprendre l'élargissement au cours du temps des zones de digitation afin d'en limiter l'impact ou pour améliorer les rendements de séparation. Or l'influence de la digitation est très difficile à quantifier par des mesures *in situ* puisque les milieux poreux sont par nature opaques, d'où la nécessité d'études théoriques et d'expériences modèles en laboratoire.

Dans ce cadre, des études numériques ont étudié la digitation d'un échantillon rectangulaire de largeur finie d'un fluide plus visqueux déplacé par un fluide miscible moins visqueux dans un système bidimensionnel (De Wit *et al.*, 2005; Mishra *et al.*, 2008). Ces travaux ont quantifié numériquement la contribution de la digitation à la variance du profil de concentration moyenné sur la largeur de la cellule au cours du temps et ce en fonction des paramètres du problème. Il a été montré qu'effectivement, la digitation augmente drastiquement l'étalement dans le temps et l'espace de ces échantillons. Un de nos objectifs sera d'obtenir une vérification expérimentale quantitative de ces prédictions.

En parallèle, se développe actuellement un intérêt pour l'étude de la digitation induite par des réactions chimiques. La question qui se pose est de savoir si une réaction aussi simple que  $A + B \rightarrow C$  où les trois espèces ont des viscosités différentes est susceptible de générer la digitation. Dans ce contexte, des travaux expérimentaux (Podgorski *et al.*, 2007) et théoriques (Gérard et De Wit, 2009) ont étudié le cas où l'on déplace une solution aqueuse d'un réactif  $B$  par une solution aqueuse d'un réactif  $A$ , les deux solutions ayant la même viscosité. Une fois les deux fluides mis en contact, la réaction a lieu et forme un produit  $C$  plus visqueux. La digitation visqueuse est donc, dans ce cas, induite par une réaction chimique. L'analyse de ce système montre que le motif de digitation visqueuse est différent selon que  $A$  envahit  $B$  ou l'inverse, observation encore peu comprise à ce jour.

Dans ce cadre, notre thèse poursuit comme première finalité l'étude expérimentale de la digitation visqueuse dans le cas d'échantillons de taille finie déplacés dans un milieu poreux. Pour ce faire, nous avons utilisé un modèle de laboratoire qui consiste en une cellule de Hele-Shaw, c'est-à-dire deux plaques de verre séparées par un interstice très fin entre lesquelles on déplace des fluides. Moyennant certaines hypothèses simplificatrices, on peut en effet montrer qu'une cellule de ce type est un modèle bidimensionnel de milieu poreux (Homsy, 1987). La description du dispositif expérimental ainsi que du post-traitement appliqué aux résultats bruts issus de l'expérience fait l'objet du chapitre 2. En particulier, nous cherchons à caractériser la contribution de la digitation à l'étalement dans l'espace de ces échantillons finis, ce qui nécessite de déterminer la contribution de la dispersion à cet étalement.

Tout d'abord, nous avons étudié la dynamique observée dans la cellule de Hele-Shaw pour le cas d'un échantillon stable pour la digitation visqueuse (c'est-à-dire d'un échantillon de même viscosité que le fluide vecteur). En effet, afin d'isoler la contribution de la digitation visqueuse dans un cas instable, nous devons d'abord connaître les propriétés de l'étalement dans un cas stable. Nous avons donc mené une étude de la dispersion dans la cellule de Hele-Shaw et montré la transition entre un régime dispersif et un régime

purement advectif sur l'échelle de temps de nos expériences, en fonction de la vitesse d'injection. Nous avons également étudié des effets apparaissant dans la cellule liés à la différence de densité entre les deux fluides. Ces questions sont abordées dans les chapitres 3 et 4.

Ensuite, nous avons étudié expérimentalement l'étalement d'échantillons initialement circulaires déplacés par un fluide moins visqueux lorsque ceux-ci sont déformés par la digitation. Nous avons caractérisé l'effet de la variation de la vitesse d'injection et du rapport de viscosités sur la dynamique de digitation. Afin de quantifier l'influence de la digitation sur l'étalement des échantillons, nous avons extrait l'évolution temporelle du périmètre et de l'aire de surfaces d'isoconcentration obtenues à partir des données expérimentales. Le chapitre 5 de cette thèse est consacré à ce problème.

Enfin, nous avons consacré nos travaux au cas de la digitation induite par réaction chimique à l'interface entre deux solutions réactives déplacées linéairement dans une cellule de Hele-Shaw. Les deux solutions ont la même viscosité mais contiennent chacune un réactif différent d'une réaction  $A + B \rightarrow C$  dont le produit  $C$  a une viscosité qui est supérieure à celles des solutions de  $A$  et de  $B$ . Nous avons étudié l'effet des paramètres expérimentaux (concentrations en  $A$  et  $B$ , vitesse d'injection, choix du fluide vecteur) sur la dynamique et mis en évidence une grande diversité de motifs obtenus. En particulier, pour des concentrations en  $A$  et  $B$  fixées, le choix du fluide vecteur a une influence prépondérante sur le motif observé : deux types de motifs très différents sont obtenus selon que  $A$  est injecté dans  $B$  ou l'inverse. Nous avons montré dans ce cadre qu'en fixant le choix du fluide vecteur et la concentration d'un des réactifs et en variant la concentration de l'autre, il est possible de passer d'un type de motif à l'autre. Cette dernière problématique est abordée dans le sixième et dernier chapitre de cette thèse.

Avant de détailler ces travaux, nous commencerons par introduire dans le premier chapitre le phénomène de digitation visqueuse et par décrire plus en détail les applications susmentionnées.

---

# LA DIGITATION VISQUEUSE

---

Depuis le début du XX<sup>ème</sup> siècle, de nombreux travaux de recherche appliquée se focalisent sur l'étude de la seconde phase d'extraction du pétrole<sup>1</sup>, qui consiste en l'injection d'un fluide (généralement de l'eau) permettant de « pousser » le pétrole présent dans un gisement vers le puits d'extraction (Kidder, 1956; Muskat et Wyckoff, 1935). Une des difficultés posée par cette technique est le phénomène du « *water coning* » : l'eau introduite dans le gisement forme des cônes qui pénètrent la nappe de pétrole jusqu'au puits d'extraction (cfr. Fig.1.1), ce qui diminue largement la quantité de pétrole récupérable (Porges, 2006). En 1956, Sir Geoffrey Ingram Taylor (1886-1975), éminent membre de la Royal Society et professeur chargé de recherches à Cambridge, visite la *Humble Oil Company*. Les pétroliers lui indiquent à cette occasion qu'ils sont confrontés à ce problème pour le moins complexe (Saffman, 1986).

Suite à cela, Taylor, rejoint par Philip Geoffrey Saffman (1931–2008), passe plusieurs années à analyser les caractéristiques du déplacement de deux fluides de viscosités différentes dans des milieux poreux. Ils identifient un mécanisme contribuant au moins partiellement au « *water coning* » : lorsqu'un fluide visqueux est déplacé par un fluide moins visqueux dans un milieu poreux, leur interface devient instable et, le fluide le moins visqueux se déplaçant plus vite pour un gradient de pression donné, cette interface forme des « doigts ». Ce phénomène d'instabilité est depuis connu sous le nom de *digitation visqueuse*. Dans le cas spécifique de deux fluides immiscibles, le phénomène est également qualifié « d'instabilité de Saffman-Taylor » (Batchelor, 1976; Lindner, 2000).

---

1. Au début de la production, le pétrole jaillit spontanément du puits : c'est la phase d'extraction « primaire » (Raymond et Leffler, 2005). En 2006, 40% des réserves mondiales étaient exploitées par extraction primaire et près de 60% par extraction secondaire (IFP, 2006).

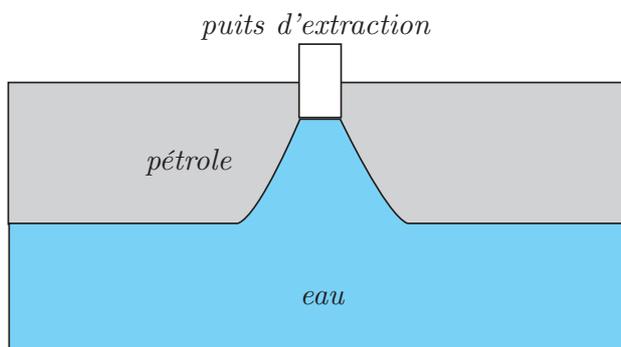


FIGURE 1.1 – Représentation schématique du phénomène de *water coning* dans un puits d'extraction. D'après Porges (2006).

Et pourtant, les premières études systématiques concernant la digitation visqueuse sont bien antérieures à la visite historique de Taylor dans une compagnie pétrolière ! S. Hill fut en effet le premier, dès 1952, à réaliser une série d'expériences de digitation<sup>2</sup>. Hill travaillait en tant qu'ingénieur dans les laboratoires de recherche du sucrier Tate & Lyle situés dans le Kent au Royaume-Uni. Une des techniques de raffinage utilisée à l'époque consiste, juste avant de cristalliser le sucre, à déplacer des liqueurs très diluées dans des colonnes emplies de charbon. Au cours du temps, un dépôt se forme, qui diminue l'efficacité du filtrage. Afin de « nettoyer » la matrice de charbon de ce dépôt (constitué d'une solution extrêmement visqueuse de sucrose), de l'eau est injectée dans la colonne. La forme de la courbe de concentration en sucrose enregistrée en sortie de la colonne au cours de cette opération ne suit pas une marche parfaite : elle apparaît clairement déformée par la digitation visqueuse se produisant à l'interface entre l'eau et l'eau sucrée (Hill, 1952). En déplaçant des liqueurs colorées de sucre par de l'eau dans des colonnes emplies de billes de verre (Hill, 1952; Homsy, 1987), Hill fut le premier à photographier l'apparition de la digitation visqueuse et à étudier les conditions d'apparition du phénomène (qu'il qualifiait de *channeling*). Il fut également le premier à expliquer physiquement le développement de l'instabilité dans un milieu poreux.

Pour rappel, dans un milieu poreux, c'est-à-dire dans un morceau de solide comprenant des cavités ou pores qui peuvent être soit interconnectés soit isolés (Guyon *et al.*, 2001), Henry Philibert Gaspard Darcy (1803–1858), ingénieur à l'origine du système de distribution d'eau de la ville de Dijon

2. Comme le note G. Homsy, en toute rigueur historique, il faudrait appeler la digitation visqueuse « instabilité de Hill » (Homsy, 1987).

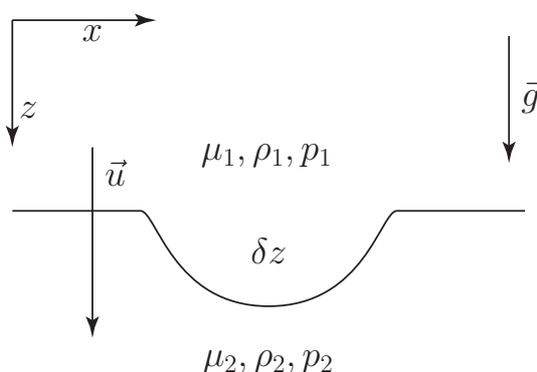


FIGURE 1.2 – Représentation schématique d'un déplacement instable.

(Tarbé de St.-Hardouin, 1884), a montré expérimentalement<sup>3</sup> que la vitesse moyenne  $U$  de l'écoulement d'un fluide varie linéairement avec le gradient de pression  $\vec{\nabla}p$  appliqué aux bords du système (Darcy, 1856). Dans un cas tridimensionnel et en tenant compte de la gravité, la loi de Darcy s'écrit comme (Guyon *et al.*, 2001; De Wit, 2003)

$$\vec{\nabla}p = -\frac{\mu}{K}\vec{u} + \rho\vec{g} \quad (1.1)$$

où  $K$  est la perméabilité du milieu poreux,  $\mu$  la viscosité du fluide,  $\rho$  sa densité.

Cette loi implique que pour un gradient de pression  $\vec{\nabla}p$  fixé, plus la perméabilité du milieu augmente, plus un fluide de viscosité fixée s'écoule rapidement. De plus, toujours en fixant le gradient de pression et pour un milieu de perméabilité  $K$  fixé, les fluides moins visqueux s'écoulent plus rapidement.

Sur base de la loi de Darcy (1.1), Hill propose l'explication suivante permettant de comprendre l'origine physique de la digitation visqueuse : on considère l'interface entre deux fluides de viscosités et densités différentes (Fig. 1.2) et un flux de vitesse moyenne  $U$  déplaçant les fluides dans la direction  $z$  suivant la loi de Darcy à une dimension,

$$\frac{dp}{dz} = -\frac{\mu}{K}U + \rho g. \quad (1.2)$$

Supposons qu'une petite perturbation d'épaisseur  $\delta z$  se développe à l'interface entre les deux fluides. Cette perturbation pourra croître et l'interface

---

3. En 1855, Darcy dirigea à Dijon une série de 35 expériences au cours desquelles il fit pour chaque expérience couler de l'eau avec un débit fixé dans l'intervalle entre 2.13 et 29.4 l min<sup>-1</sup>, au travers d'une colonne de 2.5 m de haut et de 0.35 m de diamètre emplies de grains de sable de la Saône (Darcy, 1856). Il en découla la loi (1.1) qui porte aujourd'hui son nom.

sera déstabilisée lorsque la pression sous l'interface  $p_2$  sera inférieure à la pression sur l'interface  $p_1$ , c'est-à-dire lorsque  $p_1 - p_2 > 0$  (Hill, 1952; Homsy, 1987). En utilisant (1.2), on peut écrire cette condition comme suit :

$$p_1 - p_2 = -\frac{(\mu_1 - \mu_2)}{K}U\delta z + g(\rho_1 - \rho_2)\delta z > 0. \quad (1.3)$$

Si la densité des deux fluides est identique, la digitation visqueuse apparaîtra lorsque  $\mu_1 < \mu_2$ . Dans le cas de fluides de viscosité identique mais de densité différentes, si  $\rho_1 > \rho_2$  — c'est-à-dire dans le cas d'un fluide « lourd » au dessus d'un fluide « léger » — l'interface sera déstabilisée par la digitation de densité (ou digitation de Rayleigh-Taylor). Si les deux effets sont simultanément stabilisants ou déstabilisants, l'interface sera respectivement plane ou déstabilisée. Si l'un des deux effets est déstabilisant et l'autre est stabilisant, alors il existe une vitesse critique

$$U_c = \frac{\rho_2 - \rho_1}{\mu_1 - \mu_2}gK \quad (1.4)$$

au-delà de laquelle l'instabilité apparaît.

Plus le rapport  $\mu_2/\mu_1$  est grand pour  $U$  fixé ou plus  $U$  augmente pour un rapport  $\mu_2/\mu_1$  fixé, plus le système est instable. Si les fluides sont immiscibles, la tension de surface va aider à stabiliser l'interface entre les deux fluides. Dans le cas miscible, c'est la diffusion moléculaire qui va jouer ce rôle stabilisant. Dans les deux cas, la longueur d'onde du motif de digitation visqueuse observé résulte d'un compromis entre mécanisme déstabilisateur lié au contraste de viscosités et mécanisme stabilisant. Dans notre cas, nous considérerons uniquement des fluides miscibles.

La fig. 1.3 montre un exemple expérimental de digitation visqueuse en cellule de Hele-Shaw (qui, comme nous le discutons ci-après, peut être considérée comme un analogue bidimensionnel des milieux poreux).

## 1.1 La digitation visqueuse de fluides miscibles

Dans le cas d'une interface entre deux fluides miscibles, la digitation visqueuse peut être induite par un gradient de concentration si la concentration en un soluté  $c(x, y, z, t)$  détermine la viscosité  $\mu = \mu(c)$  des fluides en présence. Le soluté subit la diffusion moléculaire et est transporté par le flux dans le milieu poreux ou la cellule de Hele-Shaw. Dès lors le champ de concentration obéit à une équation d'advection-diffusion

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \vec{u} \cdot \vec{\nabla} c = D_m \vec{\nabla}^2 c \quad (1.5)$$

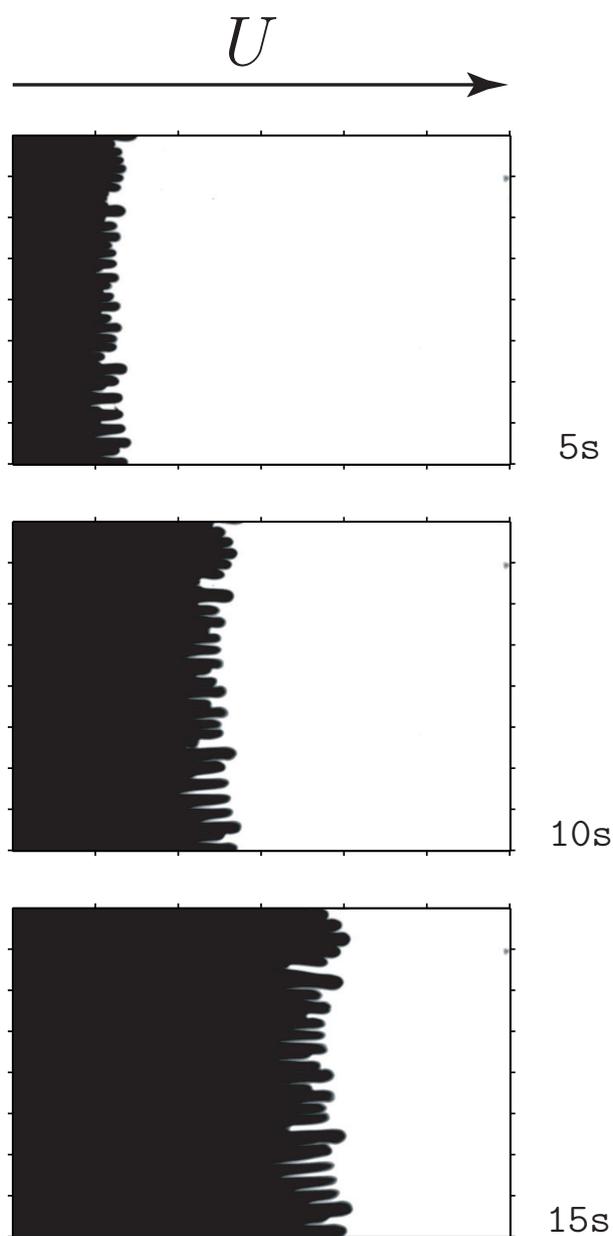


FIGURE 1.3 – Digitation visqueuse en cellule de Hele-Shaw : évolution de l'interface entre de l'eau teintée (en noir) et une solution contenant 70% de glycérol (en blanc). Le rapport logarithmique de viscosités correspondant est  $R = \ln(\mu_2/\mu_1) = 1.35$ . La zone considérée est large de 10 cm et longue de 14 cm. L'épaisseur de l'interstice entre les plaques de la cellule est  $e_z = 0.25$  mm. La vitesse d'injection est  $U = 5$  mm/s.

où  $D_m$  est le coefficient de diffusion moléculaire. Les deux autres équations gouvernant le problème sont la loi de Darcy, qui peut s'écrire (en négligeant l'effet de la gravité) comme

$$\vec{\nabla} p = -\frac{\mu(c)}{K} \vec{u} \quad (1.6)$$

et l'équation d'incompressibilité

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{u} = 0. \quad (1.7)$$

On peut définir deux paramètres adimensionnels caractérisant le problème (Homsy, 1987).

Le premier paramètre important du problème est le rapport logarithmique des viscosités,

$$R = \ln \left( \frac{\mu_2}{\mu_1} \right) \quad (1.8)$$

où  $\mu_1$  est la viscosité du fluide vecteur (c'est-à-dire du fluide injecté) et  $\mu_2$  la viscosité du fluide déplacé. La digitation visqueuse apparaît dès que  $\mu_2 > \mu_1$  et donc dès que  $R > 0$ . Plus  $R$  augmente, plus le système est instable. Le second paramètre est le nombre de Péclet  $Pe$  qui quantifie le rapport entre effets advectifs et diffusifs, donné par

$$Pe = \frac{U\ell}{D_m} \quad (1.9)$$

où  $U$  est la vitesse moyenne du flux et  $\ell$  est une longueur caractéristique du système (dans le cas d'une cellule de Hele-Shaw, on utilise souvent l'épaisseur de l'interstice entre les plaques). Dans le cas de fluides miscibles, la digitation visqueuse sera contrebalancée par la diffusion moléculaire, qui agira comme mécanisme stabilisant. Plus la vitesse moyenne du flux augmente pour  $D_m$  fixé à  $R > 0$  — et donc, plus  $Pe$  sera important, plus le système est instable.

Les travaux expérimentaux de Hill (1952) mettent déjà en évidence les effets de ces deux paramètres, effets confirmés à l'occasion de travaux ultérieurs (Slobod et Thomas, 1963; Benham et Olson, 1963; Perkins *et al.*, 1965; Tan et Homsy, 1986; Bacri *et al.*, 1991, 1992; Petitjeans *et al.*, 1999; Vedernikov *et al.*, 2001). Plus  $Pe$  augmente, plus le système est instable : les « doigts » sont plus fins, plus nombreux et apparaissent plus tôt. De même, plus  $R$  augmente, plus les doigts sont sujets à une instabilité secondaire dite de « *tip-splitting* » : chaque doigt se divise pour donner naissance à plusieurs nouveaux doigts.

## 1.2 Quelques applications

Les hydrocarbures se forment dans des roches par dégradation de matières organiques dans un environnement déficient en oxygène. Ces roches sont souvent des matériaux perméables et poreux. L'extraction de pétrole de roches poreuses peut se réaliser, comme mentionné précédemment, en injectant de l'eau dans ces roches, de manière à pousser le pétrole hors de la roche (Saffman et Taylor, 1958a). Le phénomène de digitation empêche dans ce cas, la récupération optimale du pétrole (Holm, 1986; Petitjeans *et al.*, 1999). En effet, ce phénomène augmente significativement le mélange du pétrole et de l'eau, diminuant la quantité de pétrole pur que l'on peut extraire et donc le rendement de l'extraction. Ceci explique pourquoi de nombreux travaux relatifs à l'étude de la digitation d'une interface entre deux fluides ont été publiés dans les revues liées à l'ingénierie de l'extraction du pétrole. Au-delà de cet exemple « historique », le phénomène de digitation visqueuse intervient dans de nombreuses applications et les citer toutes dépasse de loin le cadre de cette thèse. Nous nous intéresserons dans cette thèse plus particulièrement au cas de la digitation d'échantillons de taille finie pour lesquels un volume fini d'un composé de viscosité  $\mu_2$  est déplacé par un fluide vecteur  $\mu_1$ . Cette situation se rencontre en particulier dans deux domaines dans lesquels la digitation joue un rôle crucial : la chromatographie en phase liquide et les problèmes de dépollution.

### 1.2.1 Application à la chromatographie

La chromatographie est une technique de séparation dans laquelle un échantillon contenant un mélange de plusieurs espèces est entraîné par un courant de phase mobile (liquide, gaz) - appelée « éluant », le long d'une phase stationnaire (papier, gélatine, silice, polymère, etc.). Chaque espèce se déplace à une vitesse propre dépendant de ses caractéristiques et de celles des deux phases (Miller, 2005). Dans le cas de la chromatographie en phase liquide, on utilise fréquemment une colonne remplie de billes de silice, dont l'empilement dans la colonne forme un milieu poreux. Lorsqu'un échantillon composé d'un mélange de plusieurs « analytes » est introduit dans la colonne et y est déplacé par l'injection de l'éluant au travers du milieu poreux, lesdits analytes voyagent avec des vitesses propres en fonction de leurs interactions avec la matrice et l'éluant ou du temps de transit dans les pores. Autrement dit, ils se séparent progressivement (Smith, 1988; Miller, 2005). Plus l'analyte restera longtemps dans la colonne et plus le pic de concentration détecté à la sortie de la colonne sera large, car la diffusion moléculaire aura eu plus le temps d'agir.

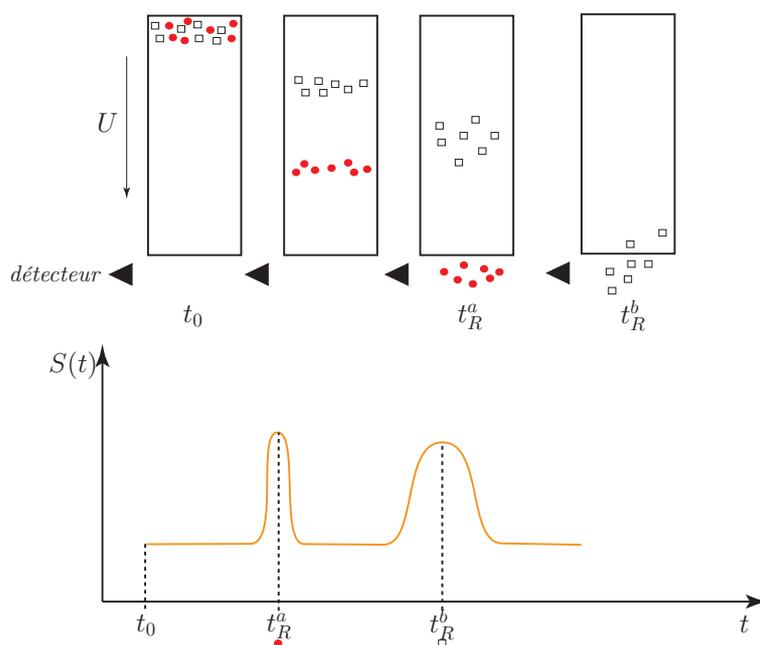


FIGURE 1.4 – Principe de la chromatographie.  $S(t)$  est le signal enregistré par le détecteur au cours du temps. D’après [Smith \(1988\)](#).

Cette méthode de séparation est utilisée depuis le Moyen-Âge dans le cadre des techniques de vinification et dans la préparation de pigments destinés à la peinture, même si la première étude scientifique du procédé est parue en 1906 ([Smith, 1988](#)). Elle est due au botaniste russe Mikhaïl Tswett (1872–1919) et consiste en une séparation des pigments d’une feuille d’épinard. Tswett déposait dans une colonne remplie d’une poudre de carbonate de calcium un échantillon composé du mélange de pigments végétaux dissous dans de l’éther de pétrole. L’échantillon était adsorbé au sommet de la colonne et l’adjonction continue du solvant pur au sommet de la colonne provoquait la migration, du haut vers le bas, de plusieurs bandes colorées vertes et jaunes à des vitesses qui leur étaient propres ([Smith, 1988](#); [Miller, 2005](#)). Depuis cette époque, les techniques ont évidemment évolué, notamment en ce qui concerne la sélectivité des techniques de séparations dans la colonne, la taille des colonnes, la vitesse d’injection de l’éluant, etc. Les applications industrielles nécessitent des procédés de plus en plus rapides et idéalement des échantillons de plus en plus concentrés.

Si l’on place un détecteur à la sortie de la colonne, on enregistre une succession de profils de concentration sous forme de pics de type gaussien (Fig.1.4) L’efficacité du procédé dépend de deux facteurs : la *largeur des pics* et la *distance entre les pics*, vu qu’il convient d’une part d’éviter qu’une

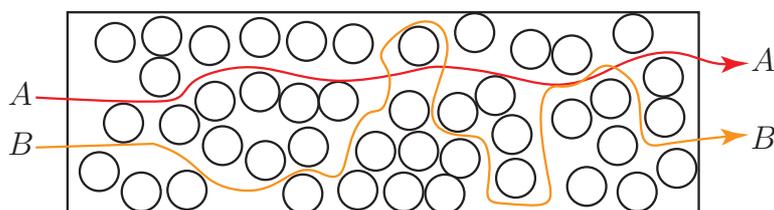


FIGURE 1.5 – Diffusion de tourbillon. Le temps mis pour parcourir le chemin  $A$  étant plus court que le temps nécessaire pour suivre le chemin  $B$ , on observera un élargissement du pic dû au fait que des fractions différentes de l'analyte vont suivre chacune l'un des deux chemins.

partie du mélange soit « non-résolue », c'est-à-dire que les pics se recouvrent, et d'autre part de limiter la dispersion de l'échantillon au sein de l'éluant pour faciliter sa récupération en sortie de la cellule (Smith, 1988).

Pour mesurer l'efficacité d'un chromatogramme, c'est-à-dire l'élargissement des pics dû au passage dans la colonne, les chimistes spécialisés dans ce domaine utilisent la notion de *nombre de plateaux*,

$$n \equiv \left( \frac{t_R}{\sigma} \right)^2 \quad (1.10)$$

où  $t_R$  est le temps de rétention de l'analyte, c'est-à-dire le temps entre l'injection de l'échantillon et l'apparition du pic au niveau du détecteur et  $\sigma$  est l'écart-type du pic (supposé gaussien) enregistré par le détecteur à la sortie de la colonne.

Afin de comparer des colonnes de longueurs différentes, on utilise également la notion de *hauteur équivalente à un plateau théorique*, définie par

$$H \equiv \frac{L}{n} \quad (1.11)$$

où  $L$  est la longueur de la colonne (Smith, 1988; Miller, 2005).

Plusieurs effets connus contribuent à l'élargissement des pics à savoir la diffusion de tourbillon (« eddy diffusion ») qui tient compte des différents chemins possibles dans le milieu poreux (fig. 1.5), la diffusion moléculaire et les transferts de masse (sorption et désorption) entre l'échantillon et la phase stationnaire (en l'occurrence, le milieu poreux).

En règle générale, les trois effets contribuent de concert à l'augmentation de  $H$ . Des études empiriques et théoriques menées par van Deemter *et al.* (1956) ont montré que l'on peut résumer ces effets par l'équation suivante :

$$H = \alpha + \frac{\beta}{U} + \gamma U \quad (1.12)$$

où  $U$  est la vitesse moyenne d'écoulement de l'éluant,  $\alpha$  est lié à la diffusion de tourbillon,  $\gamma U$  aux transferts de masse et  $\frac{\beta}{U}$  à la diffusion. Le terme  $\beta$  peut être exprimé comme

$$\beta = 2DL\kappa \quad (1.13)$$

où  $D$  est un coefficient de diffusion (scalaire) et  $\kappa$  un facteur dit de « tortuosité » lié à la géométrie du milieu remplissant la colonne.

Un quatrième effet peut cependant contribuer à l'élargissement des pics dans le cas d'échantillons plus visqueux poussés par des éluants moins visqueux : la digitation visqueuse. En effet, celle-ci augmente la dispersion de l'échantillon et le terme (1.13) de diffusion de l'équation de van Deemter (1.12) nécessite d'être corrigé pour tenir compte de cet effet (Fernandez *et al.*, 1995; Norton et Fernandez, 1996; Broyles *et al.*, 1998; De Wit *et al.*, 2005; Catchpoole *et al.*, 2006; De Malsche *et al.*, 2009).

Comme le discutent De Wit *et al.* (2005), la digitation visqueuse joue un rôle particulièrement négatif dans certaines méthodes chromatographiques telle que la chromatographie dite « préparative ». En effet, dans ce cas, les échantillons — souvent des mélanges de polymères ou de molécules organiques de hauts poids moléculaires — sont fortement concentrés, ce qui implique une viscosité nettement plus élevée que celle du fluide porteur et donc un contraste de viscosités  $R$  non-négligeable. Les pics sont en général fortement distordus lorsque la digitation visqueuse apparaît, comme plusieurs auteurs l'ont souligné (Fernandez *et al.*, 1995; Broyles *et al.*, 1998; De Wit *et al.*, 2005). Cette distorsion des pics diminue largement l'efficacité de la séparation. Des travaux récents ont étudié l'influence de paramètres tels que le rapport de viscosité sur la distorsion des pics (Catchpoole *et al.*, 2006; Mayfield *et al.*, 2005; De Malsche *et al.*, 2009) : pour un débit d'éluant fixé, plus le contraste de viscosités entre l'éluant et l'échantillon augmente — et donc plus le phénomène de digitation est important — plus le pic est étalé et asymétrique.

Dans le cadre de la chromatographie, plusieurs travaux ont tenté de visualiser *in situ* le phénomène de digitation, c'est-à-dire l'évolution de la migration des échantillons dans la colonne et par là d'étudier la dynamique des doigts. Deux techniques de visualisation sont généralement utilisées : une méthode indirecte utilisant la RMN (Dickson *et al.*, 1997) et une méthode directe, utilisant des colonnes transparentes emplies de billes possédant le même indice de réfraction que l'éluant (Shalliker *et al.*, 1998).

La seconde méthode possède une résolution nettement plus importante que la RMN et ne nécessite ni l'ajout d'additifs (généralement coûteux) ni un post-traitement du signal afin de reconstruire la situation réelle, raison pour laquelle plusieurs travaux la privilégient (Catchpoole *et al.*, 2006; Mayfield

*et al.*, 2005).

Pour autant, ces méthodes de visualisation ont comme principal désavantage de fournir des images bidimensionnelles d'un phénomène 3D. En effet, la visualisation intègre la dynamique dans la colonne cylindrique le long du champ de vision de sorte que ce qui est observé ne donne qu'une idée moyennée de la dynamique.

Vu l'importance économique des procédés de séparation par chromatographie dans l'industrie chimique et pharmaceutique, il est important de pouvoir quantifier la contribution de la digitation visqueuse à l'élargissement des pics en fonction des différents paramètres du problème. De Wit *et al.* (2005); Mishra *et al.* (2008) ont entamé cette étude d'un point de vue théorique. Se pose dès lors la question d'une vérification expérimentale aisée des prédictions théoriques. De Malsche *et al.* (2009) ont proposé une étude expérimentale dans le cas d'une cellule de 3 cm de long et de 1 mm de large, emplie d'une matrice de micro-pilliers de 5  $\mu\text{m}$  de diamètre, espacés par une distance de 2.5  $\mu\text{m}$ . Les contrastes de viscosités entre l'échantillon de viscosité fixée et le fluide vecteur plus ou moins visqueux que l'échantillon varient entre  $R = -0.18$  et  $R = 0.18$ , le volume de l'échantillon varie entre 3.0 nl et 32.7 nl. La vitesse de déplacement dans la cellule est fixée à 2 mm/s. Pour cette gamme de paramètres expérimentaux, De Malsche *et al.* (2009) observent l'apparition d'un doigt large à l'avant de l'échantillon lorsque celui-ci est moins visqueux que le fluide vecteur et à l'arrière dans le cas contraire. Pour des contrastes de viscosités importants, deux doigts plus petits apparaissent de part et d'autre du doigt central. Ils notent que le motif obtenu a un haut degré reproductibilité. Tant dans ces expériences que dans les prédictions théoriques, les effets hautement non-linéaires (comme le tip-splitting) n'apparaissent pas. Dans nos expériences, nous avons donc augmenté largement le rapport de viscosités et la vitesse d'injection par rapport aux travaux antérieurs et ce, afin de pouvoir étudier la contribution de ces effets à l'étalement de l'échantillon.

Mishra *et al.* (2007, 2009) ont étudié théoriquement le rôle de l'adsorption de l'échantillon par la matrice poreuse sur la dynamique de digitation. Ils montrent que l'adsorption sur la matrice peut réduire l'intensité de la digitation visqueuse et modifier fortement la déformation de l'échantillon au cours du temps par rapport au cas sans adsorption. Ceci montre l'importance de l'étude du cas réactif.

### 1.2.2 Applications à la contamination de nappes aquifères

Au cours des 50 dernières années, la pollution de nappes aquifères a réduit les réserves d'eau mondiales d'environ un tiers (Larbi Bouguerra, 1997). Ce constat a poussé de nombreux états à financer largement des programmes d'études de ces pollutions. Néanmoins ces études ont pour la plupart consisté en des travaux empiriques. La nécessité de modèles prédictifs demeure.

En hydrogéologie, un aquifère est défini comme « *une couche de terrain poreuse et perméable, contenant une nappe phréatique alimentant des ouvrages de production* » (Castany, 1982). Autrement dit, il s'agit d'un milieu poreux, traversé par un flux d'eau (percolant jusqu'à l'aquifère et ensuite extraite pour alimenter puits, captages, etc.).

Lors de contamination des aquifères, notamment par les hydrocarbures, la pollution causée est souvent limitée dans l'espace et le temps (De Wit *et al.*, 2005). Il s'agit donc d'échantillons de polluants de tailles finies de fluides et de viscosité donnée déplacés par un flux d'eau au travers d'un milieu poreux.

Dès qu'une différence de viscosité existe entre le fluide de l'échantillon et l'eau, le phénomène de digitation visqueuse peut intervenir et augmenter significativement l'étalement de la zone contaminée au cours du temps (Kretz *et al.*, 2003; Jiao et Hötzl, 2004; De Wit *et al.*, 2005). Afin de pouvoir contrôler cette pollution, il est crucial de pouvoir prédire l'évolution de l'étalement de l'échantillon et donc de comprendre dans quelle mesure la digitation visqueuse contribue à l'étalement des zones contaminées.

Cette application est cependant relativement peu étudiée dans la littérature scientifique, malgré son évident intérêt écologique. La difficulté de mesures *in situ* en est sans doute la cause. Ceci démontre l'intérêt d'études expérimentales contrôlées, développées en laboratoire afin de quantifier la contribution de la digitation à l'étalement d'échantillons de taille finie.

Le problème de la contribution de la digitation à l'étalement de zones de pollution dans les aquifères peut évidemment être élargi au cas plus général de fluides de viscosités différentes dans des sols poreux. De plus, si le contaminant réagit avec le fluide initialement présent dans un sol poreux, on peut se demander quel sera l'impact de cette réaction chimique sur l'évolution de l'étalement de la zone de contamination.

## 1.3 Objectifs de la thèse

Dans ce cadre, notre thèse a pour but l'étude expérimentale de la digitation visqueuse de fluides miscibles dans le cas de fluides non-réactifs d'une

part et l'étude de la digitation visqueuse induite par une réaction chimique d'autre part.

Dans le chapitre 2, nous décrivons le dispositif expérimental utilisé — en l'occurrence, une cellule de Hele-Shaw — et montrerons que ce dispositif peut être considéré comme l'analogie bidimensionnel d'un milieu poreux.

Dans le cas de la digitation visqueuse de fluides non-réactifs, dont l'étude constitue la première partie de cette thèse, notre but est de quantifier la contribution de la digitation à l'étalement d'échantillons fins.

Afin d'isoler la contribution de la digitation visqueuse, nous devons donc d'abord connaître l'étalement dû à la dispersion en l'absence de toute instabilité. Le chapitre 3 est donc consacré à l'étude de la dispersion dans la cellule de Hele-Shaw : nous montrerons la transition entre un régime dispersif et un régime purement advectif (où la diffusion moléculaire n'apparaît plus clairement) et proposerons un modèle pour ces deux régimes. Nous discuterons également des effets dus à une différence de densité entre les deux fluides.

Le quatrième chapitre est consacré à l'étude de la digitation visqueuse d'échantillons circulaires déplacés linéairement dans la cellule. Nous discuterons l'effet des paramètres expérimentaux (vitesses d'injection et rapport de viscosités) sur la dynamique de digitation. Afin de quantifier l'influence de la digitation, nous étudierons l'évolution temporelle du périmètre et de l'aire de surfaces d'isoconcentration obtenues à partir des données expérimentales.

Dans le cinquième et dernier chapitre de cette thèse, nous étudierons le cas où les deux fluides ont la même viscosité mais contiennent chacun un réactif différent d'une réaction simple  $A + B \rightarrow C$ . Une fois les deux fluides mis en contact, la réaction a lieu et forme un produit  $C$  dont la viscosité diffère fortement de celles des deux fluides de départ. La digitation visqueuse est donc, dans ce cas, induite par une réaction chimique. Pour ce système, nous avons étudié systématiquement l'effet de la concentration de chacun des réactifs, du choix du fluide vecteur et de la vitesse de déplacement.

---

## LA CELLULE DE HELE-SHAW

---

Afin d'étudier la digitation visqueuse de fluides miscibles, plusieurs dispositifs expérimentaux peuvent être envisagés. Ainsi, les travaux menés par Bacri *et al.* (1991, 1992) considèrent des milieux poreux tridimensionnels et mesurent l'évolution du champ de concentration par une technique acoustique. Fernandez *et al.* (1995, 1996) étudient le cas de colonnes emplies de billes et visualisent la digitation via l'imagerie par résonance magnétique nucléaire. Slobod et Thomas (1963) utilisent des plaques rugueuses et utilisent des rayons X pour mesurer l'évolution du champ de concentration. Enfin, les récents travaux menés dans le domaine de la chromatographie en phase liquide utilisent des colonnes emplies de billes dont l'indice de réfraction est identique à celui du fluide plus visqueux et visualisent la dynamique par des techniques optiques (Broyles *et al.*, 1998; Shalliker *et al.*, 1998, 2007a,b; Mayfield *et al.*, 2005; Catchpoole *et al.*, 2006; Shalliker et Guiochon, 2009). Dans leurs travaux récents, De Malsche *et al.* (2009) se focalisent sur le cas d'une cellule de très petite taille (1 mm de large et 3 cm de long) emplie de micro-pilliers parfaitement ordonnés et utilisent des additifs fluorescents et un microscope *ad hoc* pour visualiser la dynamique.

Ces travaux antérieurs ont permis une description de la dynamique de digitation. Cependant, les inconvénients de ces systèmes sont aussi nombreux : complexité de la technique de mesure, faible résolution (1 mm<sup>3</sup>) dans le cas de l'imagerie par RMN, difficulté de la reconstruction du champ de concentration 3D à partir des mesures, complexité de la détermination de la perméabilité des milieux poreux considérés, coûts de l'équipement, etc. Ces contraintes plaident pour l'utilisation d'un système modèle plus simple, tel la cellule de Hele-Shaw.

Une cellule dite « de Hele-Shaw » est composée de deux plaques de verre ou de plexiglas (Fig.2.1) séparées par un faible interstice d'épaisseur typique  $e_z$  nettement inférieure à la longueur  $L_x$  et la largeur  $L_y$  des plaques (Saffman

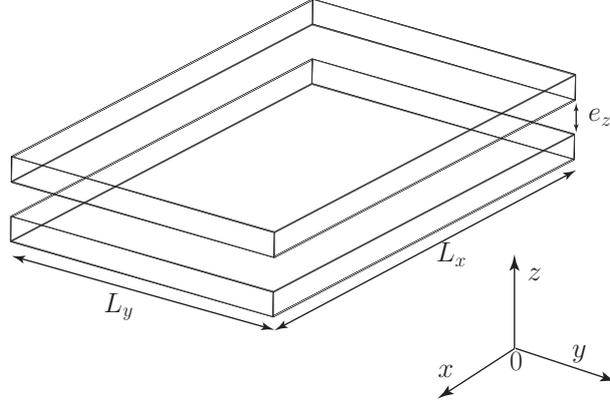


FIGURE 2.1 – Schéma d'une cellule de Hele-Shaw

et Taylor, 1958b; Guyon *et al.*, 2001; Felder, 2003).

A l'origine, ce type de cellules fut utilisé par Henry Selby Hele-Shaw (1854-1941) pour visualiser l'écoulement d'un fluide autour d'un obstacle (Hele-Shaw, 1898). En effet, elle permet une visualisation facile au travers des plaques et, pour un interstice suffisamment fin, la dynamique est à priori bidimensionnelle. Comme nous le verrons ci-dessous, une cellule de Hele-Shaw peut également servir de modèle de milieu poreux dans certaines limites, ce qui permet d'y étudier la digitation visqueuse. En effet, pour un interstice suffisamment faible, on peut considérer que l'écoulement dans la cellule est l'analogie « bidimensionnel » d'un écoulement dans un milieu poreux (Saffman et Taylor, 1958b; Homsy, 1987; De Wit, 2003).

Pour montrer cela, rappelons tout d'abord que l'équation de Navier-Stokes pour un fluide newtonien et incompressible de viscosité  $\mu$  et de densité  $\rho$  remplissant l'espace entre les deux plaques peut s'écrire comme suit

$$\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \vec{v} = -\frac{1}{\rho} \vec{\nabla} p + \nu \vec{\nabla}^2 \vec{v} + \vec{g} \quad (2.1)$$

où  $\vec{v} = (v_x, v_y, v_z)$  est le champ de vitesse tridimensionnel et  $\nu = \frac{\mu}{\rho}$  est la viscosité cinématique.

Supposons que  $\ell$  est l'échelle de longueur typique des variations de vitesses et que  $\vec{v}$  varie typiquement comme  $U$ , la vitesse d'injection du fluide entre les plaques. On a alors, pour le terme non-linéaire

$$\vec{v} \cdot \vec{\nabla} \vec{v} \approx \frac{U^2}{\ell} \quad (2.2)$$

et pour le terme visqueux

$$\nu \vec{\nabla}^2 \vec{v} \approx \frac{\nu U}{\ell^2}. \quad (2.3)$$

Le terme non-linéaire est négligeable par rapport au terme visqueux lorsque

$$\frac{U^2}{\ell} \ll \frac{\nu U}{\ell^2} \quad (2.4)$$

ce qui revient à imposer que le nombre de Reynolds

$$Re = \frac{U\ell}{\nu} \ll 1. \quad (2.5)$$

Pour les gammes de vitesses  $U$  caractéristiques des expériences de digitation et pour des interstices très fins, le nombre de Reynolds est effectivement très faible (Tritton, 1988; Guyon *et al.*, 2001; De Wit, 2003; Igonin, 2004). L'équation de Navier-Stokes se réduit, moyennant ces hypothèses, à l'équation suivante

$$\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = -\frac{1}{\rho} \vec{\nabla} p + \nu \vec{\nabla}^2 \vec{v} + \vec{g}. \quad (2.6)$$

Supposons dans un premier temps que le champ de vitesse est unidirectionnel dans la direction  $x$  du mouvement  $\vec{v} = (v_x, 0, 0)$ , que l'interstice d'épaisseur  $e_z$  est suffisamment fin pour que l'on puisse négliger l'effet de la gravité, que l'écoulement est laminaire et que le fluide ne glisse pas sur les bords des plaques, c'est-à-dire qu'aux bords, on a (Lindner, 2000; De Wit, 2003; Guyon *et al.*, 2001)

$$\begin{cases} \vec{v}(x, y, +\frac{e_z}{2}) = 0 \\ \vec{v}(x, y, -\frac{e_z}{2}) = 0 \end{cases} \quad (2.7)$$

où  $y$  est la direction transverse (orientée selon la largeur de la cellule) et  $z$  la direction perpendiculaire à la cellule (orientée selon l'épaisseur de l'interstice) de sorte que  $z = 0$  correspond au milieu de l'interstice et  $z = \pm e_z/2$  aux bords (Fig. 2.2). Pour un gradient de pression  $dp/dx$  fixé, le champ de vitesse adopte entre les plaques alors un profil parabolique de Poiseuille (Fig. 2.2), solution de l'équation de Navier-Stokes (2.6) :

$$v_x = -\frac{1}{2\mu} \frac{dp}{dx} \left( 1 - \frac{4z^2}{e_z^2} \right) \quad (2.8)$$

Revenons au cas d'un flux multidirectionnel. Pour autant que  $e_z$  soit suffisamment petit, on considérera le problème comme « quasi-bidimensionnel ». Afin de réduire l'équation (2.6) en conséquence, on utilise un opérateur de moyenne sur l'épaisseur de l'interstice, défini comme suit (De Wit, 2003) :

$$\langle \dots \rangle \equiv \frac{1}{e_z} \int_{-\frac{e_z}{2}}^{+\frac{e_z}{2}} dz \dots \quad (2.9)$$

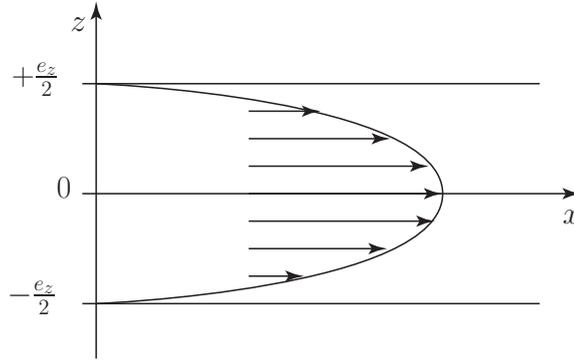


FIGURE 2.2 – Profil de Poiseuille pour un fluide déplacé entre deux plaques

Supposons que sur l'ensemble du domaine, la dépendance en  $z$  du flux soit fixée par un profil de Poiseuille :

$$\begin{cases} v_x(x, y, z, t) = F(z) u_x(x, y, t) \\ v_y(x, y, z, t) = F(z) u_y(x, y, t) \\ v_z(x, y, z, t) = 0 \end{cases} \quad (2.10)$$

où  $\vec{u} = (u_x, u_y)$  est un champ de vitesse bidimensionnel pour lequel on cherche à obtenir une équation d'évolution et où l'on a défini  $F$  comme suit :

$$F(z) \equiv \frac{3}{2} \left( 1 - \frac{4z^2}{e_z^2} \right) \quad (2.11)$$

le facteur  $3/2$  ayant été choisi de manière à ce que

$$\langle F \rangle = 1. \quad (2.12)$$

Dans ce cas, l'équation d'incompressibilité

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

se réduit en

$$\frac{\partial u_x}{\partial x} + \frac{\partial u_y}{\partial y} \equiv \vec{\nabla}_\perp \cdot \vec{u} = 0 \quad (2.14)$$

Appliquons sur chacun des termes de l'équation de Navier-Stokes (2.6) l'opérateur (2.9). La moyenne de la dérivée par rapport au temps de  $\vec{v}$  se déduit

aisément, en utilisant l'équation (2.12) :

$$\begin{aligned}
 \left\langle \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} \right\rangle &= \left\langle \frac{\partial v_x}{\partial t} \right\rangle \vec{1}_x + \left\langle \frac{\partial v_y}{\partial t} \right\rangle \vec{1}_y + \left\langle \frac{\partial v_z}{\partial t} \right\rangle \vec{1}_z \\
 &= \frac{\partial u_x}{\partial t} \langle F(z) \rangle \vec{1}_x + \frac{\partial u_y}{\partial t} \langle F(z) \rangle \vec{1}_y + 0 \vec{1}_z \\
 &= \frac{\partial u_x}{\partial t} \vec{1}_x + \frac{\partial u_y}{\partial t} \vec{1}_y \\
 &= \frac{\partial \vec{u}}{\partial t}
 \end{aligned} \tag{2.15}$$

De plus, puisque

$$\frac{\partial F}{\partial x}(z) = 0 = \frac{\partial F}{\partial y}(z) \tag{2.16}$$

et

$$\frac{\partial^2 F}{\partial z^2}(z) = -\frac{12}{e_z^2} \tag{2.17}$$

le terme de diffusion se sépare en deux contributions :

$$\begin{aligned}
 \langle \nu \vec{\nabla}^2 \vec{v} \rangle &= \nu \langle \vec{\nabla}^2 v_x \vec{1}_x + \vec{\nabla}^2 v_y \vec{1}_y + \vec{\nabla}^2 v_z \vec{1}_z \rangle \\
 &= \nu \left[ \left\langle \left( \vec{\nabla}_\perp^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) u_x F(z) \right\rangle \vec{1}_x + \left\langle \left( \vec{\nabla}_\perp^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) u_y F(z) \right\rangle \vec{1}_y + 0 \right] \\
 &= \nu \vec{\nabla}_\perp^2 \vec{u} - \frac{12\nu}{e_z^2} \vec{u}
 \end{aligned} \tag{2.18}$$

Dès lors, on obtient que l'équation de Navier-Stokes moyennée sur l'épaisseur de la cellule de Hele-Shaw peut s'exprimer comme

$$\frac{\partial \vec{u}}{\partial t} = -\frac{1}{\rho} \vec{\nabla} p + \nu \vec{\nabla}_\perp^2 \vec{u} - \frac{12\nu}{e_z^2} \vec{u} + \vec{g}. \tag{2.19}$$

Considérons un temps typique de friction

$$\tau_f \equiv \frac{e_z^2}{12\nu} \tag{2.20}$$

tel que le terme de friction de l'équation (2.19) puisse s'écrire

$$-\frac{12\nu}{e_z^2} \vec{u} = -\tau_f^{-1} \vec{u} \tag{2.21}$$

Vu que  $\tau_f$  est proportionnel à  $e_z^2$  et que l'interstice de la cellule est très fin, ce temps de friction est lui aussi très faible. Cela signifie que l'évolution du

champ de vitesses est rapide. On peut dès lors considérer que la solution stationnaire est très rapidement atteinte et donc que le champ de vitesse ne varie pas dans le temps (approximation quasi-statique).

Avec cette hypothèse, l'équation (2.19) devient l'équation suivante, appelée approximation de Brinkman :

$$-\frac{1}{\rho}\vec{\nabla}p + \nu\vec{\nabla}_{\perp}^2\vec{u} - \frac{12\nu}{e_z^2}\vec{u} + \vec{g} \approx 0 \quad (2.22)$$

Dans de nombreux systèmes, la longueur caractéristique  $\ell$  de variation des vitesses est nettement supérieure à la largeur de l'interstice entre les plaques  $e_z$  (Lindner, 2000; De Wit, 2003). Dès lors, le rapport entre les termes visqueux et de friction qui se comporte comme  $e_z/\ell$  est typiquement très faible.

Dans cette limite, en négligeant le terme visqueux, on obtient l'équation d'évolution suivante pour le champ de vitesse bidimensionnel  $\vec{u}$  dans la cellule de Hele-Shaw :

$$\vec{\nabla}p \approx -\frac{\mu}{K_{HS}}\vec{u} + \rho\vec{g} \quad (2.23)$$

avec

$$K_{HS} = \frac{e_z^2}{12} \quad (2.24)$$

On constate que l'équation (2.23) a la même forme que la loi de Darcy. Autrement dit, l'écoulement en cellule de Hele-Shaw est l'analogue bidimensionnel de l'écoulement d'un fluide incompressible dans un milieu poreux à faible nombre de Reynolds et lorsque  $e_z \ll L_x, L_y$ .

Afin d'étudier la digitation visqueuse, on place cette cellule horizontalement, ce qui permet de s'affranchir des effets de la gravité (Homsy, 1987). La cellule de Hele-Shaw a pour principaux avantages de permettre une visualisation instantanée de la dynamique de la digitation et l'utilisation de techniques optiques simples pour mesurer l'évolution du champ de concentration (Felder, 2003; Felder *et al.*, 2004; Oltean *et al.*, 2004, 2008).

## 2.1 Dispositif expérimental

Notre dispositif expérimental est constitué d'une cellule de Hele-Shaw placée horizontalement dans le champ de gravité au-dessus d'une table lumineuse et sous une caméra CCD. La cellule est composée de deux plaques de verre optique de qualité supérieure<sup>1</sup>, de longueur  $L_x = 600.00$  mm, de largeur

---

1. Verre borosilicate poli et tranché brut par le fournisseur.

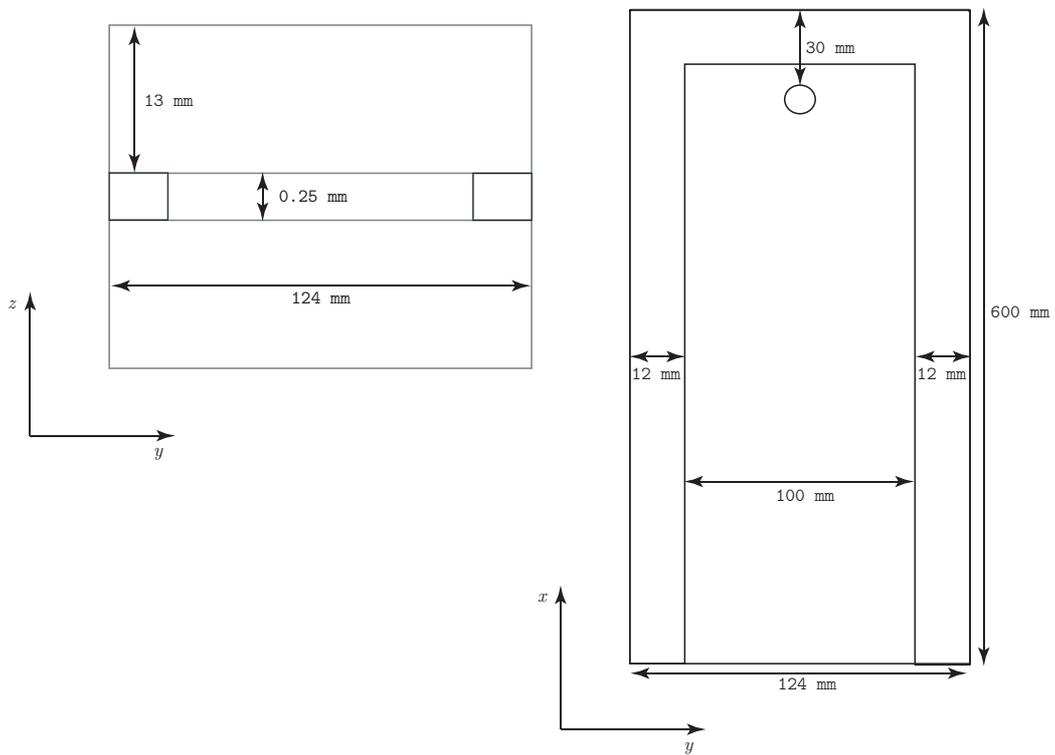


FIGURE 2.3 – Schéma de la cellule utilisée dans nos expériences vue respectivement selon la tranche (à gauche) et de dessus (à droite). L'écoulement se fait dans la direction des  $x$  positifs. Les directions  $y$  et  $z$  sont orientées respectivement selon la largeur et selon l'épaisseur de l'interstice de la cellule.

$L_y = 124.00$  mm et d'épaisseur  $L_z = 13.000$  mm. La tolérance de planéité sur les plaques de verre (indiquée par le fournisseur) est  $\pm\Delta e_{z,1} = \pm 0.001$  mm.

Les plaques sont séparées par un interstice dont l'épaisseur est fixée au moyen d'une cale en forme de « U » découpée dans des feuilles de mylar<sup>2</sup> d'épaisseur  $e_z = 0.500$  mm ou  $0.250$  mm. La tolérance sur l'épaisseur de la feuille de mylar indiquée par le fabricant (Dupont–Teijin) est de  $\pm\Delta e_{z,2} = \pm 0.002$  mm. L'erreur sur l'épaisseur de l'interstice entre les plaques est la somme de l'erreur sur l'épaisseur de la feuille de mylar et de l'erreur de planéité chacune des deux plaques :

$$\Delta e_z = 2\Delta e_{z,1} + \Delta e_{z,2} = 0.004\text{mm} \quad (2.25)$$

En utilisant l'équation (2.24), l'erreur relative sur la perméabilité  $K_{HS}$  est donnée par

$$\frac{\Delta K_{HS}}{K_{HS}} = \frac{2\Delta e_z}{e_z} \quad (2.26)$$

Pour  $e_z = 0.500$  mm, l'erreur relative est de 1.6% et pour  $0.250$  mm, elle est de 3.2%. Il est à noter que ces valeurs sont nettement inférieures à celles obtenues dans le cas de dispositifs similaires utilisés dans les travaux antérieurs et rapportées dans la littérature (Felder, 2003).

Les branches de la cale en mylar sont larges de  $12.00$  mm, ce qui implique que la largeur du canal disponible  $e_y = 100.00$  mm (cfr. Fig 2.3). L'évacuation des fluides se fait via un trou de  $4.00$  mm de diamètre placé au milieu de la cellule à  $30.00$  mm du bord. La procédure d'injection dépend du type d'expériences que l'on veut mener (cfr. Sec. 2.1.4).

Les plaques s'insèrent dans une structure en acier rôdé qui permettent de maintenir l'ensemble et d'en assurer l'étanchéité via un dispositif de serrage constitué de deux joints en caoutchouc et d'une plaquette métallique (cfr. Fig.2.4) similaire à celui utilisé par Vedernikov *et al.* (2001). La répartition régulière des vis de serrage le long des montants métalliques permet d'assurer une pression uniforme sur les bords de la cellule (Felder, 2003).

L'étanchéité de la zone de contact entre la cellule et la vanne d'injection linéaire est assurée par l'ajout d'un joint en silicone sur les côtés de la cellule et par un masque en caoutchouc qui s'intercale entre le bord de la cellule et la vanne d'injection linéaire.

---

2. Film de polyéthylène terephthalate aux propriétés biaxiales semi-cristallines. Le mylar a pour qualités une excellente résistance mécanique limitant sa déformation sous la compression due au dispositif de serrage, d'être non-corrodable, imperméable à l'eau (car non-poreux) et translucide.

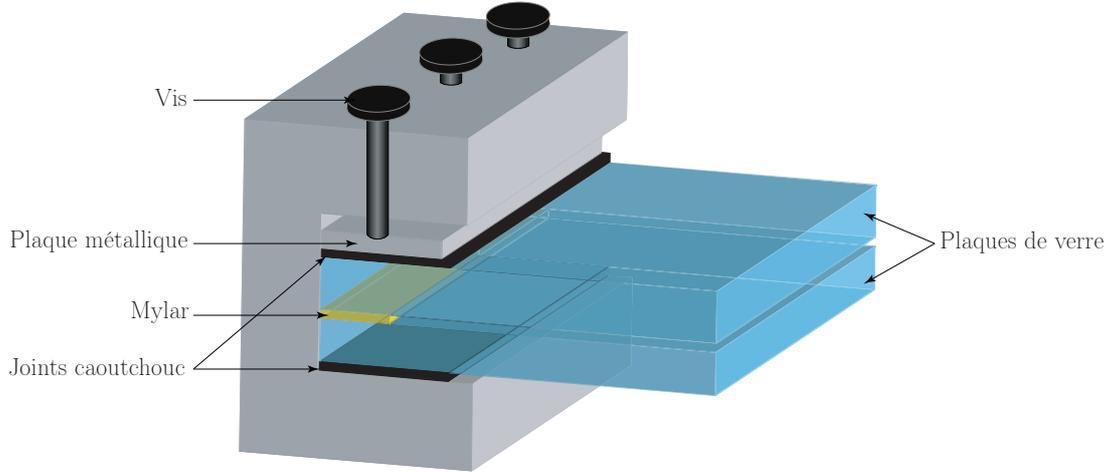


FIGURE 2.4 – Schéma du dispositif de serrage assurant l'étanchéité du système.

### 2.1.1 Profil du champ de vitesse dans la cellule

La cellule que nous utilisons n'est pas constituée de deux plaques de verre infinies. Nous injectons en effet les fluides dans un canal limité dans les 3 directions  $x$ ,  $y$  et  $z$ . Lorsque le fluide est injecté à débit constant dans la direction  $x$  depuis un bord, comme la cellule est limitée selon  $y$  et selon  $z$ , le profil de Poiseuille adopté par le fluide selon l'axe  $z$  va donc être aussi accompagné d'un profil de Poiseuille selon l'axe  $y$ . Afin de vérifier si la déformation qui en résulte selon  $y$  est nuisible à l'obtention d'une interface plane lors de l'injection linéaire, il est utile d'examiner le détail du profil de vitesse à 3D dans le cas d'un déplacement stable. Le champ de vitesse prend alors la forme suivante dans la cellule :

$$\begin{cases} v_x(x, y, z, t) = u(y, z) \\ v_y(x, y, z, t) = 0 \\ v_z(x, y, z, t) = 0 \end{cases} \quad (2.27)$$

A faible nombre de Reynolds, en négligeant l'effet de la gravité et en utilisant l'approximation quasi-statique, l'équation (2.6) se réduit à

$$\vec{\nabla}^2 u(y, z) = \frac{1}{\mu} \frac{dp}{dx} \equiv \alpha, \quad (2.28)$$

où  $\alpha$  est une constante. On peut dès lors écrire que

$$u(y, z) = \alpha f(y, z), \quad (2.29)$$

où  $f(y, z)$  est telle que

$$\vec{\nabla}^2 f(y, z) = 1, \quad (2.30)$$

et  $f(y, z)$  s'annule aux bords du canal (c'est-à-dire en  $y = \pm e_y/2$  et  $z = \pm e_z/2$ ). De plus, lorsqu'on prend la moyenne sur l'épaisseur de l'interstice, on a

$$U = \langle u(y, z) \rangle = \alpha \langle f(y, z) \rangle. \quad (2.31)$$

L'équation (2.30) admet comme solution la série de Fourier

$$f(y, z) = \sum_{m=0}^{m_{\max}=\infty} \sum_{n=0}^{n_{\max}=\infty} A_{mn} \cos\left(\frac{\pi}{e_y}(2m+1)y\right) \cos\left(\frac{\pi}{e_z}(2n+1)z\right) \quad (2.32)$$

avec

$$A_{mn} = \frac{16}{\pi^4} \frac{(-1)^{m+n+1}}{(2m+1)(2n+1)} \frac{1}{\left(\frac{2m+1}{e_y}\right) + \left(\frac{2n+1}{e_z}\right)} \quad (2.33)$$

En prenant la moyenne de  $f(y, z)$  sur l'épaisseur on obtient

$$\langle f \rangle = -e_z^2 \sum_{m=0}^{m_{\max}=\infty} \sum_{n=0}^{n_{\max}=\infty} \frac{64}{\pi^6} \frac{1}{(2m+1)^2(2n+1)^2} \frac{1}{\varepsilon^2(2m+1)^2 + (2n+1)^2} \quad (2.34)$$

où  $\varepsilon$  est le facteur d'aspect du canal,

$$\varepsilon = \frac{e_z}{e_y}. \quad (2.35)$$

Via l'équation (2.28), on obtient que

$$U = \alpha \langle f \rangle = -\frac{K}{\mu} \frac{dp}{dx} \quad (2.36)$$

où  $K$  est la perméabilité du canal,

$$K = e_z^2 \sum_{m=0}^{m_{\max}=\infty} \sum_{n=0}^{n_{\max}=\infty} \frac{64}{\pi^6} \frac{1}{(2m+1)^2(2n+1)^2} \frac{1}{\varepsilon^2(2m+1)^2 + (2n+1)^2} \quad (2.37)$$

et, lorsque l'épaisseur est très petite par rapport à la largeur du canal, c'est-à-dire lorsque  $\varepsilon \rightarrow 0$ , on obtient  $K \rightarrow e_z^2/12$  ce qui correspond bien à l'équation (2.24) obtenue dans le cas de deux plaques parallèles.

Grâce à cette solution, on peut calculer le profil de vitesses dans notre canal. La Fig.2.5 représente la solution obtenue en sommant 150 modes ( $m_{\max} = 150$ ,  $n_{\max} = 150$ ) et la figure 2.6 représente la solution au milieu de l'épaisseur du canal pour  $z = 0$ , sommée sur 1000 modes et pour 8

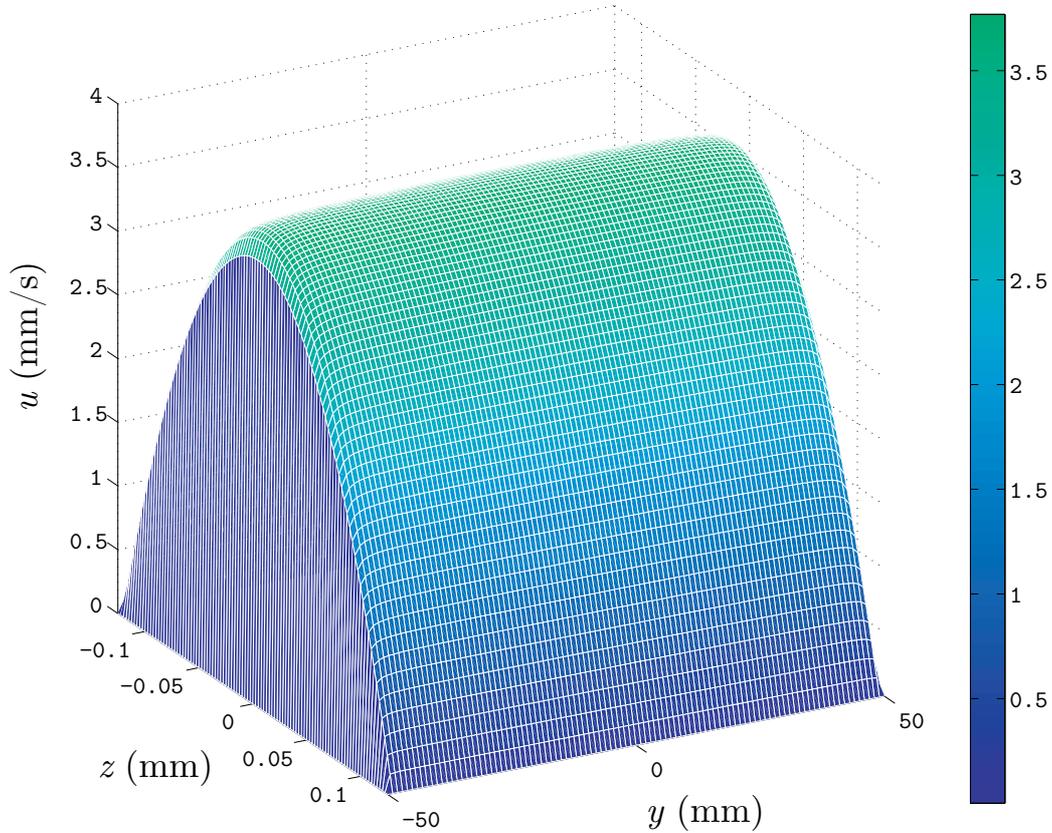


FIGURE 2.5 – Profil de vitesses dans un canal de largeur  $e_y = 100$  mm, longueur  $e_z = 0.25$  mm, vitesse moyenne  $U = 2.5$  mm/s. Le profil est calculé en sommant sur 150 modes ( $m_{\max} = 150$ ,  $n_{\max} = 150$ ).

vitesses moyennes différentes. On constate que dans la plus grande part de la largeur du canal (environ 98% de la largeur), le flux est indépendant de la coordonnée en  $y$ . Ce sera toujours le cas pour un facteur d'aspect  $\varepsilon$  très faible (Bae *et al.*, 2009). Nous pouvons donc considérer que le flux dans la cellule de Hele-Shaw utilisée au laboratoire est quasi-équivalent au cas idéal du flux dans une cellule constituée de deux plaques infinies.

### 2.1.2 Dispositif d'injection

La vanne permettant une injection linéaire des fluides est similaire à celle utilisée par Vedernikov *et al.* (2001). Il s'agit d'une vanne à 2 chambres, en métal, comportant un rouleau rotatif en résine plastique permettant de connecter la cellule successivement à chacune des chambres (cfr Fig.2.7). Chacune de ces chambres est remplie d'un fluide différent. Un jeu de vis et

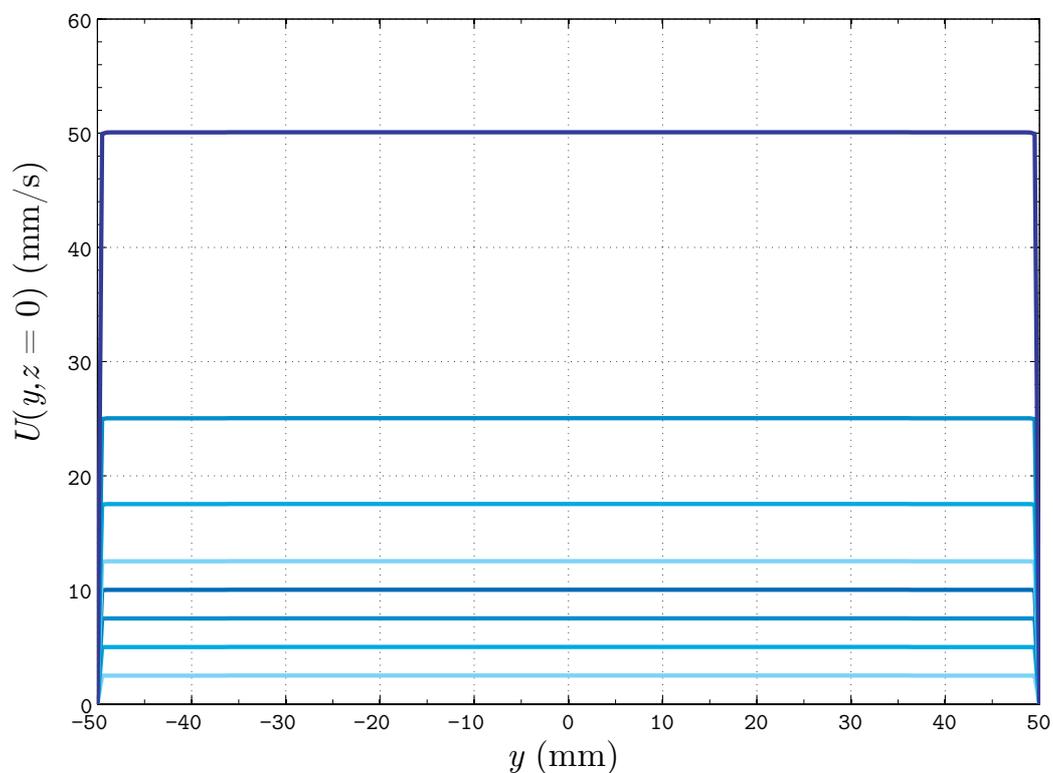


FIGURE 2.6 – Profils de vitesses en  $z = 0$  dans un canal de largeur  $e_y = 100$  mm, épaisseur  $e_z = 0.25$  mm, pour 8 valeurs de vitesses moyennes (1.67, 3.33, 5.00, 6.67, 8.33, 11.67, 16.67 et 33.33 mm/s). Les profils sont calculés en utilisant en sommant sur 1000 modes ( $m_{\max} = 1000$ ,  $n_{\max} = 1000$ ).

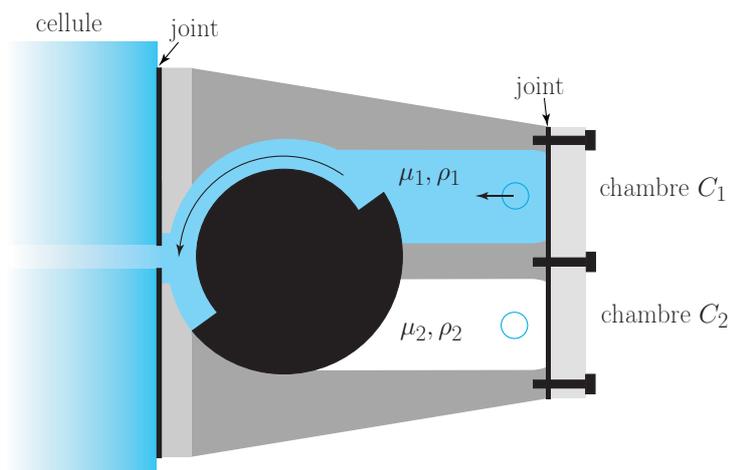


FIGURE 2.7 – Schéma de la vanne d'injection à deux chambres.

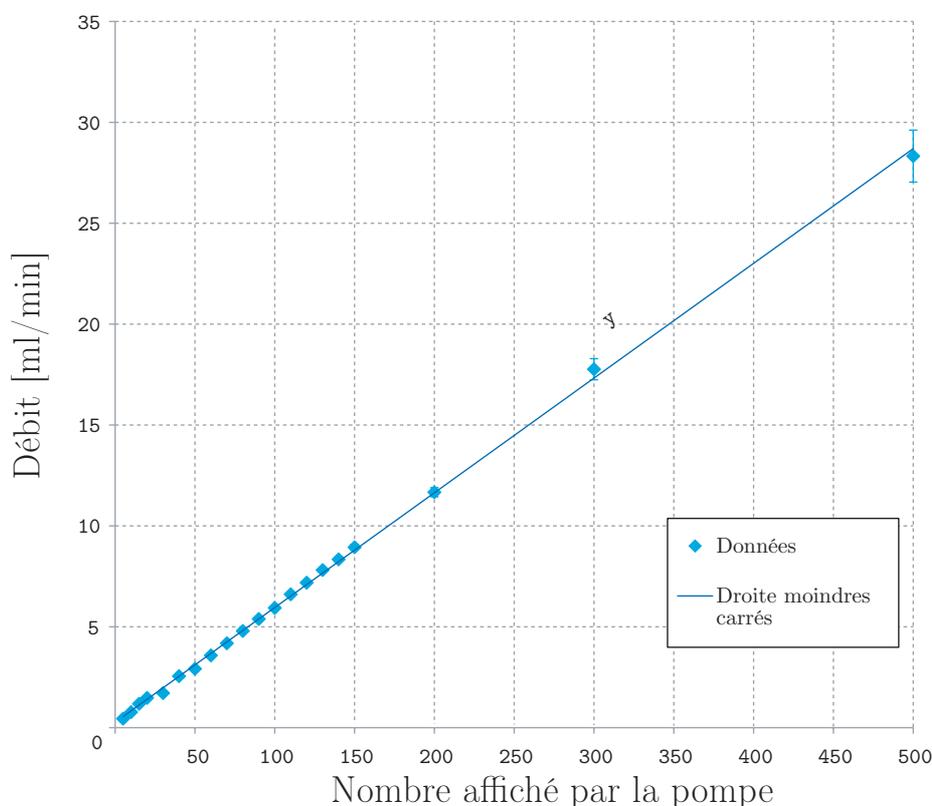


FIGURE 2.8 – Courbe de calibration de la pompe BVP-Z.

de joints permet d'assurer l'étanchéité des chambres. Un tube plastique percé à intervalles réguliers et dont l'extrémité a été obturée s'insère dans chaque chambre. L'étanchéité est assurée au moyen d'un joint en silicone posé le long du tube. La régularité des trous pratiqués dans le tube assure une uniformité du flux dans la cellule après passage le long du tube rotatif.

Nous disposons de deux types de pompes qui sont connectées aux tubes sortant des chambres en fonction des spécificités de chaque type d'expériences : une pompe à engrenage et une pompe à galets.

La pompe à engrenage Ismatec BVP-Z est munie d'une tête de pompe à sabot d'aspiration Ismatec Z-183 dont le système d'engrenages en graphite résiste aux sels (NaCl et KCl) utilisés dans certaines manipulations. La pompe comporte un potentiomètre à 3 chiffres qui permet de régler le débit de 000 à 999. D'après le fabricant, la pompe munie de sa tête de pompe permet un débit compris entre 5.0 ml/min et 504.0 ml/min. Néanmoins, la fixation de connecteurs permettant de raccorder la tête de pompe au circuit a un effet sur la gamme de débits accessibles. Nous avons donc procédé à une

calibration de la pompe (cfr. Fig. 2.8). Le lien entre le débit  $f_v$  (en ml/min) et le nombre affiché par la pompe  $N$  est donné par

$$f_v = 0.057 \times N + 0.27. \quad (2.38)$$

La pompe IPC-N-04 d'Ismatec est une pompe péristaltique<sup>3</sup> à 6 galets dont la vitesse de rotation détermine le débit. Celui-ci varie, d'après le fabricant et pour le tube flexible utilisé, dans la gamme 0.030 ml/min et 2.980 ml/min. Une calibration a été effectuée qui a confirmé ces valeurs. Cette pompe peut fonctionner sous plusieurs modes : contrôle du débit (précision :  $10^{-3}$  ml/min), contrôle du volume injecté (l'injection stoppe une fois le volume désiré atteint - précision :  $10^{-3}$  ml), contrôle du temps d'injection (précision : 0.01 s) et une série de modes mixtes.

Nous utilisons également une vanne permettant une injection radiale des fluides qui peut s'insérer dans un pas de vis collé sous la cellule et connecté à un trou d'injection.

### 2.1.3 Evolution du champ de concentration et intensité lumineuse

La table lumineuse utilisée (Just Normlicht – CL/DL 5 EVG) pour éclairer la cellule accueille 2 tubes fluorescents d'une puissance de 36 W chacun, placés en dessous d'un filtre diffusif. Ce filtre permet que le flux lumineux soit quasi-uniforme. L'intensité de l'éclairage est réglable via un variateur électronique (entre 0 et 36 W). Au cours des expériences, nous réglons la puissance indiquée par le variateur dans l'intervalle compris entre 6 W et 20 W, afin d'obtenir un contraste suffisant tout en évitant un échauffement de la cellule et des fluides.

La caméra CCD (JAI CV-M4+/CL) est munie d'une matrice de  $1360 \times 1024$  cellules photoconductrices de  $6.45 \times 6.45 \mu\text{m}^2$ . La sensibilité spectrale des capteurs, caractérisant le rapport du signal de sortie (réponse des capteurs) sur le flux de rayonnement lumineux incident (Felder, 2003; Oltean *et al.*, 2004), dépend de la longueur d'onde (voir fig. 2.9) et est supérieure à 80 % dans l'intervalle de longueurs d'ondes comprises entre 450 nm et 650 nm. Elle est maximale et vaut 98% pour 520 nm. Cette large bande de sensibilité spectrale nous permet une grande liberté dans le choix des colorants utilisés dans les manipulations. Généralement, ce choix s'est donc opéré en fonction de critères indépendants des capteurs optiques utilisés.

---

3. Le liquide est contenu dans un tube flexible qui est pressé par des galets métalliques entraînés par un rotor, entraînant le fluide dans la direction de la rotation.

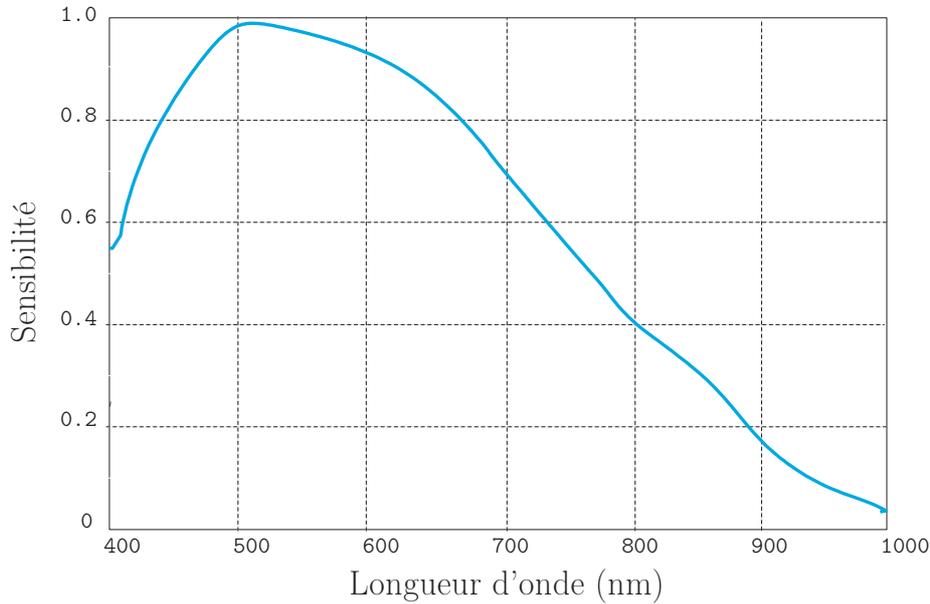


FIGURE 2.9 – Sensibilité spectrale de la caméra CCD — modèle JAI CV-M4+/CL (valeurs fournies par le fabricant)

La caméra CCD utilisée peut capturer jusqu'à 25 images par secondes. Cela nous permet de suivre très précisément la dynamique dans la cellule. Le logiciel de contrôle de la caméra et d'acquisition d'images a été développé par Christophe Minetti du MRC (Microgravity Research Center, ULB). Il permet de définir la fréquence d'acquisition et/ou le temps total d'acquisition. Dans le cas d'une fréquence d'acquisition élevée, le logiciel peut soit stocker les images dans la mémoire vive et retranscrire les images sur le disque dur à la fin d'une expérience de quelques secondes, soit retranscrire régulièrement des « paquets » de 1.76 Go sur le disque dur. La deuxième méthode permet de suivre des expériences durant quelques minutes mais, lors de chaque retranscription d'un paquet sur le disque, quelques images peuvent ne pas être transférées de la caméra à la mémoire vive. Le logiciel fournit le temps précis correspondant à l'acquisition de chaque image, ce qui nous permet de tenir compte de ces pertes occasionnelles.

Afin de déterminer la valeur du profil de concentration moyenné sur l'épaisseur défini comme

$$\langle C \rangle(x, y, t) = \frac{1}{e_z} \int_{-\frac{e_z}{2}}^{+\frac{e_z}{2}} C(x, y, z, t) dz \quad (2.39)$$

on enregistre l'intensité lumineuse reçue par le capteur CCD. En effet, cette intensité est liée à la concentration en colorant par la Loi de Beer-Lambert

polychromatique (Felder, 2003; Lajeunesse *et al.*, 1999) :

$$I(x, y, t) = I_0 \exp(-\alpha e_z \langle C \rangle(x, y, t)) \quad (2.40)$$

où  $I_0$  est l'intensité lumineuse émise par la source et  $\alpha$  est le coefficient d'absorption qui dépend du colorant utilisé. L'intensité de notre source lumineuse étant stable dans le temps, on peut considérer que  $I_0$  ne dépend pas du temps. Le filtre diffusif de la table lumineuse assurant de plus une grande homogénéité spatiale de l'éclairage, on peut considérer que  $I_0$  ne dépend pas non plus de l'espace.

La caméra CCD enregistre l'intensité lumineuse en 256 niveaux de gris, où 255 correspond au blanc et 0 correspond au noir. On peut écrire la loi de Beer-Lambert en termes de niveaux de gris  $N_g$  (Mayet *et al.*, 1996; Lajeunesse *et al.*, 1999) comme

$$N_g(x, y, t) = N_{\text{op}}(x, y) + (N_{\text{trans}}(x, y) - N_{\text{op}}(x, y)) \exp(-\alpha e_z \langle C \rangle(x, y, t)) \quad (2.41)$$

où  $N_{\text{trans}}$  correspond au niveau de gris pour la cellule emplies d'un fluide parfaitement transparent et  $N_{\text{op}}$  au niveau de gris pour la cellule emplies d'un fluide opaque. En réglant la caméra de manière adéquate, on obtient dans nos expériences que  $N_{\text{op}} = 0$ . En supposant que l'interstice de la cellule est suffisamment fin, on peut dès lors écrire

$$N_g(x, y, t) \approx N_{\text{trans}}(x, y)(1 - \alpha e_z \langle C \rangle(x, y, t)). \quad (2.42)$$

Cette approximation est plus adéquate pour les faibles concentrations en pigment. La résolution en concentration obtenue pour les niveaux de gris se rapprochant du blanc sera donc nettement supérieure à celle des niveaux de gris se rapprochant du noir.

Dans notre cas, nous nous intéressons à l'évolution de la concentration réduite,

$$c(x, y, t) \equiv \frac{\langle C \rangle}{C_0}(x, y, t) \quad (2.43)$$

où  $C_0$  est la concentration initiale en pigment du fluide teinté (Oltean *et al.*, 2004; Felder, 2003; Oltean *et al.*, 2008). En déterminant le niveau de gris  $N_0$  correspondant à  $C_0$ , on obtient un lien entre la concentration réduite et le niveau de gris « renormalisé »  $\tilde{N}$  :

$$\tilde{N}(x, y, t) = \frac{1}{N_0} \frac{N_g - N_{\text{trans}}}{N_{\text{trans}}}(x, y, t) \approx c(x, y, t) \quad (2.44)$$

En supposant l'interstice suffisamment fin, on peut donc obtenir la concentration réduite à partir du niveau de gris enregistré par la caméra CCD au moyen d'un post-traitement comprenant 2 étapes :

- Soustraction à l'image initiale de l'image « blanche » (image de la cellule emplie d'un fluide transparent),
- Renormalisation de l'image obtenue par la valeur  $N_0$  correspondant à la concentration initiale en pigment du fluide teinté  $C_0$ .

Le post-traitement complet appliqué aux images « brutes » issues de la manipulation comprend, outre ces deux étapes, une étape de rotation et de recadrage des images. La Fig.2.10 illustre ces différentes étapes. Ce post-traitement est effectué automatiquement au moyen d'un script MATLAB utilisant les fonctions du plug-in Image Processing Toolbox.

### 2.1.4 Configurations du dispositif

Le type de manipulations que l'on désire effectuer détermine la configuration du dispositif expérimental. Notre montage permet en effet d'injecter les fluides soit radialement, soit linéairement, soit de composer ces deux modes d'injection. Dans tous les cas, les fluides sont évacués via un trou de 4.0 mm de diamètre, percé dans la plaque inférieure de la cellule, au centre de la plaque, situé à 30.0 mm du bord à l'opposé de la vanne d'injection. Un système de siphons permet d'injecter et d'évacuer les fluides en empêchant l'immixtion d'air dans le circuit. Afin d'éliminer les bulles d'air qui pourraient cependant rester dans les pompes ou dans la vanne d'injection, nous remplissons chacune des chambres de la vanne avec les fluides étudiés avant de connecter la vanne sur la cellule.

Dans les chapitres 3 et 5, nous considérons des échantillons initialement circulaires déplacés linéairement dans la cellule. Dans ce cas, le montage utilisé est représenté sur la Fig. 2.11. Nous injectons linéairement (à vitesse constante) le fluide vecteur via la vanne d'injection linéaire décrite ci-dessus (vanne  $V_1$  sur la Fig. 2.11). Les échantillons circulaires sont quant à eux injectés au travers d'une vanne permettant l'injection radiale (vanne  $V_2$  sur la Fig. 2.11) via un trou de 4.0 mm de diamètre percé dans la plaque inférieure de la cellule, au centre de la plaque, à 70 mm en aval de la vanne d'injection linéaire. Pour chaque expérience, nous emplissons tout d'abord la cellule avec le fluide vecteur en ouvrant la vanne d'injection linéaire  $V_1$ , le robinet  $R_2$  et en réglant la pompe  $P_2$  sur un faible débit. Nous obturons le trou d'injection des échantillons en utilisant la vanne d'injection radiale  $V_2$  fixée à la cellule. Une fois la cellule complètement remplie, nous stoppons l'injection linéaire en arrêtant la pompe  $P_2$  et attendons quelques instants que le fluide soit immobile. Nous injectons ensuite l'échantillon en ouvrant la vanne d'injection radiale  $V_2$  et en fixant un volume via l'écran de contrôle de la pompe péristaltique  $P_3$ . Durant l'injection radiale de l'échantillon, la vanne d'injection linéaire et le robinet  $R_2$  doivent rester ouverts, pour éviter

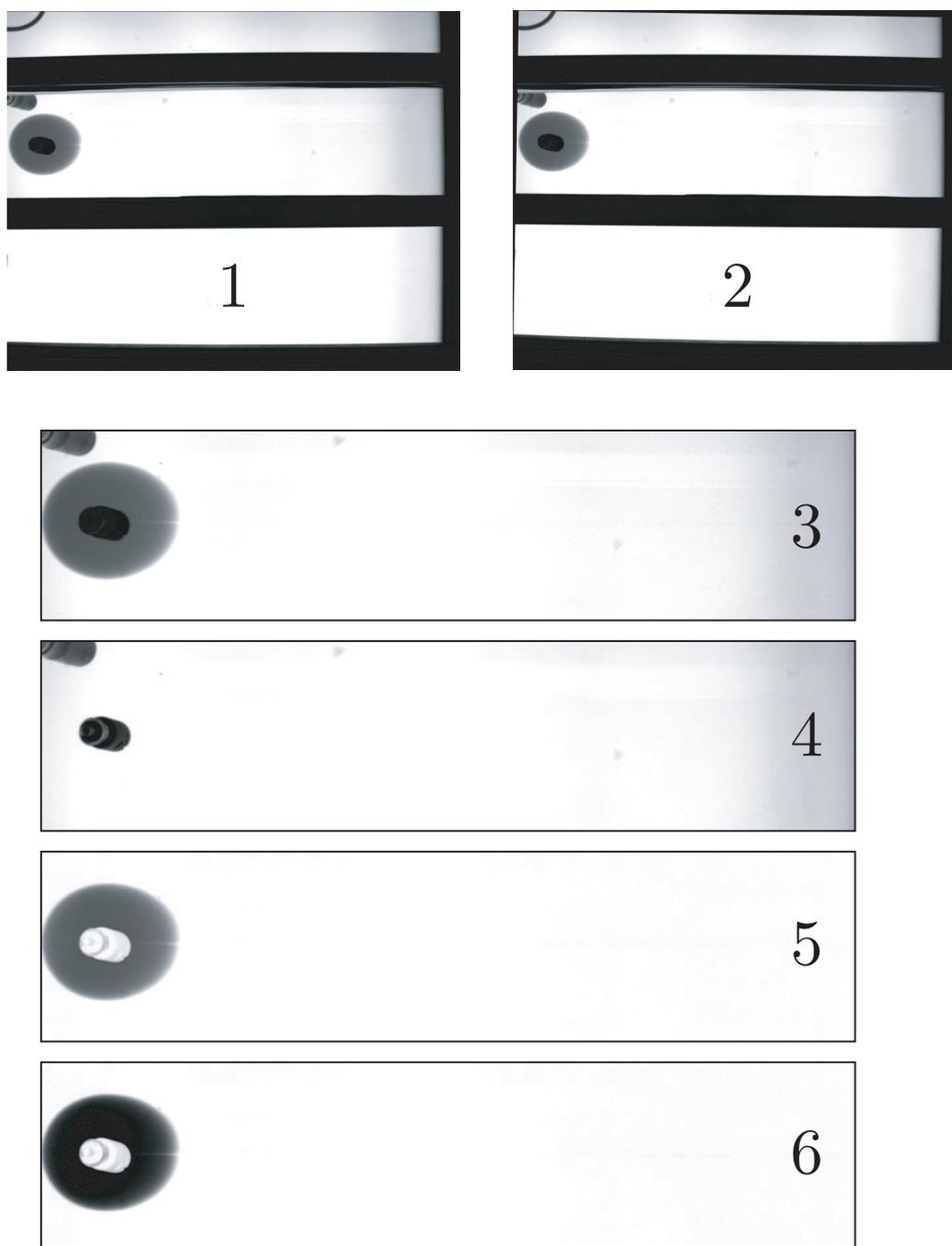


FIGURE 2.10 – Post-traitement complet : (1) image brute, (2) image après rotation, (3) image après recadrage, (4) image « blanche » (image de la cellule emplie d'un fluide transparent) après rotation et recadrage, (5) image après soustraction de l'image blanche, (6) image après renormalisation.

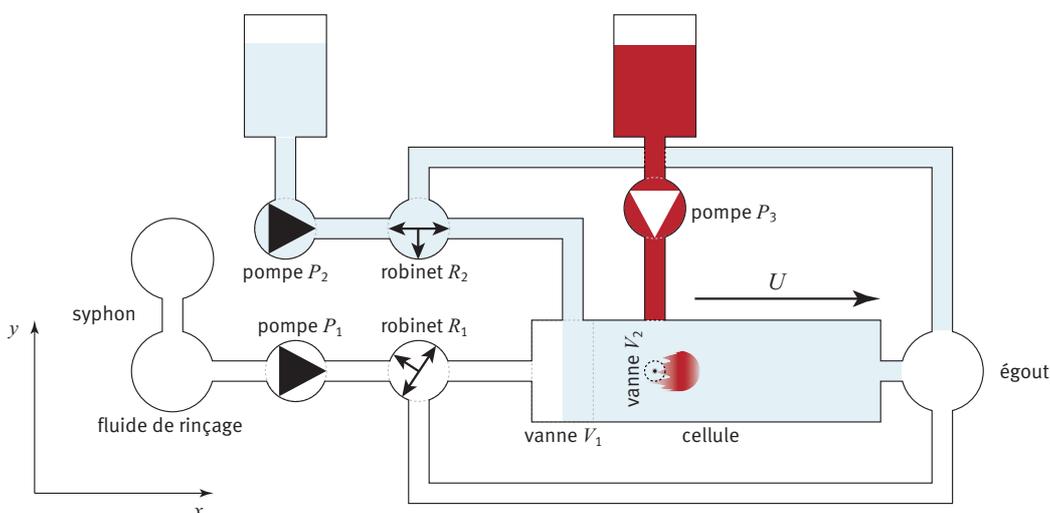


FIGURE 2.11 – Dispositif expérimental pour l'injection radiale.

la déformation des échantillons circulaires. Une fois le volume d'échantillon désiré atteint, nous fermons la vanne d'injection radiale  $V_2$  et nous déconnectons la pompe péristaltique  $P_3$  du circuit. Nous fixons alors la vitesse de déplacement sur le tableau de contrôle de la pompe  $P_2$ , dévions le robinet  $R_2$  vers l'égout et relançons la pompe  $P_2$ . Après quelques secondes de fonctionnement de la pompe – de manière à s'assurer que le débit soit bien constant, nous alignons le robinet  $R_2$  de manière à injecter le fluide dans la cellule. Après chaque manipulation, nous nettoyons la cellule avec un fluide de rinçage (de l'eau contenant quelques gouttes de surfactant, ce qui permet d'évacuer les éventuelles bulles d'air plus facilement) via la pompe  $P_1$  et le robinet  $R_1$ .

Nous considérons le cas d'une injection linéaire d'une interface plane visqueusement stable entre deux fluides non-réactifs dans le chapitre 4 et entre deux fluides réactifs dans le chapitre 6. Le montage utilisé est représenté sur la figure 2.12. Dans ce cas, nous injectons le fluide à déplacer de viscosité  $\mu_2$  via la vanne d'injection linéaire  $V_1$  et la pompe  $P_1$  jusqu'à ce que la cellule soit remplie. Nous stoppons alors l'injection en arrêtant la pompe  $P_1$  et en fermant le robinet  $R_1$  avant de pivoter la vanne en position d'injection du fluide vecteur de viscosité  $\mu_1$ . Une fois la vanne d'injection  $V_1$  correctement positionnée, nous dévions le robinet  $R_2$  vers l'égout et allumons la pompe  $P_2$ . Après quelques secondes, nous alignons le robinet  $R_2$  de manière à ce que le fluide vecteur de viscosité  $\mu_1$  soit envoyé vers la cellule. En fonction de la gamme de vitesse désirée, la pompe  $P_2$  sera la pompe péristaltique ou la pompe à engrenage. Le rinçage de la cellule s'effectue en remplaçant l'un des

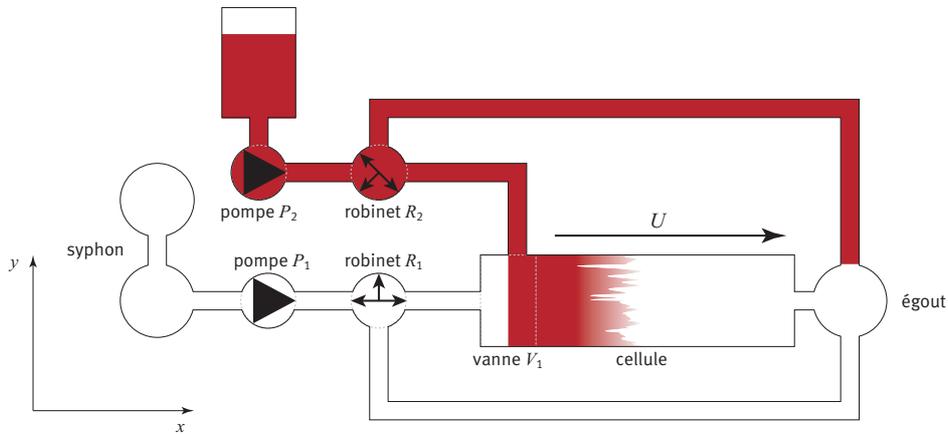


FIGURE 2.12 – Dispositif expérimental pour l'injection linéaire.

deux fluides par le liquide de rinçage.

## 2.2 Conclusions

Nous avons mis au point un dispositif expérimental permettant d'étudier la digitation visqueuse dans plusieurs configurations différentes. Il s'agit d'une cellule de Hele-Shaw, qui peut être considérée comme l'analogue d'un milieu poreux bidimensionnel. Nous avons vérifié les conditions d'utilisation de notre dispositif pour lesquelles cette analogie tient. Nous avons également montré le lien entre les images acquises par une caméra CCD pilotée par ordinateur et la concentration réduite et déduit le post-traitement à appliquer aux données brutes enregistrées lors de chaque expérience. Nous avons de plus explicité les moyens de contrôle des paramètres expérimentaux (vitesse d'injection par les pompes, fluides injectés par la vanne d'injection). Enfin, nous avons décrit les différentes configurations que peut adopter notre dispositif et qui permettent d'étudier plusieurs problèmes différents.

Les principaux avantages de notre dispositif sont sa relative facilité d'utilisation et son faible coût. De plus, la cellule permet de suivre directement la dynamique de digitation sans avoir à utiliser des techniques complexes de visualisation.

---

# DISPERSION DANS LA CELLULE DE HELE-SHAW

---

Comprendre la manière dont un échantillon d'un soluté donné, initialement localisé, est déplacé par un flux dans un milieu poreux est un problème d'intérêt fondamental et crucial pour de nombreuses applications. Dans le cas de la pollution d'une nappe phréatique, il est évidemment essentiel de pouvoir caractériser l'évolution spatiale et temporelle de la zone de contamination (Serrano, 2003; Kretz *et al.*, 2003; De Wit *et al.*, 2005). Un autre exemple historique est l'étude du transport de solutions dans les vaisseaux sanguins (Taylor, 1953). Le réseau vasculaire peut en effet être considéré comme un milieu poreux (Huyghe *et al.*, 1989; McDougall *et al.*, 2002; Bauer *et al.*, 2005). Pouvoir notamment déterminer le temps nécessaire pour qu'après injection, une solution transportée par le flux sanguin se répande dans le réseau vasculaire est évidemment une question cruciale dans le cadre de nombreuses thérapies mais aussi pour les techniques de visualisation (dont l'imagerie par résonance magnétique nucléaire) qui nécessitent l'injection d'agents de contraste (Bassingthwaighte et Allen Holloway Jr., 1976). Dans le cadre de la chromatographie, la dispersion est également centrale (Golay, 1958; Aris, 1959; Cussler, 1997) : le temps de résidence des composants à l'intérieur de la colonne, la largeur des pics de concentration en sortie et donc l'efficacité de la séparation d'un échantillon en ses constituants sont entre autres liés au mécanisme de dispersion. En effet, lorsqu'il n'y a pas de différence de viscosité entre l'échantillon et le fluide vecteur, la diffusion et le transport par le flux de solvant (advection) se couplent pour contribuer à l'étalement de l'échantillon. De manière asymptotique, cet étalement peut s'effectuer au cours du temps comme sous l'effet d'un processus de diffusion de Fick, mais avec un coefficient de diffusion effectif qui dépend de la vitesse d'advection et qui est largement supérieur au coefficient de diffusion moléculaire du soluté.

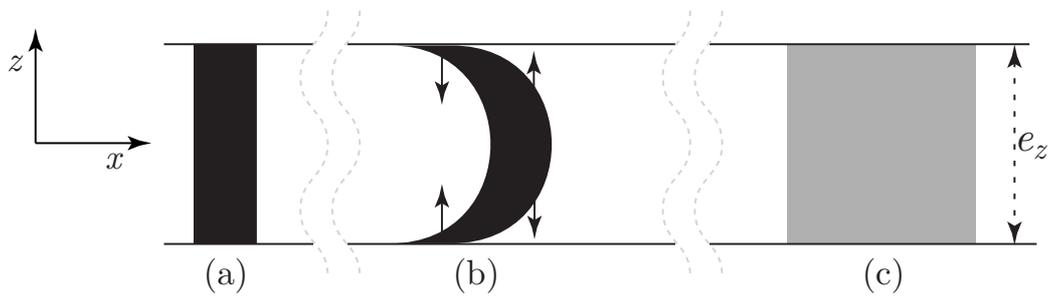


FIGURE 3.1 – Mécanisme de la dispersion de Taylor : l'échantillon initial (a) est déformé par le profil parabolique (b). Sous l'effet de la diffusion moléculaire, la concentration est homogénéisée à travers l'épaisseur (c).

Ce mécanisme de *dispersion* a fait l'objet de plusieurs mesures empiriques et études expérimentales durant la première partie du XXème siècle.

En 1911, Albert Griffiths publia un article consacré à la mesure de la viscosité de l'eau déplacée à très basse vitesse dans un circuit fermé. En pratique, il injectait une solution d'un marqueur fluorescent dans de l'eau déplacée dans un capillaire. Il remarque dans un premier temps que pour des vitesses « suffisamment hautes pour que la diffusion du marqueur soit négligée », le flux adopte un profil parabolique selon la section du tube, profil dont le sommet se déplace à une vitesse valant « environ deux fois la vitesse moyenne du flux ». Par contre, pour des vitesses plus basses, une goutte de marqueur se transforme en « colonne dont la longueur croît lentement et dont le milieu (dans la direction du flux) indique la vitesse moyenne du liquide » (Griffiths, 1911). En d'autres termes, lorsque un échantillon d'un soluté est déplacé par un solvant, il s'étale progressivement sous l'effet couplé de la diffusion moléculaire et de l'advection (Taylor, 1953) : le transport par le flux de Poiseuille déforme l'échantillon et la diffusion moléculaire homogénéise l'échantillon à travers la section du tube. Ce mécanisme est représenté sur la Fig.3.1.

Dans une série d'articles publiés en 1953 et en 1954 (Taylor, 1953, 1954b,a), Sir Geoffrey Ingram Taylor considère un cas similaire à celui de Griffiths, à savoir un échantillon déplacé à basse vitesse dans un tube cylindrique. Son but est, en partant de l'équation de Navier-Stokes, de dériver une équation de transport effectif de la concentration moyennée sur la section du tube d'un scalaire passif entraîné dans un tube à une vitesse moyenne  $U$ . Il montre analytiquement que si le temps caractéristique du phénomène diffusif est

très inférieur à celui caractérisant l'advection, c'est-à-dire lorsque

$$\frac{L}{U} \gg \frac{a^2}{4D_m} \quad (3.1)$$

où  $L$  est une longueur caractéristique de l'advection (par exemple, la longueur du tube) et  $a$  est une longueur caractéristique de la diffusion (en l'occurrence, le diamètre du tube (Taylor, 1953, 1954a)), l'équation d'advection-diffusion tridimensionnelle

$$\frac{\partial c}{\partial t}(x, y, z, t) = D_m \vec{\nabla}^2 c(x, y, z, t) - \vec{u}(x, y, z, t) \cdot \vec{\nabla} c(x, y, z, t) \quad (3.2)$$

peut être remplacée par une équation unidimensionnelle selon  $x$  (où  $x$  est la coordonnée axiale le long de l'axe du tube) pour la concentration moyennée  $\langle c \rangle$  peut s'écrire comme

$$\frac{\partial \langle c \rangle}{\partial t} + U \frac{\partial \langle c \rangle}{\partial x} = D \frac{\partial^2 \langle c \rangle}{\partial x^2} \quad (3.3)$$

où  $U$  est la vitesse moyenne du flux et  $D$  est un coefficient de dispersion, lié au coefficient de diffusion moléculaire  $D_m$  et à la vitesse moyenne du flux  $U$  par la relation

$$D = D_m + \frac{U^2 a^2}{192 D_m}, \quad (3.4)$$

Les résultats de Taylor furent par la suite généralisés par Rutherford Aris (1929—2005) au cas d'un soluté déplacé dans un canal de section arbitraire (Aris, 1956, 1959). Il montra que l'équation (3.3) reste valable dans ce cas avec

$$D = D_m + \kappa \frac{U^2 a^2}{D_m} \quad (3.5)$$

où  $\kappa$  est une constante dépendant de la géométrie du canal.

Il est à noter que Felder (2003); Felder *et al.* (2004); Oltean *et al.* (2004, 2008) ont généralisé le résultat d'Aris au cas d'un fluide dont la viscosité et la densité varient au cours du temps pour le cas d'un échantillon de densité fixée injecté dans une cellule de Hele-Shaw emplies d'un fluide moins dense via une source ponctuelle et à un débit d'injection très faible (de 0.2 ml/h à 20 ml/h). Le coefficient de dispersion prend alors la forme d'un tenseur de dispersion qui se réduit, lorsque le flux est unidirectionnel et que les variations de densité dues à l'ajout d'un colorant sont très faibles (ce qui est le cas dans nos expériences), à un seul terme donné par (3.5).

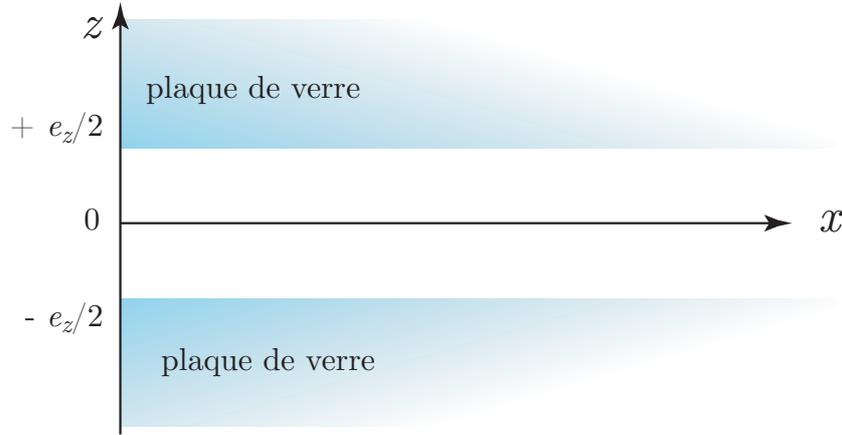


FIGURE 3.2 – Schéma d’une section transverse de la cellule de Hele-Shaw :  $x$  est la direction du flux selon la longueur de la cellule,  $e_z$  est l’épaisseur de l’interstice de la cellule.

### 3.1 Régime dispersif

Afin de comprendre les caractéristiques de la dispersion dans la géométrie d’une cellule de Hele-Shaw, l’approche proposée dans cette section est similaire à celle de [Taylor \(1954a\)](#), [Aris \(1956\)](#) et [Golay \(1958\)](#), mais se focalise sur le cas d’une cellule constituée de deux plaques infinies. Considérons l’équation d’advection-diffusion pour le cas d’un fluide injecté dans la direction  $x$  entre les deux plaques de verre d’une cellule de Hele-Shaw, celles-ci étant séparées par un interstice d’épaisseur  $e_z$  (cfr. Fig.3.2) :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D_m \vec{\nabla}^2 c - \vec{u} \cdot \vec{\nabla} c \quad (3.6)$$

Supposons un écoulement de Poiseuille dans l’interstice de la cellule, c’est-à-dire que  $\vec{u} = (u_x, u_z) = (UF(z), 0)$  où  $U$  est la vitesse moyenne d’écoulement et où  $F(z)$  est définie comme précédemment :

$$F(z) = \frac{3}{2} \left( 1 - \frac{4z^2}{e_z^2} \right)$$

et est telle que  $\langle F \rangle = 1$  où  $\langle \dots \rangle$  est l’opérateur de moyenne sur l’épaisseur de la cellule,

$$\langle \dots \rangle = \frac{1}{e_z} \int_{-\frac{e_z}{2}}^{+\frac{e_z}{2}} \dots dz.$$

On peut alors écrire

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D_m \left( \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right) c - UF(z) \frac{\partial c}{\partial x}. \quad (3.7)$$

Comme les parois de la cellule sont imperméables, on a les conditions aux bords suivantes :

$$\left[ \frac{\partial c}{\partial z} \right]_{z=\pm \frac{e_z}{2}} = 0. \quad (3.8)$$

Explicitons la concentration comme la somme de deux contributions, à savoir la moyenne de la concentration sur l'épaisseur de la cellule  $\langle c \rangle$  et les variations  $\Delta c$  par rapport à cette moyenne :

$$c = \frac{1}{e_z} \int_{-\frac{e_z}{2}}^{+\frac{e_z}{2}} c(x, z, t) dz + \Delta c(x, z, t) = \langle c \rangle(x, t) + \Delta c(x, z, t) \quad (3.9)$$

avec  $\langle \Delta c \rangle = 0$ . En insérant (3.9) dans (3.7), on obtient alors l'équation suivante

$$\frac{\partial}{\partial t} (\langle c \rangle + \Delta c) = D_m \frac{\partial^2 \langle c \rangle}{\partial x^2} + D_m \left( \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right) \Delta c - UF(z) \frac{\partial}{\partial x} (\langle c \rangle + \Delta c). \quad (3.10)$$

Appliquons l'opérateur de moyenne  $\langle \dots \rangle$  à chaque membre de cette équation :

$$\frac{\partial \langle c \rangle}{\partial t} = D_m \frac{\partial^2 \langle c \rangle}{\partial x^2} - U \frac{\partial \langle c \rangle}{\partial x} - \langle UF(z) \frac{\partial \Delta c}{\partial x} \rangle \quad (3.11)$$

En soustrayant (3.11) de (3.10), on obtient :

$$\frac{\partial \Delta c}{\partial t} = D_m \nabla^2 \Delta c - U(F(z) - 1) \frac{\partial \langle c \rangle}{\partial x} - UF(z) \frac{\partial \Delta c}{\partial x} + \langle UF(z) \frac{\partial \Delta c}{\partial x} \rangle. \quad (3.12)$$

Supposons que l'on attende suffisamment longtemps (au-delà d'un temps de l'ordre du temps caractéristique de diffusion  $\frac{e_z^2}{D_m}$ ) de manière à ce que la diffusion moléculaire homogénéise la concentration dans l'interstice de la cellule et que les variations de concentration  $\Delta c$  dans la direction  $x$  soient très petites par rapport à la valeur moyenne de la concentration. Ceci permet de négliger  $\frac{\partial \Delta c}{\partial t}$  et les gradients de variation de concentration dans la direction du flux  $\frac{\partial \Delta c}{\partial x}$  et  $\frac{\partial^2 \Delta c}{\partial x^2}$ . Par contre, les gradients de concentration dans la direction transverse (selon  $z$ ) ne peuvent pas être négligés car la condition de vitesse nulle au bord des plaques peut impliquer que ces gradients soient importants. L'équation (3.12) se réduit alors à

$$D_m \frac{\partial^2 \Delta c}{\partial z^2} \approx U(F(z) - 1) \frac{\partial \langle c \rangle}{\partial x} \quad (3.13)$$

En intégrant deux fois en utilisant les conditions aux bords (3.8) et en utilisant le fait que  $\Delta c$  est symétrique par rapport à  $z = 0$ , on trouve  $\Delta c$

$$\Delta c = \frac{U}{D_m} \left( \frac{z^2}{4} - \frac{z^4}{2e_z^2} \right) \frac{\partial \langle c \rangle}{\partial x}. \quad (3.14)$$

En imposant le changement de variable

$$\tilde{z} = \frac{z}{e_z}$$

cette solution pour  $\Delta c$  peut s'écrire

$$\Delta c = \frac{U e_z^2}{D_m} \left( \frac{\tilde{z}^2}{4} - \frac{\tilde{z}^4}{2} \right) \frac{\partial \langle c \rangle}{\partial x}. \quad (3.15)$$

On peut dès lors obtenir

$$\langle UF(z) \frac{\partial \Delta c}{\partial x} \rangle = \frac{3 U^2}{2 D_m} \frac{\partial^2 \langle c \rangle}{\partial x^2} \frac{1}{e_z} \int_{-\frac{e_z}{2}}^{+\frac{e_z}{2}} \left( \frac{z^2}{4} - \frac{z^4}{2 e_z^2} \right) \left( 1 - \frac{4 z^2}{e_z^2} \right) dz, \quad (3.16)$$

$$= \frac{3 U^2}{2 D_m} \frac{\partial^2 \langle c \rangle}{\partial x^2} \int_{-\frac{1}{2}}^{+\frac{1}{2}} \left( \frac{\tilde{z}^2}{4} - \frac{\tilde{z}^4}{2} \right) (1 - 4 \tilde{z}^2) d\tilde{z}, \quad (3.17)$$

$$= -\frac{1}{210} \frac{e_z^2 U^2}{D_m} \frac{\partial^2 \langle c \rangle}{\partial x^2}. \quad (3.18)$$

En utilisant cette dernière expression dans l'équation (3.11), on obtient l'équation suivante pour la concentration moyenne :

$$\frac{\partial \langle c \rangle}{\partial t} = \left( D_m + \frac{1}{210} \frac{e_z^2 U^2}{D_m} \right) \frac{\partial^2 \langle c \rangle}{\partial x^2} - U \frac{\partial \langle c \rangle}{\partial x} \quad (3.19)$$

En se plaçant dans un repère évoluant à la vitesse moyenne  $U$ , c'est-à-dire en effectuant le changement de coordonnées

$$\tilde{x} = x - Ut \quad (3.20)$$

cette équation se réduit à

$$\frac{\partial \langle c \rangle}{\partial t} = D \frac{\partial^2 \langle c \rangle}{\partial \tilde{x}^2} \quad (3.21)$$

qui a la même forme qu'une équation de diffusion de Fick avec un coefficient de diffusion effectif dit coefficient de dispersion

$$D = D_m + \frac{1}{210} \frac{e_z^2 U^2}{D_m}. \quad (3.22)$$

Si on largue entre les deux plaques un échantillon de taille finie de sorte que la condition initiale est un créneau de longueur  $\ell_0$ , l'évolution de la concentration moyenne de la substance larguée sera alors donnée par la solution suivante (Crank, 1976) :

$$\langle c \rangle = \frac{1}{2} \left[ \operatorname{erf} \left( \frac{\frac{\ell_0}{2} - x}{2\sqrt{Dt}} \right) + \operatorname{erf} \left( \frac{x + \frac{\ell_0}{2}}{2\sqrt{Dt}} \right) \right]. \quad (3.23)$$

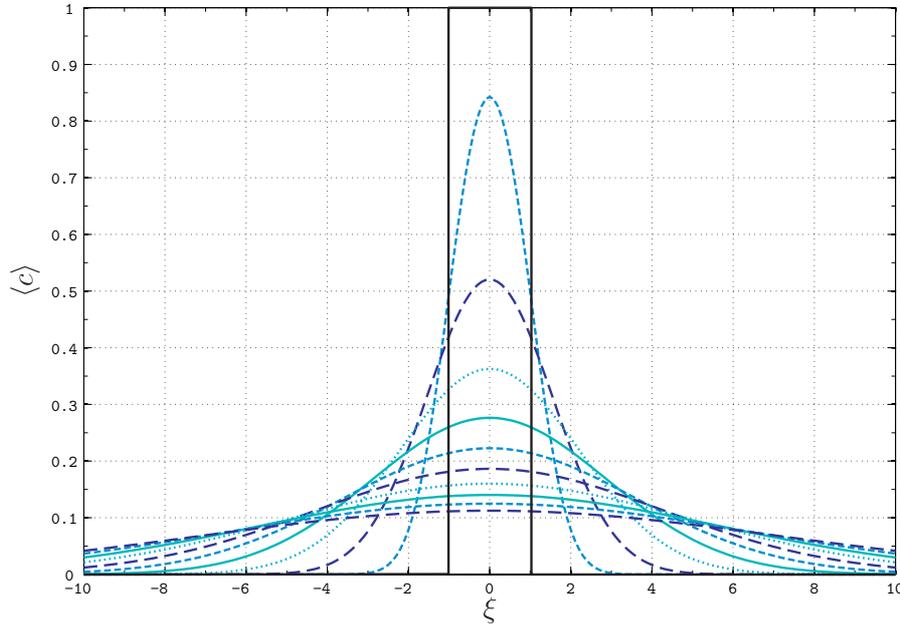


FIGURE 3.3 – Evolution temporelle de la concentration réduite sous l'effet de la diffusion. Les profils sont calculés pour  $\tau = 0, 1 \dots 10$ .

En posant le changement de variable

$$\tau \equiv \frac{2\sqrt{Dt}}{\frac{\ell_0}{2}}, \xi \equiv \frac{x}{\frac{\ell_0}{2}}, \quad (3.24)$$

cette solution s'écrit simplement

$$\langle c \rangle = \frac{1}{2} \left[ \operatorname{erf} \left( \frac{1 - \xi}{\tau} \right) + \operatorname{erf} \left( \frac{1 + \xi}{\tau} \right) \right]. \quad (3.25)$$

La figure 3.3 représente l'évolution de la concentration réduite moyennée sur l'épaisseur de la cellule, au cours du temps. On constate que  $\langle c \rangle$  évolue selon une courbe proche d'une gaussienne, solution typique d'un problème de diffusion pour une condition initiale correspondant à un échantillon initialement localisé. Lorsqu'on calcule la variance de (3.23) pour caractériser l'étalement de cette courbe, on obtient que

$$\sigma^2 = \frac{\ell_0^2}{12} + 2Dt. \quad (3.26)$$

En d'autres termes, la longueur de l'échantillon évolue proportionnellement à la racine carrée du temps :

$$\ell_x(t) - \ell_0 \propto \sqrt{Dt} \quad (3.27)$$

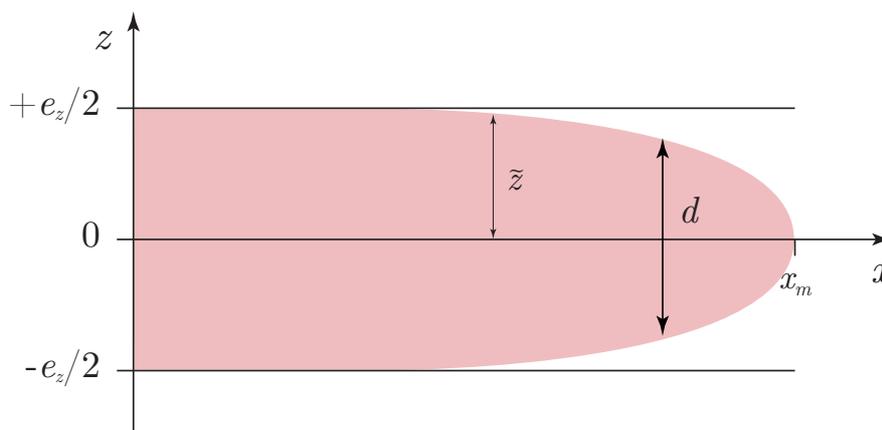


FIGURE 3.4 – Schéma d’une seule interface entre deux fluides déplacés dans la cellule de Hele-Shaw :  $x$  est la direction du flux,  $e_z$  est l’épaisseur de l’interstice la cellule.

Ceci caractérise bien un processus dispersif : malgré la présence d’un flux, le comportement de la concentration moyennée sur l’épaisseur de la cellule présente toutes les caractéristiques d’un transport effectif de type diffusif, résultat du couplage aux temps longs entre diffusion moléculaire et advection par le flux.

Il est à noter que les travaux de [Doshi \*et al.\* \(1978\)](#); [Chatwin et Sullivan \(1982\)](#); [Guell \*et al.\* \(1987\)](#); [Desmet et Baron \(2002\)](#) montrent que lorsqu’on passe du cas de deux plaques infinies séparées par un interstice d’épaisseur  $e_z$  au cas d’un canal de largeur finie  $L_y$  et d’épaisseur  $e_z$ , la prise en compte des effets de bords impliquent que le coefficient de dispersion soit donné par

$$D = D_m + \frac{7.951}{210} \frac{e_z^2 U^2}{D_m}. \quad (3.28)$$

## 3.2 Régime advectif

Dans le cas purement advectif — c’est-à-dire en l’absence de diffusion moléculaire, considérons un profil de Poiseuille déplaçant un scalaire passif tel un colorant. Examinons dans quelle mesure ce flux déforme une interface ou un échantillon de taille finie et calculons la quantité de colorant passif visualisée par un détecteur placé au-dessus de la cellule. Cette quantité est proportionnelle à la couche de colorant dans la tranche que nous allons à présent évaluer.

Considérons tout d’accord le cas d’une seule interface entre deux fluides (cfr. Fig. 3.4). Tout élément de coordonnée initiale  $x_0 = x(z, t = 0)$  sera

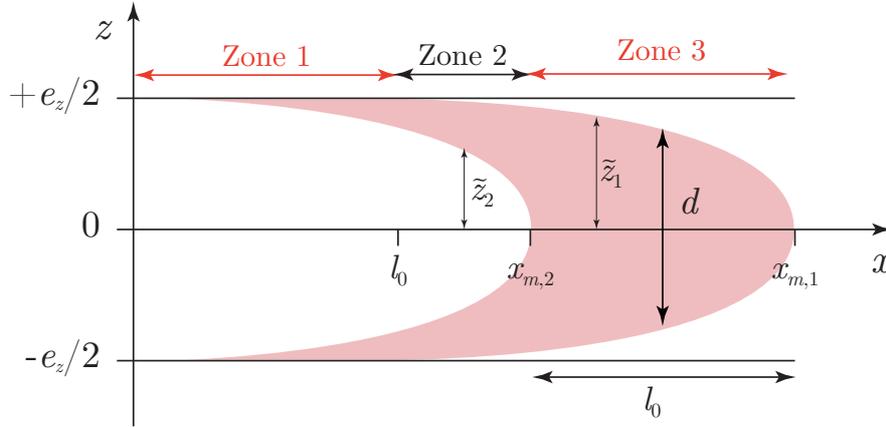


FIGURE 3.5 – Schéma d'un échantillon déplacé dans la cellule de Hele-Shaw :  $x$  est la direction du flux,  $e_z$  est l'épaisseur de l'interstice la cellule.

déplacé selon un mouvement rectiligne uniforme dans la cellule :

$$x(z, t) = x_0 + v(z)t \quad (3.29)$$

$$= x_0 + U_{\max} \left( 1 - 4 \frac{z^2}{e_z^2} \right) t \quad (3.30)$$

où  $U_{\max}$  est la vitesse maximale (au milieu de l'interstice et donc au sommet de la parabole de Poiseuille), liée à la vitesse moyenne par  $U_{\max} = \frac{3}{2}U$ . Comme le profil de Poiseuille est symétrique par rapport au milieu de l'épaisseur de l'interstice ( $z = 0$ ), considérons la demi-épaisseur  $\tilde{z}$  de fluide coloré entre le milieu de l'épaisseur de l'interstice ( $z = 0$ ) et le bord de la plaque ( $z = +\frac{e_z}{2}$ ) au temps  $t$  et au point  $x$  le long de la longueur de la cellule : la demi-épaisseur  $\tilde{z}$  est donnée par

$$\tilde{z} = \frac{e_z}{2} \sqrt{1 - \frac{x - x_0}{U_{\max} t}} \quad (3.31)$$

L'épaisseur totale de colorant traversée au point  $x$  sera simplement donnée par  $d(x) = 2\tilde{z}(x)$ .

Dans le cas d'un échantillon coloré de largeur  $\ell_0$ , initialement rectangulaire et placé entre  $x = 0$  et  $x = \ell_0$  (cfr. Fig. 3.5), appelons  $d(x, t)$  l'épaisseur totale de fluide coloré présente dans la cellule. On connaît  $x_{m,2}(t)$ , la coordonnée du sommet de la parabole de Poiseuille pour le front arrière initialement en  $x = 0$  :

$$x_{m,2}(0, t) = U_{\max} t \quad (3.32)$$

et, de la même manière, pour le front avant initialement en  $x = \ell_0$ , on a :

$$x_{m,1}(0, t) = \ell_0 + U_{\max} t. \quad (3.33)$$

Au temps  $t$ , on définit 3 zones sur l'axe des  $x$  (cfr. Fig. 3.5) :

– zone 1 :

$$0 \leq x \leq \ell_0$$

– zone 2 :

$$\ell_0 < x \leq x_{m,2}(t)$$

– zone 3 :

$$x_{m,2}(t) < x \leq x_{m,1}(t)$$

On a, via (3.31), les demi-épaisseurs suivantes :

$$\tilde{z}_1(x, t) = \frac{e_z}{2} \sqrt{1 - \frac{x - \ell_0}{U_{\max} t}} \quad (3.34)$$

pour le front avant et

$$\tilde{z}_2(x, t) = \frac{e_z}{2} \sqrt{1 - \frac{x}{U_{\max} t}} \quad (3.35)$$

pour le front arrière. Calculons à présent l'épaisseur de fluide teintée traversée dans chacune des zones susmentionnées.

**Zone 1** Le front arrière est formé par un fluide incolore qui pousse le fluide coloré. L'épaisseur totale de fluide coloré est donc donnée par

$$d(x, t) = e_z - 2\tilde{z}_2(x, t). \quad (3.36)$$

**Zone 2** Pour connaître l'épaisseur totale de fluide coloré dans cette zone intermédiaire, on doit soustraire la largeur de la parabole de Poiseuille pour le front arrière (fluide incolore) à la largeur de la parabole de Poiseuille pour le front avant (fluide coloré) de sorte que

$$d(x, t) = 2(\tilde{z}_1(x, t) - \tilde{z}_2(x, t)). \quad (3.37)$$

**Zone 3** L'épaisseur de fluide colorée est simplement la largeur de la parabole de Poiseuille pour le front avant,

$$d(x, t) = 2\tilde{z}_1(x, t). \quad (3.38)$$

Sur base de ces différentes formules, on peut donc calculer  $d(x, t)$  au cours du temps et ainsi comprendre quel est le profil de concentration moyenné sur l'épaisseur perçue lorsqu'on suit l'évolution dans la cellule d'un colorant incorporé dans l'échantillon d'intérêt. La Fig.3.6 donne quelques exemples

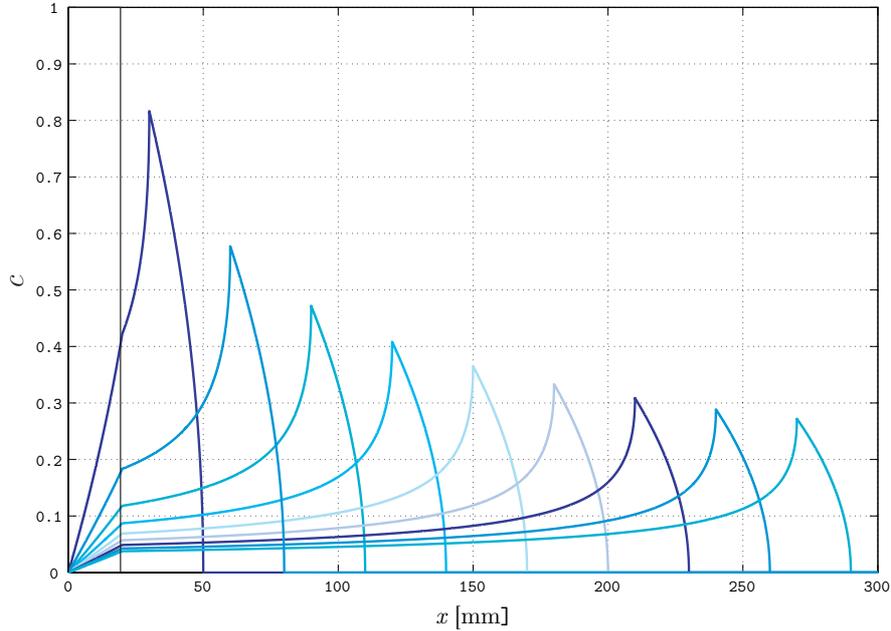


FIGURE 3.6 – Evolution temporelle de la concentration d'un colorant dissous dans un échantillon de taille finie, normalisée à 1, sous l'effet de l'advection. L'échantillon initial a une longueur  $\ell_0 = 20$  mm, la vitesse maximale d'injection est  $U_{\max} = 20$  mm/s, l'interstice de la cellule est  $e_z = 0.25$  mm. Les profils sont calculés chaque seconde.

du profil obtenu au cours du temps. On voit immédiatement par (3.32) que dans un tel régime advectif, la longueur de l'échantillon évolue linéairement avec le temps comme

$$\ell_x(t) = \ell_0 + U_{\max}t \quad (3.39)$$

### 3.3 Echantillons stables : mise en évidence d'un régime advectif et d'un régime dispersif

Afin de caractériser la dispersion au sein de la cellule, nous avons mené une série d'expériences au cours desquelles un échantillon initialement circulaire est déplacé linéairement dans une cellule de Hele-Shaw. Les échantillons sont constitués d'eau colorée au moyen d'un pigment, en l'occurrence du rouge d'amarante. La concentration en colorant permettant d'obtenir à la fois un contraste suffisant et de minimiser les effets de densité (cfr. Sec.4.3) a été estimée à 5g/l.

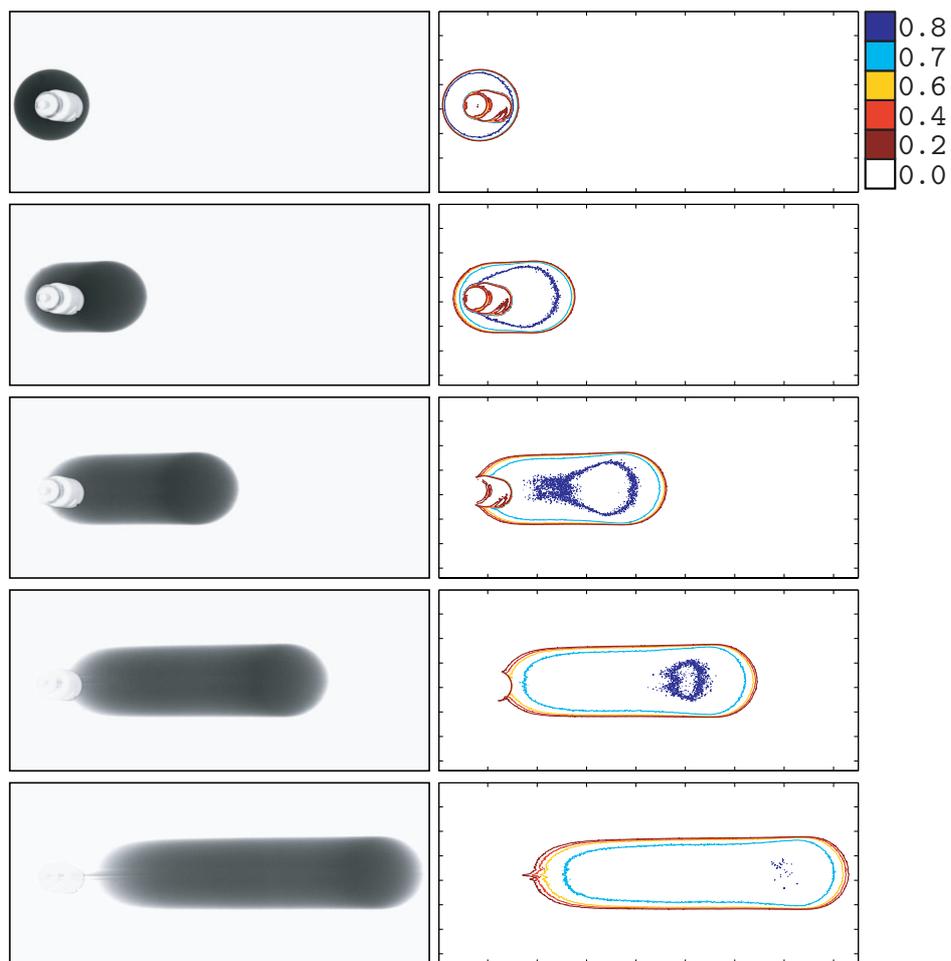


FIGURE 3.7 – Evolution temporelle d'un échantillon initialement circulaire déplacé à une vitesse moyenne  $U = 1.7$  mm/s (à gauche) et zones d'isoconcentration correspondantes (à droite). Le délai entre chaque image est de 40 s. L'image réelle fait 100 mm sur 235 mm.

La figure 3.7 représente un exemple de dynamique d'étalement de l'échantillon dans la cellule. L'échantillon initialement circulaire est déplacé par un flux de gauche à droite et s'allonge au cours du temps. Afin de suivre la dynamique plus précisément, nous calculons les surfaces d'isoconcentration correspondant aux niveaux de gris 0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.7 et 0.8. Le niveau 0.2 correspond à la surface bleu foncée de l'échantillon. De cette manière, nous pouvons clairement voir que la dynamique de l'échantillon est asymétrique. Au fur et à mesure que l'échantillon s'étale, la concentration au centre de l'échantillon diminue, comme l'illustre la disparition de la zone de concentration  $c \geq 0.8$ . Simultanément, la zone de concentration  $c \geq 0.6$  est déplacée vers l'avant de l'échantillon, où elle s'élargit par rapport à l'arrière de l'échantillon.

Pour comprendre quelle est la contribution relative de l'advection et de la dispersion dans ce comportement, nous avons étudié l'évolution temporelle de la longueur  $\ell_{0.015}$  de l'échantillon. Nous avons défini cette longueur comme suit : nous comptons le nombre de pixels gris sur chaque ligne de l'image post-traitée et nous définissons la longueur de l'échantillon comme étant ce nombre de pixels gris sur la ligne comptant le plus de pixels gris. Nous avons déterminé expérimentalement que nous sommes incapables de distinguer les concentrations en colorant inférieures à 1.5% de la concentration initiale (5g/l). Nous avons donc considéré que les pixels dont la valeur de niveau de gris est inférieur à 0.15 sont des pixels blancs.

La Fig.3.8 montre l'évolution temporelle de cette longueur  $\ell_{0.015}$  au cours du temps dans le cas d'échantillons de 0.123 ml d'eau teintée — ce qui correspond à une longueur initiale  $\ell_0 = 25$  mm — déplacés à différentes vitesses dans le cas où  $e_z = 0.25$  mm. On observe que pour les vitesses les plus basses, cette longueur paraît évoluer en racine carrée du temps, ce qui suggère un régime dispersif et, pour les vitesses les plus hautes, la longueur semble évoluer linéairement avec le temps, ce qui suggère un régime purement advectif.

### 3.3.1 Critère de Taylor

Afin d'être certains que nous pouvons effectivement observer un régime dispersif dans la cellule, nous devons avant tout nous assurer que le critère de Taylor (3.1) est bien vérifié dans nos expériences. Ce critère veut en effet que pour atteindre un régime dispersif, il faut que le temps caractéristique de la diffusion soit inférieur à celui de l'advection. Pour vérifier ce critère, nous devons le réécrire pour le cas de notre cellule.

Pour déterminer le temps caractéristique de la diffusion, considérons l'équa-

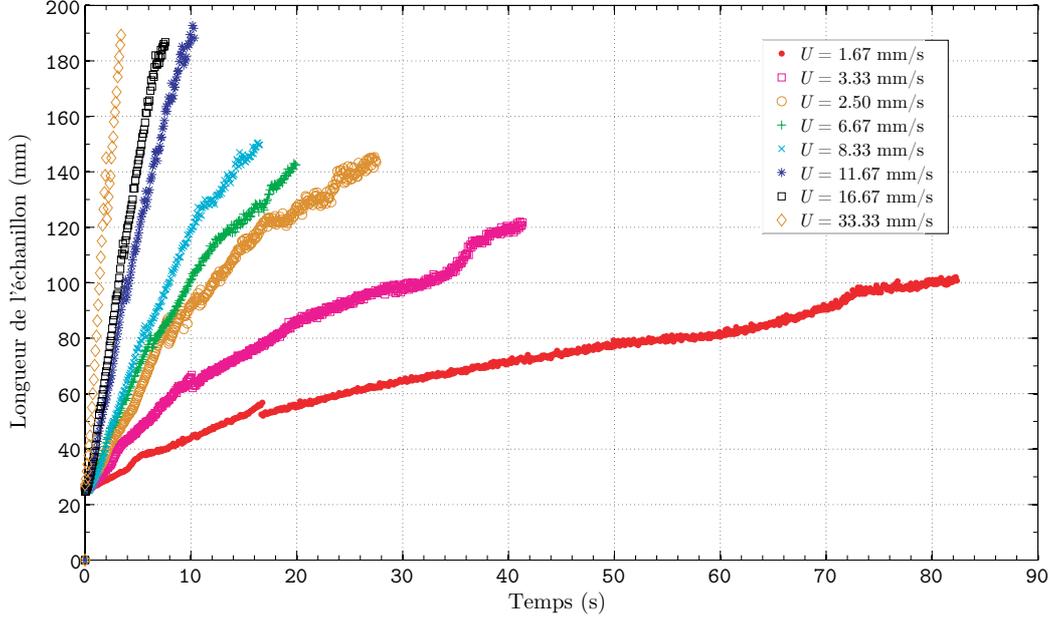


FIGURE 3.8 – Evolution temporelle de la longueur d'échantillons déplacés dans le cellule.

tion de diffusion

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D_m \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \quad (3.40)$$

pour un champ de concentration qui ne dépend que de  $z$ . Supposons que ce champ est symétrique par rapport à l'axe  $z = 0$ , ce qui est cohérent avec le cas qui nous intéresse : en effet, le profil de Poiseuille étant symétrique par rapport à  $z = 0$ , le champ de concentration déplacé par le flux sera lui aussi symétrique par rapport à  $z = 0$ .

En utilisant la condition aux limites

$$\left[ \frac{dc}{dz} \right]_{z=\pm \frac{e_z}{2}} = 0 \quad (3.41)$$

et en utilisant la séparation des variables,  $c = c_z(z)c_t(t)$ , on obtient la solution suivante pour (3.40) (Bae *et al.*, 2009)

$$c(z, t) = \sum_{n=0}^{\infty} A_n \cos\left(\frac{2\pi n z}{e_z}\right) \exp\left(-\frac{4\pi^2 n^2 D_m t}{e_z^2}\right) \quad (3.42)$$

où  $A_n$  est une constante. On peut donc déduire que le mode décroissant le moins vite est  $n = 1$  et que son temps caractéristique de diffusion sera

$$\tau_d = \frac{e_z^2}{4\pi^2 D_m}. \quad (3.43)$$

Le temps caractéristique de l'advection est donné par

$$\tau_a = \frac{\ell}{U} \quad (3.44)$$

où  $\ell$  est une longueur caractéristique de l'advection. Classiquement, on considère pour l'advection selon l'axe  $x$  que cette longueur est la longueur de la cellule  $L_x$  (Dorfman et Brenner, 2001).

Dans le cas de notre cellule, le critère de Taylor qui donne la condition dans laquelle un régime dispersif peut être atteint, pourra donc s'écrire comme suit :

$$\tau_d = \frac{e_z^2}{4\pi^2 D_m} \ll \frac{L_x}{U} = \tau_a. \quad (3.45)$$

Si l'on suppose que le coefficient de diffusion du colorant de l'échantillon est typiquement de l'ordre de  $10^{-3} \text{ mm}^2/\text{s}$  et dans le cas de la vitesse maximale que nous considérons ( $U = 33.33 \text{ mm/s}$ ) on vérifie bien le critère de Taylor puisque

$$\tau_d = 1.6 \text{ s} \ll \tau_a = 17.1 \text{ s},$$

et nous nous attendons donc à pouvoir observer le régime de Taylor-Aris dans nos expériences.

### 3.3.2 Détermination du coefficient de diffusion

Le régime dispersif est un régime asymptotique (Dorfman et Brenner, 2001) : pour que l'on puisse observer un régime dispersif, il faut que la diffusion moléculaire ait eu le temps d'homogénéiser la concentration sur l'épaisseur de l'interstice de la cellule. Au début de nos expériences, pour des temps courts, cette homogénéisation n'a pas encore lieu et on observe une dynamique de type advectif. Après un certain temps, l'homogénéisation permet la transition vers le régime dispersif. Nous désirons déterminer ce moment où l'on peut effectivement observer la transition entre les deux régimes. Pour ce faire, nous devons estimer le temps caractéristique de la diffusion moléculaire, ce qui implique d'estimer le coefficient de diffusion moléculaire du scalaire passif suivi ici.

Afin de déterminer le coefficient de diffusion du rouge d'amarante, nous avons effectué un ajustement de  $(\ell(t) - \ell_0)^2$  par une droite et par une parabole auxquelles correspondent respectivement le coefficient de détermination  $r_1^2$  et  $r_2^2$  3.1. Nous avons supposé que dans le cas où  $r_1^2 > r_2^2$ , la transition entre régime advectif et dispersif est visible sur la courbe. C'est le cas pour l'ensemble des vitesses  $U < 8.33 \text{ mm/s}$ .

Afin de déterminer le coefficient de dispersion, nous devons prendre en compte le seuil de détection de la concentration réduite, soit 1.5%. Il faut

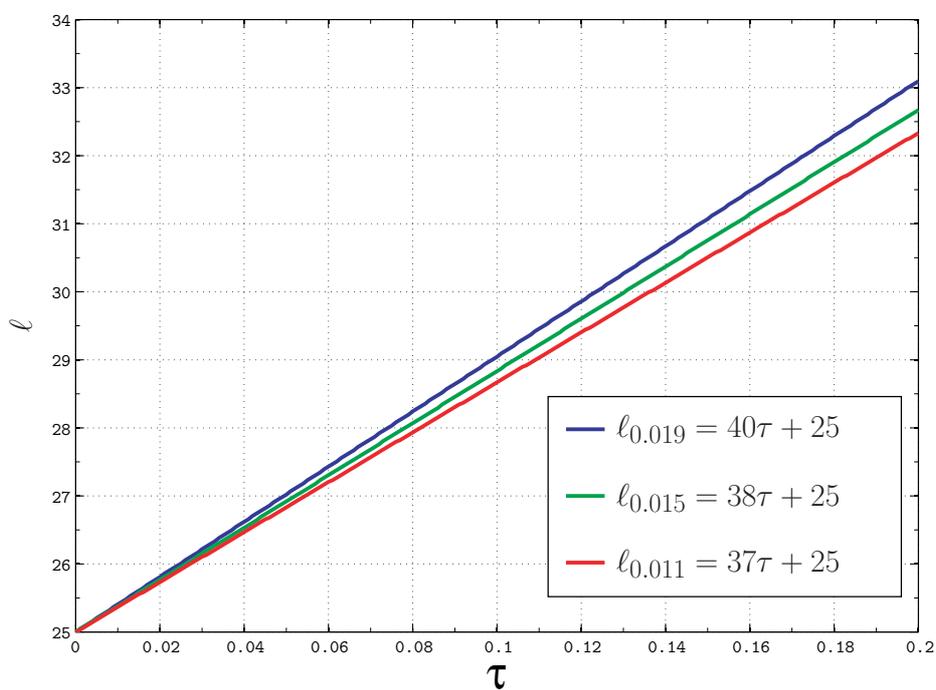


FIGURE 3.9 – Evolution temporelle de la longueur de l'échantillon en prenant en compte le seuil de 1.5% en fonction de  $\tau = 4\sqrt{Dt}/\ell_0$ .

$U$ [mm/s]	$U_{\max}$ [mm/s]	$r_1^2$	$r_2^2$	$D$ [mm <sup>2</sup> /s]	$D_m$ [10 <sup>-3</sup> mm <sup>2</sup> /s]
1.67	2.50	0.95	0.87	1.34	0.5
3.33	5.00	0.96	0.89	4.5	0.6
5.00	7.50	0.97	0.89	11.4	0.6
6.67	10.00	0.96	0.94	14.5	0.8
8.33	12.50	0.94	0.97		
11.67	17.50	0.90	0.99		
16.67	25.00	0.89	0.99		
33.33	50.00	0.89	0.98		

TABLE 3.1 – Vitesse d’injection  $U$ , vitesse maximale correspondante  $U_{\max} = \frac{3}{2}U$ , coefficients de détermination de l’ajustement par une droite passant par l’origine de  $(\ell - \ell_0)$ ,  $r_1$ , et de  $(\ell - \ell_0)^2$ ,  $r_2$ , coefficient de dispersion  $D$  et coefficient de diffusion correspondant  $D_m$ .

« couper » les profils de concentration réduite de la figure 3.3 à ce seuil pour obtenir la variation temporelle de la longueur  $\ell_{0.015}$ . Comme le montre la figure 3.9, en utilisant l’équation (3.23) pour déterminer les profils de concentration et en déduisant la longueur sur laquelle  $\langle c \rangle \geq 0.015$ , l’évolution temporelle de  $\ell_{0.015}$  est donnée par

$$\ell_{0.015} \approx \ell_0 + 3.07 \frac{\ell_0}{2} \tau = \ell_0 + 6.14 \sqrt{Dt}. \quad (3.46)$$

Grâce à cette équation, on peut estimer  $D$  pour chaque courbe correspondant à une vitesse  $U < 8.33$  mm/s et en déduire une valeur de  $\hat{D}_m$  pour chaque courbe via l’équation (3.22). La figure 3.10 représente  $(\ell - \ell_0)^2$  en fonction du temps : les points sont les données expérimentales et les droites représentent l’estimation via les moindres carrés.  $D$  est établi sur base du coefficient angulaire de ces droites, en utilisant (3.46).

L’erreur sur les niveaux de gris est  $1/255 = 0.004$ . Dès lors, en prenant en compte  $\ell_{0.011}$  et  $\ell_{0.019}$  ainsi que l’erreur sur le fit des  $\hat{D}_m$ , on arrive à une erreur sur les coefficients  $\hat{D}_m$  de l’ordre de  $\Delta \hat{D}_m = \pm 0.310^{-3}$  mm<sup>2</sup>/s.

Nous avons utilisé en guise d’estimation de la valeur du coefficient de diffusion réel, la moyenne des  $\hat{D}_m$  :  $D_m = 0.65 \cdot 10^{-3}$  mm<sup>2</sup>/s. Il est cependant à noter que, comme nous avons estimé  $D$  sur l’ensemble des points de chaque courbe, nous n’avons pas respecté le fait que le régime dispersif de Taylor-Aris est un régime asymptotique : pour pouvoir vraiment estimer le coefficient de diffusion  $D_m$ , il faudrait considérer uniquement les points de chaque courbe montrant l’évolution temporelle de  $\ell$  après un certain temps ce qui permettrait d’assurer que l’on se situe bien dans un régime dispersif. Néanmoins, comme on le constate dans la table 3.1, l’ordre de grandeur des  $\hat{D}_m$  est identique pour toutes les vitesses étudiées. Dans la mesure où nous avons plus de points qui correspondent au régime dispersif pour les vitesses

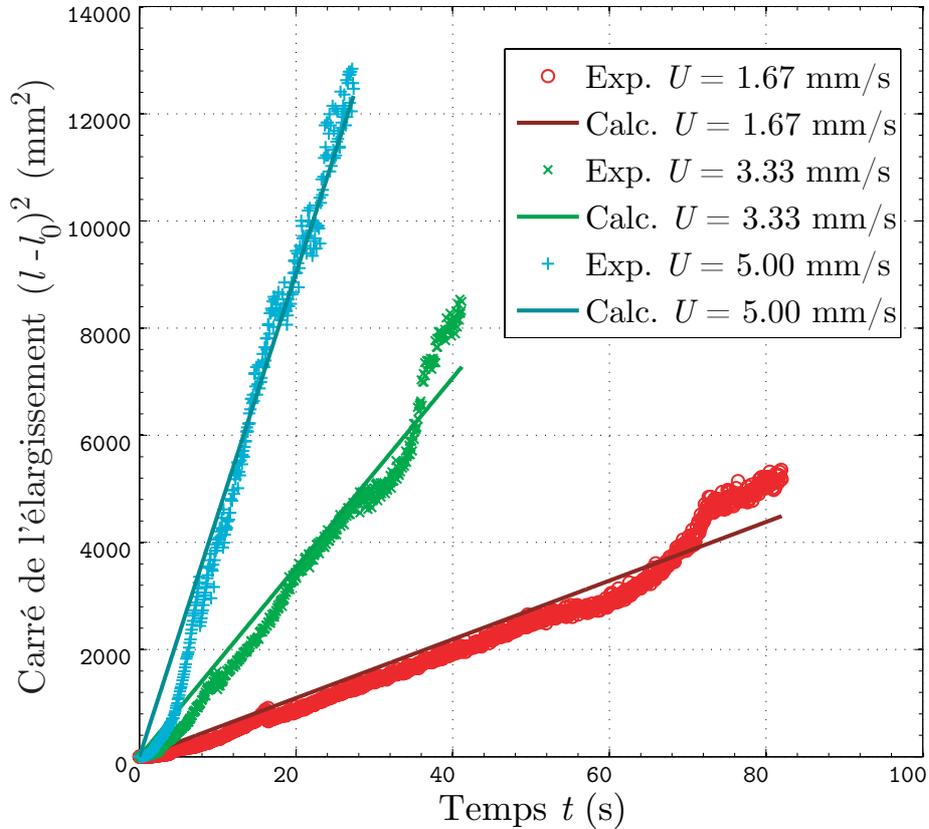


FIGURE 3.10 – Evolution temporelle du carré de l'élongation de l'échantillon  $(\ell_0 - \ell(t))^2$  en fonction du temps pour les basses vitesses ( $U = 1.67, 3.33, 5$  mm/s) : valeurs expérimentales (points) et valeurs théoriques pour  $D_m = 0.65 \cdot 10^{-3}$  mm<sup>2</sup>/s (lignes continues).

les plus basses, on peut supposer que le  $\hat{D}_m$  estimé pour ces vitesses est plus proche du coefficient de diffusion réel  $D_m$ .

Lorsque l'on représente la courbe des valeurs théoriques du coefficient de dispersion calculées via (3.22) pour le coefficient de diffusion moléculaire  $D_m = 0.65 \cdot 10^{-3}$  mm<sup>2</sup>/s en fonction de la vitesse maximale au milieu de la cellule,  $U_{\max}$  (Fig.3.11), on observe que les valeurs expérimentales de  $D$  sont bien alignées sur cette courbe pour  $U_m = 2.5, 5, 7.5$  mm/s. Par contre, pour  $U_{\max} = 10$  mm/s, ce n'est pas le cas, ce qui est lié à cette estimation de  $D$  sur l'ensemble des points de chaque courbe expérimentale.

En procédant de manière similaire mais en tenant compte cette fois des effets de bords et en utilisant l'équ. (3.28), on obtient un coefficient de diffusion moléculaire  $D_m = (3 \pm 1) \cdot 10^{-3}$  mm<sup>2</sup>/s. Il faut cependant noter que vu

que dans notre cas, l'échantillon ne touche pas les bords de la cellule, il n'est pas évident que ces effets de bords interviennent de manière importante.

### 3.3.3 Temps caractéristique de la transition entre régime advectif et régime dispersif

On peut estimer le temps caractéristique de la diffusion  $\tau_d$  pour  $D_m = 0.65 \cdot 10^{-3} \text{ mm}^2/\text{s}$  via (3.45) :  $\tau_d \approx 2.5 \text{ s}$ . Pour  $D_m = 3 \cdot 10^{-3} \text{ mm}^2/\text{s}$ , on a  $\tau_d \approx 1 \text{ s}$ .

Dans le cas d'un capillaire de section  $a$ , Gill et Sankarasubramanian (1970) montrent que le régime de Taylor-Aris est atteint après un temps

$$t^* \approx 0.2 \frac{a^2}{D_m}. \quad (3.47)$$

En supposant — à l'instar de Dorfman et Brenner (2001) et Pagitsas *et al.* (1986) — que l'on puisse remplacer le diamètre  $a$ , dimension caractéristique du capillaire, par l'épaisseur  $e_z$  de l'interstice de la cellule dans notre cas, on a  $t^* \approx 20.0 \text{ s}$  pour  $D_m = 0.65 \cdot 10^{-3} \text{ mm}^2/\text{s}$  et  $t^* \approx 2 \text{ s}$  pour  $D_m = 3 \cdot 10^{-3} \text{ mm}^2/\text{s}$ . La transition vers le régime de Taylor-Aris sera donc comprise entre 1 s et maximum 20 s, ce qui signifie que nous pouvons l'observer sur l'échelle de temps de nos expériences.

Sur la figure 3.10, on a tracé l'évolution théorique du carré de l'élongation de l'échantillon  $(\ell - \ell_0)^2$  au cours du temps en utilisant  $D_m = 0.65 \cdot 10^{-3} \text{ mm}^2/\text{s}$ . Si l'accord est assez bon pour  $U = 1.67, 3.33 \text{ mm/s}$  tout au long de la courbe, pour  $U = 5.00 \text{ mm/s}$ , on observe qu'initialement la courbe théorique ne correspond pas à la courbe issue des données expérimentales (celle-ci semble en effet évoluer comme une parabole pendant les 10 premières secondes). On peut supposer que le temps de transition vers le régime de Taylor-Aris est, dans ce cas, de l'ordre d'une dizaine de secondes.

Cependant, à moins de dériver une solution exacte de l'équation d'advection-diffusion à des temps courts, on ne peut déterminer précisément le temps de transition au-delà duquel le régime de Taylor-Aris est atteint (Taylor, 1954a; Gill, 1967; Gill et Sankarasubramanian, 1970).

### 3.3.4 Régime advectif

A plus haute vitesse ( $U > 8.33 \text{ mm/s}$ ), l'évolution de la longueur de l'échantillon est linéaire dans le temps (cfr. Fig.3.8) ce qui correspond à un régime advectif (cfr. Sec.3.2). En tenant compte du seuil de détection de 1.5%, on peut calculer théoriquement l'évolution temporelle de la longueur

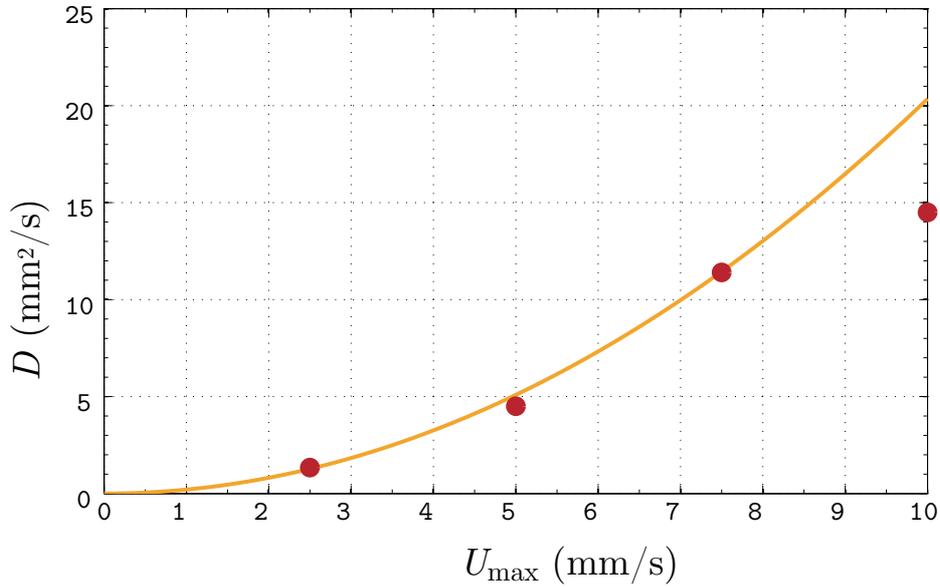


FIGURE 3.11 – Coefficient de dispersion en fonction de la vitesse maximale au milieu de l’épaisseur de l’interstice dans la cellule  $U_{\max} = \frac{3}{2}U$  : mesures expérimentales (points) et valeurs théoriques données par l’équ. (3.22) pour le coefficient de diffusion moléculaire  $D_m = 0.65 \cdot 10^{-3} \text{ mm}^2/\text{s}$ .

de l’échantillon : pour cela, il faut couper les profils de la Fig.3.6 au niveau du seuil de détection.

La Fig.3.12 présente une comparaison entre valeurs calculées de la sorte et valeurs expérimentales. On observe que pour  $U = 11.67, 16.67, 33.33 \text{ mm/s}$ , les deux courbes correspondent bien. Par contre, l’évolution de la longueur de l’échantillon déplacé à  $U = 8.33 \text{ mm/s}$  ne correspond pas à l’évolution théorique. Ceci indique la nécessité de tenir compte de la diffusion moléculaire pour les vitesses d’injection de l’ordre de et inférieures à  $8.33 \text{ mm/s}$ , sur nos échelles de temps expérimentales.

### 3.3.5 Simulations du cas advectif

Afin de déterminer si les éléments de la dynamique observée expérimentalement (fig. 3.7) peuvent être dus à l’advection, on a simulé en utilisant un code MATLAB l’étalement d’un échantillon initialement cylindrique déplacé par un flux de Poiseuille discrétisé dans l’épaisseur, en tenant compte d’un seuil de détection de 1.5% de la concentration initiale. L’échantillon est composé, dans ce modèle, d’une pile de hauteur  $e_z$  de  $n$  disques de hauteur  $dh = e_z/n$  et de largeur  $\ell_0 = 25 \text{ mm}$  déplacés dans la cellule par le profil parabo-

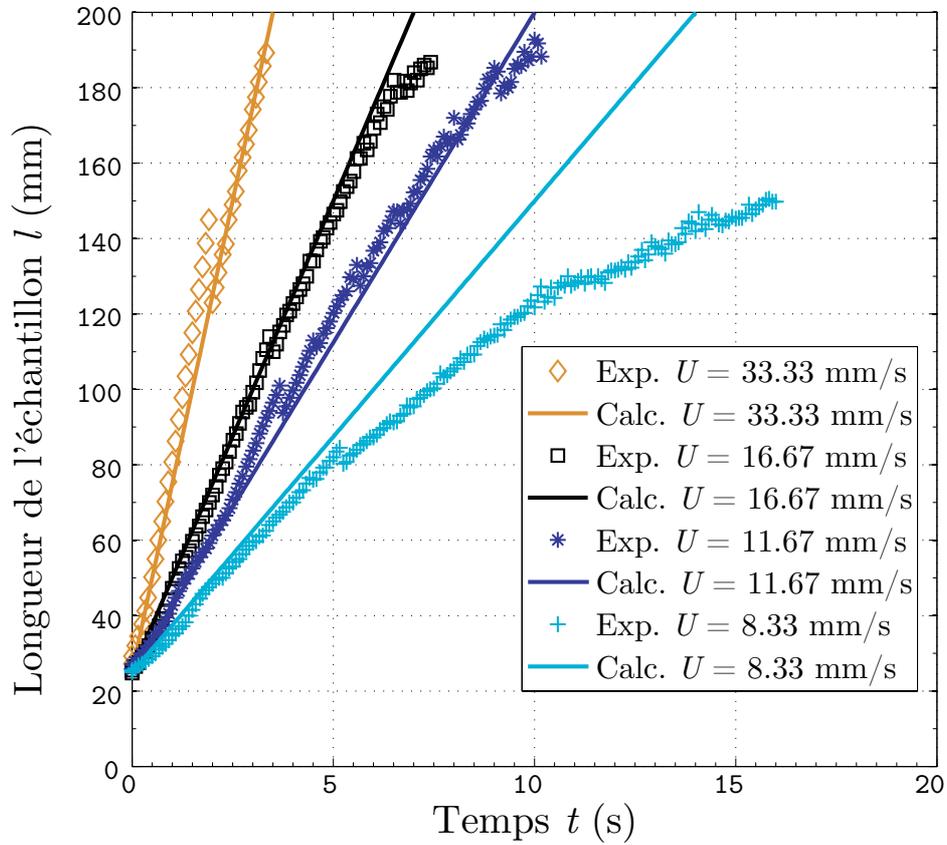


FIGURE 3.12 – Evolution temporelle de la largeur de l'échantillon en fonction du temps pour les hautes vitesses ( $U = 8.33, 11.67, 16.67, 33.33$  mm/s) : valeurs expérimentales (points) et valeurs théoriques calculées via le modèle purement advectif (lignes continues).

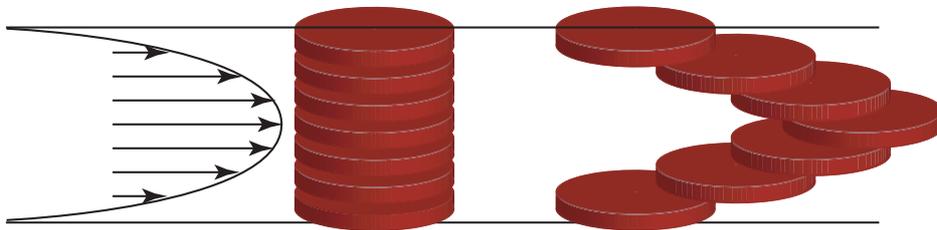


FIGURE 3.13 – Modèle pour la simulation du transport purement advectif d'un échantillon constitué d'une pile de disques.

lique de Poiseuille : le centre du disque  $i$  ( $i = \frac{-n}{2}, \frac{-n}{2} + 1, \dots, 0, \dots, \frac{+n}{2} - 1, \frac{+n}{2}$ ) avance en mouvement rectiligne uniforme avec une vitesse

$$v(i) = U_{\max} \left( 1 - \frac{4(i \cdot dh)^2}{e_z^2} \right)$$

Le champ de concentration moyenné sur l'épaisseur et les courbes d'iso-concentrations correspondantes sont représentés sur la Fig.3.14 pour le cas d'un échantillon déplacé à une vitesse moyenne faible  $U = 1.67$  mm/s. On peut conclure de ces résultats que le déplacement vers l'avant de l'échantillon des zones de concentration plus importantes observé en Fig.3.7, est due à l'advection. Par contre, le périmètre des zones de plus basses concentrations est nettement plus réduit dans l'expérience que dans la simulation. Cette différence est due à la diffusion moléculaire, qui étale latéralement l'échantillon au cours du temps et qui homogénéise la concentration dans l'épaisseur de la cellule. Cette homogénéisation explique que l'on n'observe pas expérimentalement la forme de croissant de lune correspondant aux crêtes observables sur les profils de la fig. 3.6 et qui apparaît à l'avant de l'échantillon dans la simulation.

### 3.4 Effet de la taille de l'échantillon

Afin d'étudier si la dynamique observée dépend ou non de la taille initiale de l'échantillon, nous avons effectué une série d'expériences similaires à celles de la Fig. 3.8 en variant cette taille initiale de l'échantillon. Nous avons choisi de varier la largeur initiale jusqu'à une largeur maximale de 65 mm de manière à être certain de rester dans la partie de la largeur de la cellule où le profil de vitesse dans la largeur est plat (cfr sec. 2.1.1). La largeur minimale (20 mm) est suffisante pour couvrir entièrement la vanne d'injection.

Sur la Fig.3.15 est représenté l'élargissement temporel de l'échantillon ( $\ell(t) - \ell_0$ ) dans le cas d'une haute vitesse d'injection  $U_m = 25.00$  mm/s. On ne constate pas de différence notable entre  $\ell_0 = 25, 35, 65$  mm. Les bosses observables sur la courbe correspondent au passage de l'échantillon au-dessus de la vanne, qui se produit plus tard pour les échantillons plus larges. Par contre, pour  $\ell_0 = 20$  mm, la concentration de l'échantillon descend plus vite sous le seuil de détection, ce qui explique sans doute le fait que l'élargissement de l'échantillon apparaisse moins important au cours du temps.

La Fig.3.16 montre l'élargissement temporel de l'échantillon ( $\ell(t) - \ell_0$ ) dans le cas d'une basse vitesse d'injection  $U_m = 5.00$  mm/s. On ne constate aucune différence notable entre  $\ell_0 = 25$  et 35 mm pour les temps courts ( $t < 25$  s). Par contre, au-delà de 25 s, la taille initiale de l'échantillon semble

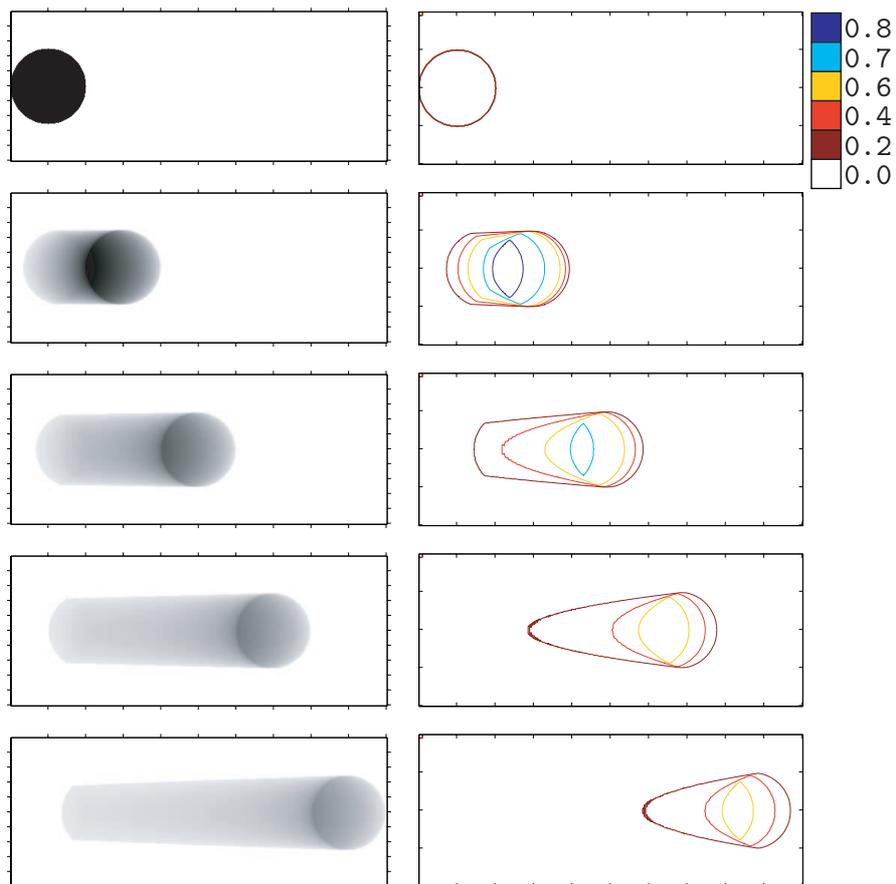


FIGURE 3.14 – Simulation de l'évolution temporelle d'un échantillon déplacé par advection à une vitesse moyenne  $U = 1.67$  mm/s (à gauche) et zones d'isoconcentration correspondantes (à droite). Le délai entre chaque image est de 40 s. Le système fait 100 mm sur 300 mm, l'échantillon fait 50 mm de diamètre et est composé de 25 000 couches.

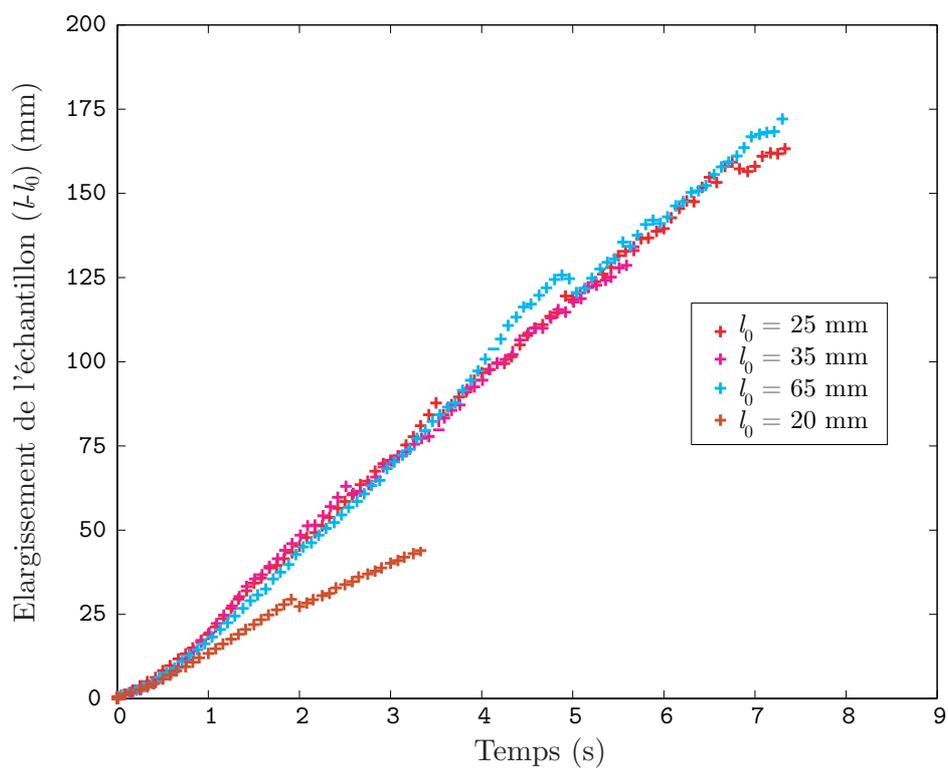


FIGURE 3.15 – Effet de la taille initiale de l'échantillon sur l'évolution temporelle de son élargissement à haut débit ( $U_m = 25.00$  mm/s) : évolution de l'élargissement de l'échantillon ( $\ell(t) - \ell_0$ ) au cours du temps pour 4 valeurs de  $\ell_0$ .

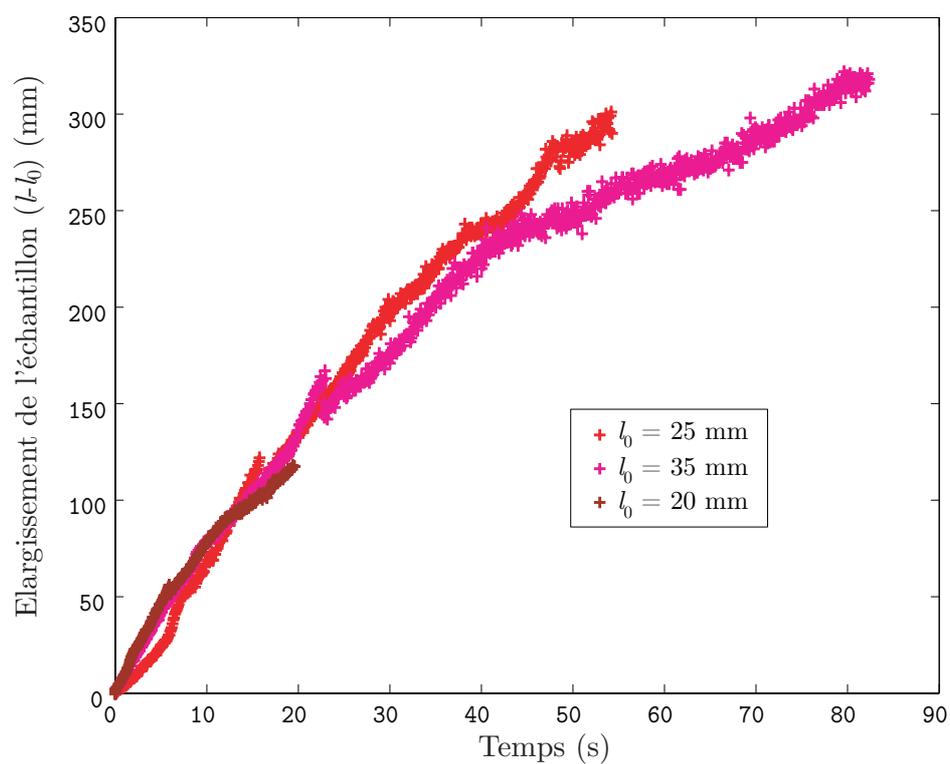


FIGURE 3.16 – Effet de la taille initiale de l'échantillon sur l'évolution temporelle de son élargissement à bas débit ( $U_m = 5.00$  mm/s) : évolution de l'élargissement de l'échantillon ( $\ell(t) - \ell_0$ ) au cours du temps pour 3 valeurs de  $\ell_0$ .

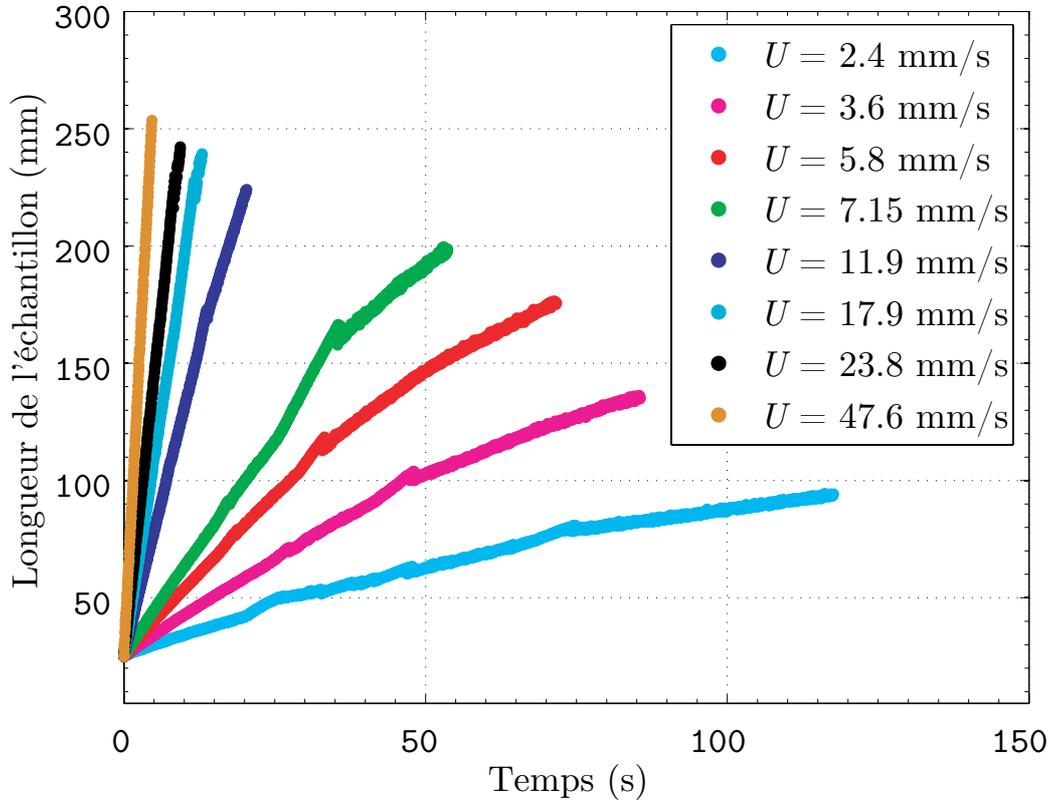


FIGURE 3.17 – Effet de l'épaisseur de la cellule : évolution temporelle de la longueur de l'échantillon pour  $e_z = 0.5$  mm.

avoir une influence sur l'évolution temporelle de son élargissement. Dans cette partie du graphe, on peut raisonnablement estimer que le régime dispersif de Taylor-Aris est atteint. La diffusion moléculaire contribue donc à l'homogénéisation de l'échantillon sur l'épaisseur de la cellule. Plus l'échantillon sera large à un moment donné, plus l'efficacité de cette homogénéisation sera importante, ce qui peut expliquer le découplage des deux courbes et l'évolution plus lente de la courbe  $\ell_0 = 35$  mm. Pour  $\ell_0 = 20$  mm, la concentration de l'échantillon passe beaucoup plus vite sous le seuil de détection, ce qui explique sans doute le fait que l'élargissement de l'échantillon apparaisse moins important au cours du temps.

### 3.5 Effet de l'épaisseur de la cellule

Nous avons réalisé une série d'expériences similaires à celles de la Fig. 3.8 pour une épaisseur plus importante de la cellule, en l'occurrence  $e_z =$

0.5 mm. Comme on l’observe sur la Fig. 3.17, le régime dispersif n’apparaît que pour des vitesses nettement plus faibles que précédemment sur l’échelle de temps de nos expériences. On peut expliquer cette observation par le fait que cela prend plus de temps pour que la diffusion moléculaire homogénéise la distorsion de l’échantillon due au profil de Poiseuille dans des interstices plus épais, le régime de Taylor-Aris étant dès lors atteint pour des temps beaucoup plus importants. La valeur du temps de transition proposée par Gill et Sankarasubramanian (1970) dans le cas d’un capillaire évolue comme le carré de la section du tube. On peut donc s’attendre à un comportement similaire dans le cas de la cellule.

### 3.6 Conclusions

La dispersion résulte du couplage entre diffusion moléculaire et transport par advection : l’étalement d’un scalaire passif (ici un colorant) au cours du temps peut alors se décrire mathématiquement comme un processus diffusif de type fickien mais le coefficient de diffusion effectif de ce transport est une fonction de la vitesse d’injection du fluide vecteur. Le régime dispersif n’est atteint qu’après un certain temps, dépendant de la géométrie du système considéré et de la vitesse d’advection. Nous avons étudié expérimentalement la dispersion en suivant l’étalement d’échantillons initialement circulaires d’eau colorée par du rouge d’amarante déplacés par de l’eau non-colorée dans notre cellule de Hele-Shaw.

Tout d’abord, pour une épaisseur de l’interstice entre les plaques de la cellule de Hele-Shaw fixée à  $e_z = 0.25$  mm, nous avons fait varier la vitesse d’injection du fluide vecteur. Nous avons mis en évidence que, dans le cas de vitesses faibles ( $U < 8.33$  mm/s), l’échantillon s’étale bien selon un processus dispersif. Nous avons sur base de l’évolution temporelle de la largeur de l’échantillon, estimé la valeur du coefficient de diffusion moléculaire du colorant (rouge d’amarante). Ceci nous a permis de montrer que sur les échelles de temps de nos expériences, le régime dispersif n’est atteint que pour les vitesses faibles. A haute vitesse ( $U > 11.67$  mm/s), l’étalement de l’échantillon observé dans nos expériences est donc essentiellement dû à l’advection. Nous avons proposé un modèle simple pour simuler l’évolution temporelle de l’échantillon au cours du temps dans le régime purement advectif en tenant compte du seuil de détection en concentration. L’accord entre les résultats des expériences à haute vitesse et les résultats des simulations est excellent.

Nous avons ensuite étudié l’effet de la largeur initiale de l’échantillon sur l’évolution temporelle de l’élargissement de l’échantillon. Nous avons mis en évidence que lorsque le régime dispersif est atteint et pour un temps donné,

plus l'échantillon est initialement large, plus l'étalement de l'échantillon est important.

Enfin, nous avons montré expérimentalement que plus l'interstice entre les deux plaques est épais, plus il faut de temps pour atteindre le régime dispersif à une vitesse fixée. En d'autres termes, si l'on désire observer l'influence de la diffusion moléculaire par exemple sur l'évolution d'un motif de digitation visqueuse, il vaut mieux réduire l'épaisseur de la cellule au maximum pour une vitesse fixée (Oltean *et al.*, 2008).

---

## EFFETS DE DENSITÉ

---

Lorsque l'on étudie expérimentalement la dynamique de déplacement d'une interface entre deux fluides miscibles de viscosités différentes, il est important de réaliser que, dans la majorité des cas, des effets de densité vont également affecter la dynamique. En effet, la plupart du temps, si les deux fluides ont une viscosité différente, ils ont aussi une densité différente. Or dans le champ de gravité, un gradient de densité à travers une interface peut aussi mener à sa déstabilisation. Il est typiquement bien connu que lorsque l'interface entre deux fluides de densité différente est soumise à une accélération selon la direction opposée à celle du gradient de densité, elle se déforme et des doigts apparaissent (Chandrasekhar, 1961). C'est le cas, par exemple, lorsqu'un fluide plus dense est placé au-dessus d'un fluide moins dense dans le champ de gravité. Ce phénomène de *digitation de densité*, aussi appelé *instabilité de Rayleigh-Taylor*, a fait l'objet de nombreux travaux théoriques et expérimentaux. Dans le cas où une interface entre deux fluides de viscosité et densité différentes est déplacée dans un milieu poreux ou une cellule de Hele-Shaw, les effets de densité peuvent se coupler à la digitation visqueuse. Deux paramètres de contrôle doivent alors être définis : la différence de densité

$$\Delta\rho = \rho_1 - \rho_2,$$

et le rapport logarithmique des viscosités

$$R = \ln \left( \frac{\mu_1}{\mu_2} \right).$$

Certains travaux expérimentaux menés sur la digitation de densité considèrent les cas  $R \geq 0$  et  $\Delta\rho > 0$  pour un milieu poreux (Hill, 1952; Wooding, 1962; Bachmat et Elrick, 1970; Schincariol et Schwartz, 1990; Jiao et Hötzl, 2004) ou une cellule de Hele-Shaw placée verticalement (Wooding, 1969; Baccari *et al.*, 1992; Fernandez *et al.*, 2002; Felder, 2003; Oltean *et al.*, 2004;

Felder *et al.*, 2004; Oltean *et al.*, 2008). R.A. Wooding, en 1969, a mené une étude expérimentale de l'instabilité de Rayleigh-Taylor dans une cellule de Hele-Shaw verticale, pour le cas de fluides de densités différentes ( $\Delta\rho > 0$ ) mais de même viscosité ( $R = 0$ ) (Wooding, 1969). Ses travaux mettent en évidence l'existence de deux régimes différents en fonction de la différence de densités : un régime caractérisé par le développement de doigts larges (lorsque la différence de densités est faible) et un régime caractérisé par un tip-splitting intense lorsque cette différence est importante. Plus récemment, Fernandez *et al.* (2002) ont étudié expérimentalement le même système pour une gamme de paramètres plus large. Ils étudient le développement de l'instabilité en fonction de  $Ra$ , le nombre de Rayleigh, défini comme

$$Ra = \frac{\Delta\rho g e_z^3}{12D_m\mu} \quad (4.1)$$

où  $\Delta\rho = \rho_1 - \rho_2$  est la différence de densité et  $\mu = \mu_1 = \mu_2$  est la viscosité des deux fluides. Ils obtiennent que pour des basses valeurs de  $Ra$  ( $Ra < 10$ ), la longueur d'onde caractéristique de la digitation  $\lambda$  normalisée par l'épaisseur de l'interstice de la cellule  $e_z$ , à savoir le rapport  $\lambda/e_z$ , évolue comme  $Ra^{-1}$ . Par contre, pour des valeurs plus importantes de  $Ra$  ( $Ra > 100$ ), cette longueur d'onde sature à une valeur d'environ  $5 \times e_z$ . L'étude expérimentale du déplacement d'un fluide moins dense par un fluide plus dense dans un milieu poreux homogène menée par Schincariol et Schwartz (1990) montrent qu'une différence de densité de  $0.0008 \text{ g/cm}^3$  peut suffire pour déstabiliser l'interface entre les deux fluides.

Des travaux théoriques étudient également le cas  $\Delta\rho > 0$  et  $R < 0$  (visqueusement stable) en 3 dimensions, dans le cas d'une cellule de Hele-Shaw verticale (Goyal et Meiburg, 2004) et dans le cas d'une injection localisée d'un fluide plus dense et plus visqueux dans un milieu poreux rempli d'un fluide moins dense et moins visqueux (Riaz et Meiburg, 2003).

Bien que la cellule de Hele-Shaw que nous utilisons soit placée horizontalement dans le champ de gravité et que son interstice soit très fin (typiquement, moins de  $0.5 \text{ mm}$ ), dans le cas d'un seul front visqueusement stable entre deux fluides tel que  $R \leq 0$  et  $\Delta\rho > 0$ , on observe l'apparition de stries longitudinales sur l'interface pourtant visqueusement stable (Fig. 4.1). Ces stries sont dues à la différence de densité entre les deux fluides. En effet, lorsque le fluide vecteur est injecté dans la cellule, il adopte un profil parabolique de Poiseuille dans l'épaisseur de la cellule. Si les deux fluides ont des densités différentes, la « langue » de fluide ainsi formée induit une stratification de densité instable à l'endroit où un fluide plus dense se trouve localement au-dessus d'un fluide moins dense que ce soit dans la partie supérieure si  $\rho_2 > \rho_1$  ou inférieure dans le cas contraire (Fig. 4.2). L'étude expérimentale

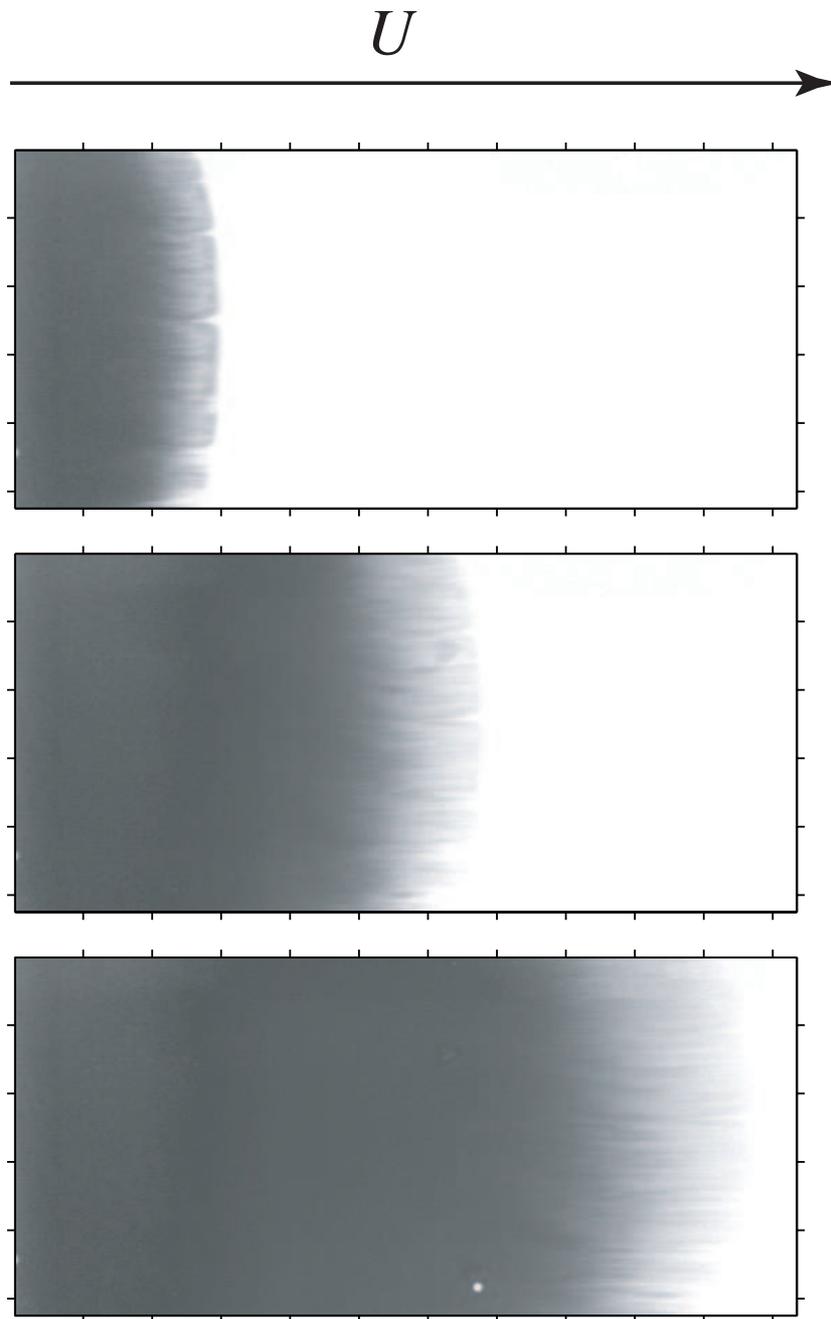


FIGURE 4.1 – Déstabilisation d’une interface visqueusement stable entre une solution aqueuse contenant 20% de glycérol (teintée) et de l’eau pure sous l’effet de la différence de densité. Les images présentées sont prises toutes les 5 secondes. L’épaisseur de l’interstice entre les plaques est fixé à  $e_z = 0.5$  mm. L’image réelle fait 100 mm sur 250 mm

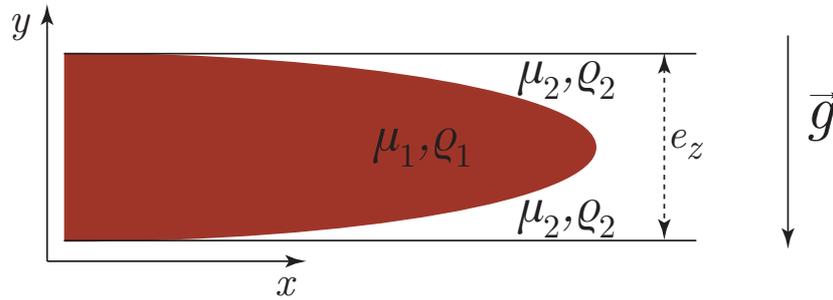


FIGURE 4.2 – Schéma d’une interface entre deux fluides déplacés dans la cellule de Hele-Shaw : si  $\rho_1 > \rho_2$ , le profil de vitesse de Poiseuille induit que le front entre les deux fluides devienne parabolique dans l’épaisseur, ce qui produit une stratification instable de densité.

détaillée de cet effet tridimensionnel lié à la différence de densité dans le cas d’une cellule horizontale est, à notre connaissance, jusqu’à présent inédite. Il est à noter que nous avons, au cours de nos travaux, analysé ces effets de « densité » dans la perspective de mieux nous en affranchir.

## 4.1 Etude paramétrique

Pour étudier l’effet de la variation des paramètres expérimentaux sur l’importance des effets tridimensionnels liés aux variations de densité, nous avons effectué une série de manipulations en configuration « linéaire » (voir Sec.2.1.4). Nous injectons d’abord de l’eau dans la cellule de Hele-Shaw horizontale via la vanne d’injection linéaire et ensuite une solution aqueuse de glycérol. Celle-ci a une viscosité et une densité plus importante que celles de l’eau : l’interface entre la solution aqueuse de glycérol et l’eau déjà présente dans la cellule est donc stable pour la digitation visqueuse mais crée une stratification de densité instable. En effet, dans la partie inférieure du profil de Poiseuille qui se développe dans l’interstice de la cellule de Hele-Shaw (cfr. Fig.4.2), on obtient une stratification instable de solution aqueuse de glycérol plus dense au-dessus d’eau moins dense.

La proportion de glycérol  $A$  dans la solution aqueuse de glycérol détermine la viscosité et la densité<sup>1</sup> de la solution. Pour une température fixée, la densité varie linéairement en fonction de  $A$  (cfr. Fig. 4.3). Dans les manipulations que nous avons menées,  $A$  a été fixé à 20, 60, 90%, ce qui cor-

1. La densité est ici exprimée comme le rapport entre la masse volumique de la solution aqueuse considérée et la masse volumique de l’eau pure à 20°C.

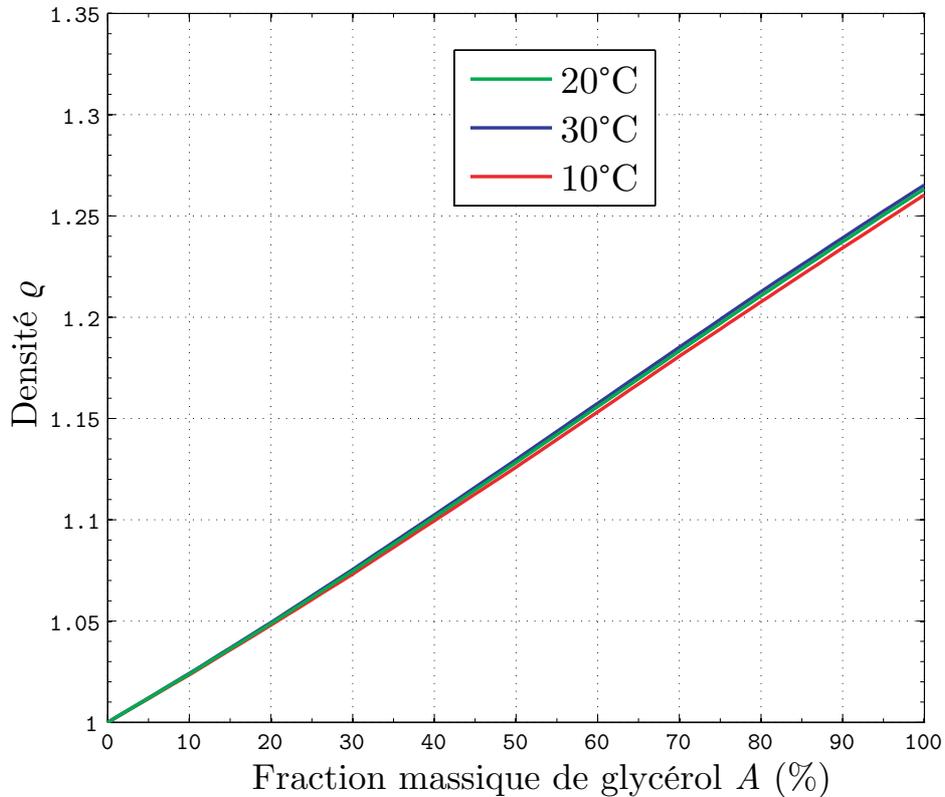


FIGURE 4.3 – Densité d’une solution aqueuse de glycérol en fonction de la proportion de glycérol dans la solution A. Valeurs données par le fournisseur (*Dow Chemicals*).

respond à des différences de densité  $\Delta\rho = 0.048, 0.156, 0.237$  à  $20^\circ\text{C}$ . Nous avons ajouté à ces solutions  $5\text{g/l}$  de colorant rouge (amarante), ce qui influe légèrement sur la densité de la solution. Nous avons donc mesuré systématiquement avant les manipulations la densité des solutions de glycérol teintées. Les différences de densité obtenues en tenant compte de l’effet du colorant sont  $\Delta\rho = 0.053, 0.161, 0.243$  à  $20^\circ\text{C}$ .

#### 4.1.1 Effet de la différence de densité et de la vitesse d’injection

Pour les différences de densité faibles (typiquement,  $\Delta\rho = 0.053$ ), on observe clairement l’apparition d’une sorte de « liseré » de fluide à l’avant du front (cfr. Fig.4.4). Progressivement, cette zone est envahie par des stries fines qui apparaissent légèrement en amont de ce liseré et finissent par le faire

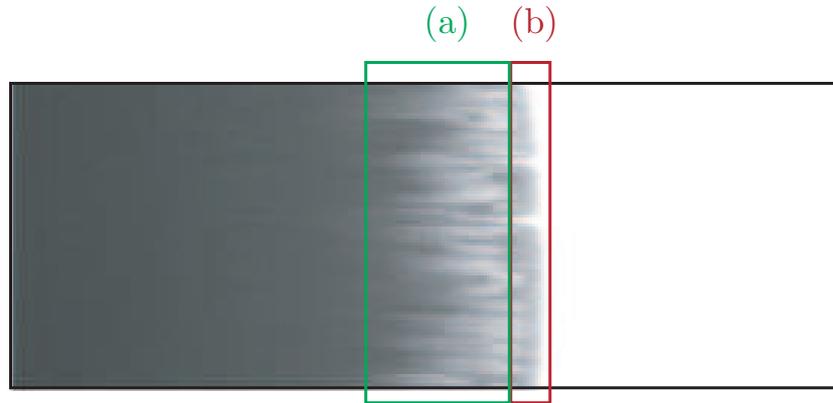


FIGURE 4.4 – Interface instable entre une solution contenant 20% de glycérol (teintée) et de l'eau pure : la zone (a) correspond aux stries qui progressivement envahissent la zone (b) du « liseré ». L'image réelle fait 100 mm sur 300 mm.

disparaître. La figure 4.5 donne les temps caractéristiques de disparition  $t_v$  de ce liseré en fonction de la vitesse d'injection  $U$  pour les 3 valeurs de concentration et une épaisseur de l'interstice  $e_z$  fixée à 0.5 mm.

Le temps  $t_v$  décroît lorsqu'on augmente la différence de densité pour une valeur de vitesse fixée. Pour les différences de densité importantes ( $\Delta\rho = 0.243$ ) le liseré disparaît quasi immédiatement (après environ 5 s pour  $U = 1.67$  mm/s, et environ 1s pour  $U = 25$  mm/s) au profit d'une série de stries très fines (cfr. Fig. 4.6). Plus la différence de densité est importante, plus la parabole de Poiseuille dans l'interstice sera rapidement déstabilisée : cela explique que les stries liés aux effets tridimensionnels gagnent plus rapidement en ampleur dans le cas d'une différence de densité plus large.  $t_v$  décroît également lorsqu'on augmente la vitesse d'injection  $U$ . De plus, plus la vitesse augmente, plus les stries sont fines.

#### 4.1.2 Effet de l'épaisseur de la cellule

Réduire l'épaisseur de la cellule diminue de manière très efficace l'apparition des effets de densité. Sur la fig. 4.7, on observe que les stries de densité clairement visibles pour  $e_z = 0.5$  mm ont presque disparu pour  $e_z = 0.25$  mm.

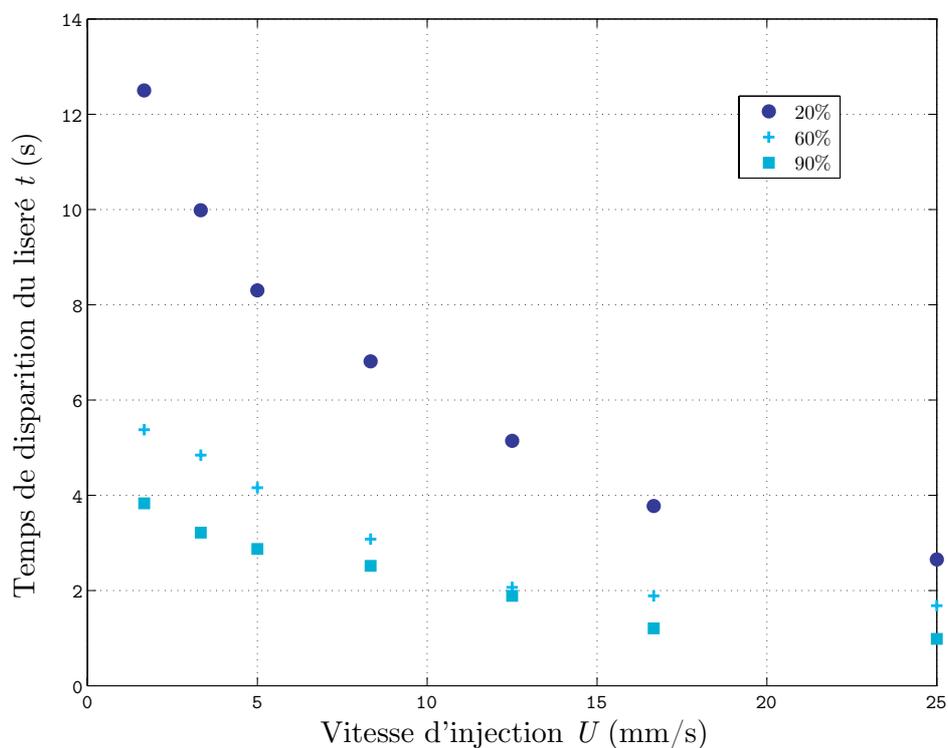


FIGURE 4.5 – Temps de disparition du liseré observable à l'avant du front entre un fluide plus dense et un fluide moins dense en fonction de la vitesse de déplacement dans la cellule.



$A = 20 \%$   
 $U = 16.67 \text{ mm/s}$   
 $t = 3.5 \text{ s}$



$A = 60 \%$   
 $U = 16.67 \text{ mm/s}$   
 $t = 3.5 \text{ s}$

FIGURE 4.6 – Effets de densité : comparaison entre les cas  $A = 20\%$  ( $\Delta\rho = 0.053$ ) et  $A = 60\%$  ( $\Delta\rho = 0.161$ ). Dans les 2 cas, l'épaisseur de l'interstice est fixée à  $e_z = 0.5 \text{ mm}$  et la vitesse d'injection à  $U = 16.67 \text{ mm/s}$ . L'image réelle fait  $100 \text{ mm}$  sur  $250 \text{ mm}$ .

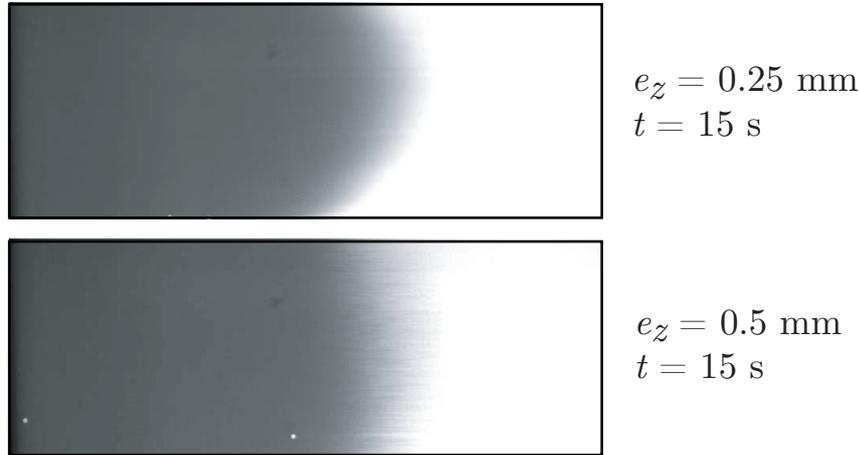


FIGURE 4.7 – Effets de densité : comparaison entre les cas  $e_z = 0.5$  mm et  $e_z = 0.25$  mm. Dans les 2 cas, la différence de densité est fixée à  $\Delta\rho = 0.161$  et la vitesse d’injection à  $U = 8.67$  mm/s. La déformation du front observable dans le cas  $e_z = 0.25$  mm est causée par un mauvais alignement dans ce cas-ci entre la vanne d’injection et le bord de la cellule. L’image réelle fait 100 mm sur 250 mm.

## 4.2 Largeur de l’interface

Afin de déterminer l’évolution de la largeur de l’interface au cours du temps, nous calculons le profil de concentration moyenné sur la largeur de la cellule  $\langle C(x) \rangle_y$  en sommant le niveau de gris des pixels sur chaque colonne dans la direction  $y$  et en divisant par le nombre total de pixels selon  $L_y$ . A titre d’exemple, on trouvera en Fig.4.8 le profil de concentration moyen correspondant aux champs de concentration de la Fig.4.1. Sur base du profil de concentration ainsi obtenu, nous déterminons la coordonnée longitudinale correspondant à l’avant (où la concentration moyenne tombe à 0) et à l’arrière (où la concentration moyenne chute en-dessous du seuil de 90%) des stries et la différence entre ces deux coordonnées nous donne la largeur du front.

Sur la Fig.4.9, on a représenté l’évolution de la largeur de l’interface visuellement stable entre un fluide plus dense et un fluide moins dense pour deux valeurs de concentration en glycérol du fluide le plus dense. On observe que, pour une vitesse fixée, plus on augmente la concentration en glycérol, plus les stries apparaissent rapidement et plus l’étalement de l’interface entre les deux fluides est important à un moment donné. Dans le cas d’une basse vitesse, on observe que la largeur maximale de l’interface est du même ordre (Fig.4.9a). On remarque également que les courbes suivent globalement la même évolution. Par contre, dans le cas d’une haute vitesse, la valeur maxi-

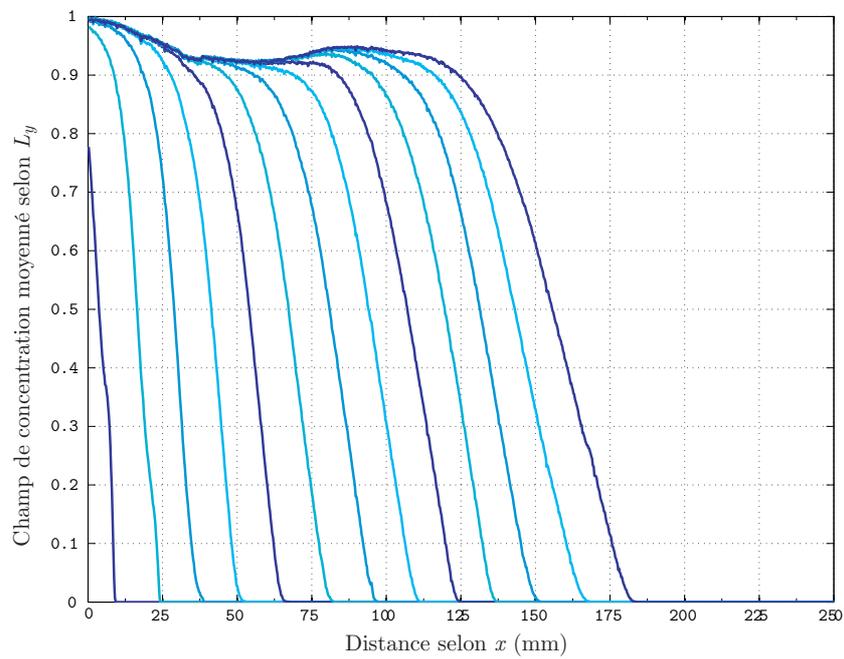


FIGURE 4.8 – Evolution temporelle du profil de concentration  $\langle C(x) \rangle_y$  moyenné selon la direction  $y$  transverse à l'écoulement sur la largeur de la cellule dans le cas d'un contraste de densité  $\rho = 0.05$  (solution aqueuse contenant 20% de glycérol déplaçant de l'eau). Le profil de concentration moyen est calculé toutes les 2 secondes.

male atteinte dans le cas  $A = 60\%$  est nettement supérieure à celle du cas  $A = 20\%$  (Fig.4.9b). Il est à noter que la première bosse observable dans la courbe correspond au temps auquel le liseré disparaît. La courbe décroît ici lorsque l'interface sort du champ de la caméra CCD.

### 4.3 Minimisation des effets de densité

Comme les effets tridimensionnels liés à la différence de densité diminuent largement lorsque l'on réduit l'épaisseur de l'interstice de la cellule, nous avons fixé cette épaisseur à  $e_z = 0.25$  mm dans nos manipulations étudiant la digitation visqueuse. Cette épaisseur permet à la fois de minimiser ces effets 3D tout en évitant d'avoir des difficultés liées à des pressions trop importantes dans la cellule<sup>2</sup> (usure voire fissure des plaques de verre).

Comme évoqué précédemment, l'ajout d'un colorant à une solution change la densité de la solution. Cette modification de densité implique l'apparition d'effets tridimensionnels généralement indésirables. Pour l'étude de la dispersion (cfr. Chap. 3), nous avons donc tenté de déterminer la concentration de colorant la plus basse (et donc minimisant les effets tridimensionnels) qui permet cependant un contraste suffisant. Pour cela, nous avons injecté radialement différentes dilutions d'eau colorée dans de l'eau pure. Nous avons obtenu qu'en dessous d'une concentration de 0.075 g/l, il nous est impossible de distinguer les deux fluides sur l'image obtenue par la caméra CCD. Par ailleurs, les effets tridimensionnels apparaissant sous forme de stries visibles au milieu de l'échantillon lors de son élimination de la cellule deviennent fort visibles lorsque l'on dépasse une concentration de 7 g/l de colorant. Nous avons donc choisi une concentration initiale en colorant de 5g/l, ce qui permet un seuil de détection en concentration réduite relativement faible de 1.5% tout en minimisant les effets tridimensionnels.

### 4.4 Conclusion

Nous avons mis en évidence que, même dans le cas d'une cellule de Hele-Shaw placée horizontalement, l'interface entre deux fluides peut être déstabilisée par des effets tridimensionnels dus à la différence de densité entre les deux fluides. En effet, le développement d'un profil de Poiseuille dans l'épaisseur de l'interstice entre les deux plaques de la cellule de Hele-Shaw

---

2. En application de la Loi de Darcy, le gradient de pression dans la cellule, pour une vitesse fixée, varie comme le carré de l'épaisseur de l'interstice.

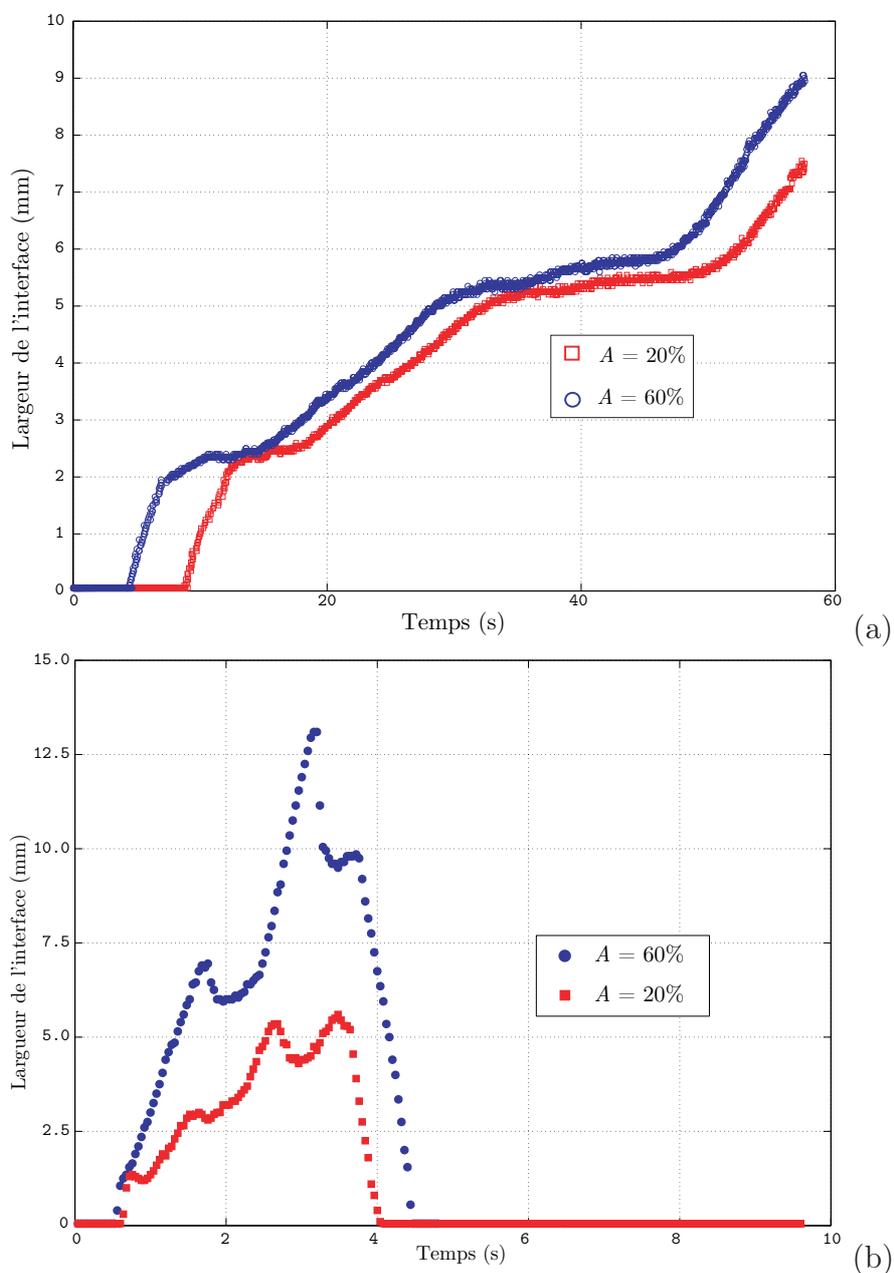


FIGURE 4.9 – Evolution temporelle de l'interface entre une solution aqueuse de 20% de glycérol (carrés rouges) et de 60% de glycérol (ronds bleus) et de l'eau pure. La vitesse d'injection du fluide plus dense est fixée (a) à 1.67 mm/s, (b) à 16.67 mm/s. L'épaisseur de l'interstice entre les plaques est fixé à  $e_z = 0.5$  mm

peut mener à une stratification instable de densité où un fluide plus dense se trouve au dessus d'un fluide moins dense dans le champ de gravité.

Nous avons montré que le type et l'intensité des effets tridimensionnels observés dépend de la vitesse d'injection, de la différence de densité et de l'épaisseur de la cellule. A basse vitesse et pour une différence de densité faible ( $\Delta\rho = 0.053$ ) on observe le développement d'un liseré qui est progressivement envahi par des stries qui apparaissent légèrement en amont de l'interface. Plus la différence de densité augmente, plus le liseré disparaît rapidement. Plus la vitesse de d'injection augmente, plus les stries sont fines.

Dans le but de minimiser les effets de densité tout en garantissant un bon contraste entre l'échantillon et le fluide vecteur, nous avons choisi de fixer la concentration en colorant (rouge d'amarante) à 5g/l pour les expériences présentées dans les Chap.3 et 5.

---

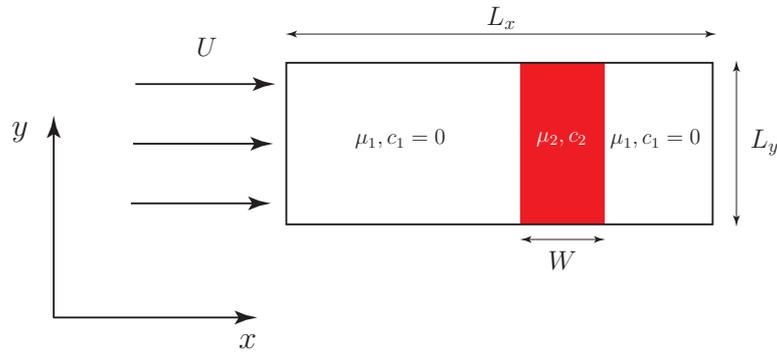
# DIGITATION VISQUEUSE D'ÉCHANTILLONS INITIALEMENT CIRCULAIRES

---

Comme nous l'avons mentionné précédemment, la digitation visqueuse d'échantillons de taille finie est d'un intérêt particulier dans les applications liées à la chromatographie et à la pollution des sols. Plus fondamentalement, le cas d'échantillons finis est un problème spécifique : dans ce cas en effet, on étudie la dynamique de deux fronts (avant et arrière de l'échantillon) qui peuvent interagir. Si le solvant de l'échantillon est plus visqueux que le fluide porteur, l'interface arrière sera instable tandis que l'interface avant sera stable. Si, au contraire, l'échantillon est moins visqueux, c'est l'interface avant qui se déstabilise, l'arrière restant stable. Pour un échantillon initialement suffisamment étroit et un temps suffisamment long, les doigts dus à l'instabilité de digitation visqueuse qui se développe sur l'un des fronts de l'échantillon peuvent rattraper l'autre front. Si, de plus, les fluides sont miscibles, le rapport de viscosité diminue dans le temps suite au mélange progressif des deux fluides par la dispersion et la digitation : les doigts disparaissent dès lors peu à peu. L'instabilité visqueuse n'opère donc que de façon transitoire, contrairement au cas d'une seule interface.

## 5.1 La digitation visqueuse d'échantillons finis

En comparaison avec le cas d'une seule interface, la digitation visqueuse d'échantillons de taille finie de fluides miscibles a fait l'objet d'un nombre limité de travaux théoriques et expérimentaux. Le cas d'échantillons d'une viscosité donnée déplacés dans un milieu poreux tridimensionnel par un autre fluide plus ou moins visqueux a fait l'objet de travaux expérimentaux prin-

FIGURE 5.1 – Schéma du système. D'après De Wit *et al.* (2005).

cipalement dans le cadre de l'application à la chromatographie (Fernandez *et al.*, 1995; Dickson *et al.*, 1997; Mayfield *et al.*, 2005; Catchpoole *et al.*, 2006; Shalliker *et al.*, 2007a,b). En effet, lorsque la digitation visqueuse apparaît, les pics de concentration détectés à la sortie de la colonne chromatographique sont distordus et, dans certains cas, cela peut aboutir à une diminution importante de la résolution de l'échantillon (cfr. Sec.1.2.1) Le cas d'un échantillon initialement rectangulaire déplacé dans une cellule de Hele-Shaw a été étudié expérimentalement par De Malsche *et al.* (2009) et théoriquement par De Wit *et al.* (2005); Rousseaux *et al.* (2007); Mishra *et al.* (2008). Par contre, le cas d'un échantillon initialement circulaire déplacé dans une cellule de Hele-Shaw n'a fait l'objet, à notre connaissance, que de travaux théoriques (Chen *et al.*, 2001; Dushin *et al.*, 2010).

### 5.1.1 Échantillons initialement rectangulaires déplacés linéairement

Dans un article paru en 2005, De Wit et al. proposent un modèle théorique pour la digitation visqueuse en milieu poreux d'échantillons de taille finie, miscibles avec un fluide porteur, et envisagent les applications à la chromatographie et à la contamination des sols (De Wit *et al.*, 2005). Le modèle théorique proposé permet d'investiguer la contribution de la digitation visqueuse à l'élargissement de la variance du profil de concentration moyen de l'échantillon au cours du temps.

La géométrie du problème bidimensionnel est représentée par la figure 5.1. L'échantillon initialement rectangulaire de longueur finie  $W$ , de largeur  $L_y$ , contenant un soluté en concentration  $c_2$  et de viscosité  $\mu_2$  est déplacé à vitesse  $U$  par le fluide vecteur de viscosité  $\mu_1 < \mu_2$  et où le soluté est en concentration  $c_1$ . La digitation apparaît à l'interface arrière de l'échantillon et

l'interface avant est stable. A des temps ultérieurs, l'instabilité de l'interface arrière pourra interagir avec le front avant, pour peu que la largeur initiale de l'échantillon soit suffisamment petite.

Dans les milieux poreux bidimensionnels, le tenseur de dispersion peut généralement se réduire à deux composantes indépendantes,  $D_y$  et  $D_x$ , décrivant respectivement la dispersion transverse et la dispersion longitudinale dans le sens du mouvement. Les équations gouvernant le problème (à savoir l'équation d'incompressibilité, l'équation de Darcy et l'équation d'advection-diffusion pour la concentration  $c$  du soluté contrôlant la viscosité de la solution) peuvent alors s'écrire comme suit :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{u} = 0, \quad (5.1)$$

$$\vec{\nabla} p = -\frac{\mu(c)}{K} \vec{u}, \quad (5.2)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \vec{u} \cdot \vec{\nabla} c = D_x \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + D_y \frac{\partial^2 c}{\partial y^2}, \quad (5.3)$$

où  $\vec{u} = (u_x, u_y)$ . Ensuite, en introduisant la longueur et le temps caractéristiques

$$\begin{cases} L_c \equiv \frac{D_x}{U} \\ \tau_c \equiv \frac{D_x}{U^2} \end{cases} \quad (5.4)$$

où  $U$  est la vitesse moyenne d'injection dans la direction  $x$ , on adimensionnalise l'espace par  $L_c$ , le temps par  $\tau_c$ , et la vitesse par  $U$ . De plus, on renormalise la pression par  $\mu_1 D_x / K$ , la viscosité par  $\mu_1$  et la concentration par  $c_2$  où  $\mu_1$  est la viscosité du fluide porteur et  $c_2$  la concentration initiale de  $c$  dans l'échantillon. On obtient alors

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{u} = 0 \quad (5.5)$$

$$\vec{\nabla} p = -\mu(c) \vec{u} \quad (5.6)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \vec{u} \cdot \vec{\nabla} c = \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \epsilon \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \quad (5.7)$$

où

$$\epsilon \equiv \frac{D_y}{D_x} \quad (5.8)$$

décrit l'anisotropie de la dispersion : si la dispersion est isotrope,  $D_x = D_y = D$  et donc  $\epsilon = 1$ , sinon  $\epsilon \neq 1$ . Dans de nombreux milieux poreux, les dispersions transverse et longitudinale ne sont pas identiques. Cette anisotropie est directement liée à la géométrie du milieu (tortuosité des pores) et à l'injection du fluide selon la direction  $x$ .

En définissant le vecteur unité selon  $x$  comme  $\vec{1}_x$ , on effectue le changement de variable

$$\begin{cases} x' = x - t \\ y' = y \\ \vec{u}' = \vec{u} - \vec{1}_x \end{cases} \quad (5.9)$$

Autrement dit, on se place dans un repère se déplaçant avec la vitesse  $U$ . On obtient les équations suivantes (où on a omis les primes) :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{u} = 0 \quad (5.10)$$

$$\vec{\nabla} p = -\mu(c)(\vec{u} + \vec{1}_x) \quad (5.11)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \vec{u} \cdot \vec{\nabla} c = \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \epsilon \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \quad (5.12)$$

De Wit *et al.* (2005) définissent alors la viscosité comme une fonction exponentielle de la concentration, s'inspirant de Tan et Homsy (1986) :

$$\mu(c) = e^{Rc} \quad (5.13)$$

où  $R$ , le logarithme du rapport des viscosités est défini comme précédemment par

$$R = \ln \left( \frac{\mu_2}{\mu_1} \right).$$

Il est à noter que le lien entre viscosité et concentration peut être nettement plus complexe (Tan et Homsy, 1986).

En prenant le rotationnel de (5.11), on obtient pour le terme de gauche

$$\vec{\nabla} \times \vec{\nabla} p = \left( \frac{\partial^2 p}{\partial y \partial x} - \frac{\partial^2 p}{\partial x \partial y} \right) \vec{1}_z = 0 \quad (5.14)$$

et pour le terme de droite

$$\vec{\nabla} \times \left\{ e^{Rc} \left[ (u_x + 1) \vec{1}_x + u_y \vec{1}_y \right] \right\} = e^{Rc} \left[ R \frac{\partial c}{\partial x} u_y + \frac{\partial u_y}{\partial x} - R \frac{\partial c}{\partial y} - R \frac{\partial c}{\partial y} u_x - \frac{\partial u_x}{\partial y} \right] \vec{1}_z \quad (5.15)$$

En introduisant la fonction de courant  $\psi(x, y)$  telle que

$$\begin{cases} u_x = \frac{\partial \psi}{\partial y} \\ u_y = -\frac{\partial \psi}{\partial x} \end{cases} \quad (5.16)$$

on peut dès lors écrire

$$\vec{\nabla}^2 \psi = R \left( \frac{\partial \psi}{\partial x} \frac{\partial c}{\partial x} + \frac{\partial \psi}{\partial y} \frac{\partial c}{\partial y} + \frac{\partial c}{\partial y} \right) \quad (5.17)$$

En reprenant (5.12) en y introduisant la même fonction  $\psi$ , on obtient

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \frac{\partial \psi}{\partial y} \frac{\partial c}{\partial x} - \frac{\partial \psi}{\partial x} \frac{\partial c}{\partial y} = \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \epsilon \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \quad (5.18)$$

Les équations (5.17) et (5.18) ont été intégrées numériquement par De Wit *et al.* (2005) en utilisant un code pseudospectral introduit, à l'origine, par Tan et Homsy (1988). Le domaine d'intégration est  $Pe \times L$  où  $Pe = UL_y/D_x$  est la largeur adimensionnelle et le nombre de Péclet du problème, tandis que  $L = UL_x/D_x$  est la longueur adimensionnelle. De plus, la longueur adimensionnelle initiale de l'échantillon est donnée par  $\ell = UW/D_x$ .

La condition initiale est un échantillon rectangulaire de concentration  $c = 1$  et de taille  $Pe \times L$  dans un milieu de concentration  $c = 0$  et un fluide sans convection ( $\psi = 0$  en tout point).

Le problème est entièrement contrôlé par quatre paramètres adimensionnels : le nombre de Péclet  $Pe$ , le logarithme du rapport de viscosités  $R$ , la longueur initiale de l'échantillon  $\ell$  et le rapport d'anisotropie des dispersions longitudinale et transverse  $\epsilon$ .

La Fig.5.2 donne un exemple de simulation du modèle (5.17 - 5.18) avec  $Pe = 512$ ,  $R = 2$ ,  $\ell = 128$  et  $\epsilon = 1$ . On observe que le front avant est stable tandis que le front arrière où le fluide vecteur déplace l'échantillon plus visqueux se déstabilise sous forme de doigts. Ces doigts évoluent au cours du temps : on observe un phénomène d'écrantage de certains doigts par des doigts plus développés, ainsi que des fusions de doigts. Peu à peu, les doigts coalescent et la longueur d'onde de l'instabilité augmente au cours du temps. Le profil de concentration moyenné selon l'axe  $y$  peut s'écrire comme

$$\bar{c}(x, t) = \frac{1}{Pe} \int_0^{Pe} c(x, y, t) dy. \quad (5.19)$$

La Fig.5.3 montre un exemple d'évolution du profil de concentration moyen au cours du temps correspondant à la simulation de la Fig.5.2. On observe que, plus le temps augmente, plus le pic se déforme et devient asymétrique. En l'absence de digitation visqueuse, le créneau initial évoluerait en une gaussienne qui s'aplatirait au cours du temps. La présence d'asymétries et de bosses dans le profil de concentration traduit l'influence de la digitation visqueuse.

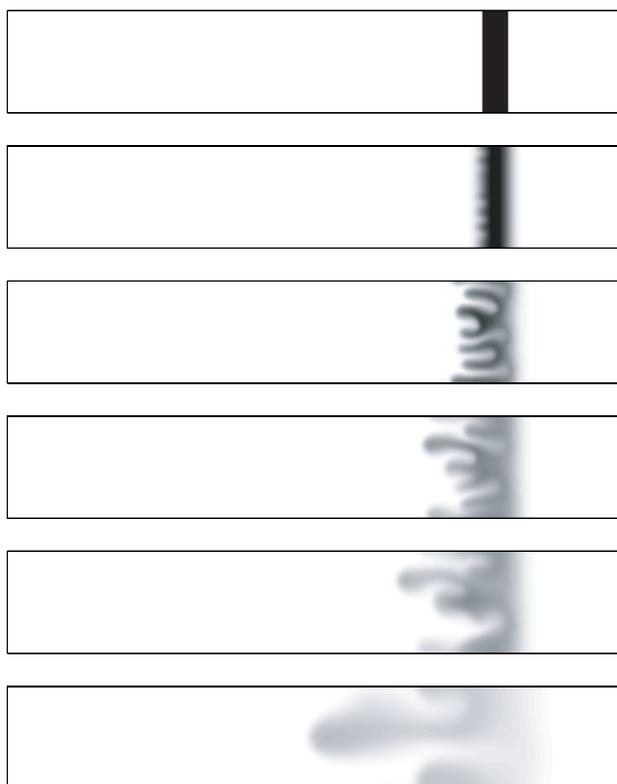


FIGURE 5.2 – Simulation numérique de la déformation par digitation d'un échantillon de taille finie pour  $Pe = 512, \ell = 128, R = 2, \epsilon = 1$ . De haut en bas,  $t = 0, 500, 1500, 2000, 3000$  et  $10000$ . Ces graphiques représentent l'évolution de la concentration dans le référentiel en mouvement à la vitesse  $U$ , avec  $c = 0$  correspondant à du blanc et  $c = 1$  à du noir.

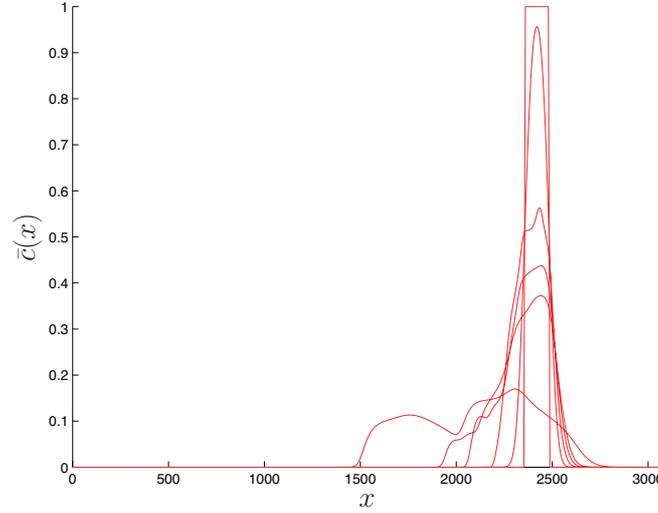


FIGURE 5.3 – Evolution temporelle du profil de concentration moyen  $\bar{c}(x, t)$  correspondant à la figure 5.2.

Afin de montrer quelle est la contribution de la digitation à la déformation et l'étalement de ce profil de concentration, il est utile de calculer les moments de ce profil. Ainsi, on pourra constater que la digitation visqueuse augmente significativement la variance du profil de concentration.

La position du centre de masse  $m(t)$  pourra s'exprimer comme

$$m(t) = \frac{\int_0^L \bar{c}(x, t) x dx}{\int_0^L \bar{c}(x, t) dx} \quad (5.20)$$

et les moments d'ordre  $k > 1$  des distributions s'exprimeront comme

$$m_k(t) = \frac{\int_0^L \bar{c}(x, t) (x - m(t))^k dx}{\int_0^L \bar{c}(x, t) dx}. \quad (5.21)$$

La variance  $\sigma^2(t)$ , c'est-à-dire le moment d'ordre 2, décrit la largeur de l'échantillon. Elle est la somme de trois contributions :

$$\sigma^2(t) = \sigma_i^2 + \sigma_d^2 + \sigma_{VF}^2 \quad (5.22)$$

où  $\sigma_i^2 = \ell^2/12$  est la variance due à la largeur initiale de l'échantillon,  $\sigma_d^2 = 2t$  est la contribution de la dispersion et  $\sigma_{VF}^2$  est la contribution de la digitation visqueuse. Lorsque  $R = 0$ , il n'y a pas de digitation et la variance devient

$$\sigma^2(t) = \sigma_i^2 + \sigma_d^2. \quad (5.23)$$

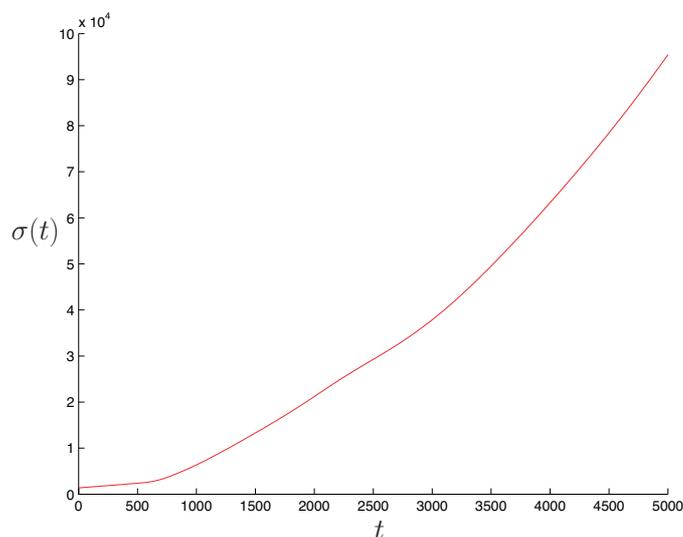


FIGURE 5.4 – Variance du profil de concentration de la Fig.5.3 au cours du temps.

La Fig.5.4 représente l'évolution de la variance correspondant à l'échantillon de la Fig.5.2.

Vu les relations (5.22) et (5.23), on peut étudier la contribution de la digitation à l'étalement de l'échantillon en soustrayant à une variance correspondant à un cas où  $R > 0$  (c'est-à-dire lorsque l'interface entre fluide porteur et échantillon est instable) la variance correspondant au cas  $R = 0$ , autrement dit le cas stable.

De Wit et al. se consacrent dans leur article à l'étude des effets de variations des paramètres de contrôle  $R$ ,  $l$  et  $Pe$  et  $\epsilon$  sur l'élargissement de la variance par digitation visqueuse. Pour ce faire, ils calculent  $\langle \sigma_\infty \rangle$  à savoir la moyenne sur un nombre donné de simulations des valeurs de saturation (valeurs asymptotiques) atteintes par  $\sigma_{VF}$  dans chacun de ces cas. Ils montrent de la sorte qu'il existe une largeur critique de l'échantillon  $\ell_c$  telle que pour  $\ell > \ell_c$ , la même valeur de  $\sigma_\infty$  est toujours atteinte. Cela correspond à la croissance d'un seul doigt asymptotique dans tous ces cas. De plus, il apparaît que la contribution de la digitation visqueuse à l'élargissement de  $\langle \sigma_\infty \rangle$  varie linéairement avec  $R$  et  $Pe$ ,  $\ell_c$  croissant avec  $Pe$ . Ce dernier lien implique que plus le diamètre d'une colonne chromatographique sera grand, plus la digitation visqueuse contribuera à l'élargissement des pics. Enfin, plus  $\epsilon$  sera faible, plus l'élargissement des pics sera important.

Reprenant la même approche que De Wit *et al.* (2005), Mishra *et al.*

(2008) comparent le cas d'un échantillon moins visqueux que le fluide vecteur ( $R < 0$ ) et le cas d'un échantillon plus visqueux que le fluide vecteur ( $R > 0$ ). Ils concluent qu'en moyenne, les propriétés de la digitation pour  $R$  positif ou négatif peuvent différer de manière parfois importante. Ils remarquent ainsi que pour un temps, une largeur initiale d'échantillon et une vitesse de déplacement fixés, les doigts peuvent croître sur de plus grandes distances dans le cas  $R < 0$  que dans le cas  $R > 0$ . Ceci est dû au fait que la digitation se développe plus facilement lorsque les doigts croissent dans le sens du flux à l'avant de l'échantillon ( $R < 0$ ) plutôt que contre le flux à l'arrière du créneau ( $R > 0$ ).

### 5.1.2 Echantillons initialement circulaires déplacés linéairement

Le déplacement d'échantillons initialement circulaires par un fluide injecté linéairement dans une cellule de Hele-Shaw a été jusqu'à présent peu abordé dans la littérature. A notre connaissance, seuls des travaux théoriques se sont consacrés à cette question.

Ainsi, [Chen et al. \(2001\)](#) ont simulé ce cas pour une goutte d'échantillon moins visqueux déplacée par un fluide plus visqueux, dans le but d'étudier l'effet de stress de Korteweg<sup>1</sup> sur l'évolution temporelle des gouttes. Ils introduisent dans les équations caractéristiques (5.1), (5.2) et (5.3) une série de termes supplémentaires, permettant de tenir compte de ces stress qui apparaissent dans les régions où les gradients de concentration sont très importants ([Hu et Joseph, 1992](#)).

Ils constatent que plus les stress de Korteweg sont importants, moins le motif de digitation visqueuse est développé. Pour des valeurs importantes de ce stress, ils observent la formation d'une «queue» à l'arrière de la goutte de fluide moins visqueux et, pour des valeurs très importantes du stress de Korteweg, une totale absence de digitation visqueuse. Ils notent également que plus les valeurs du nombre de Péclet  $Pe$  sont élevées, plus cette traînée se forme à l'arrière de l'échantillon. De même, plus le contraste de viscosités est

---

1. Dans le cas de fluides miscibles, l'équation d'incompressibilité  $\vec{\nabla} \cdot \vec{u} = 0$  est une bonne approximation pour de faibles différences de densité et lorsque la diffusion entre les fluides est faible ([Hu et Joseph, 1992](#); [Chen et al., 2001](#)). Néanmoins, même dans ce cas, il peut arriver que  $\vec{\nabla} \cdot \vec{u} \neq 0$  en présence de gradients de concentration très importants, par exemple au début des expériences, dans la couche de mélange résultant du lissage entre deux zones de compositions initialement discontinues. Dans ce cas, des effets dynamiques peuvent apparaître qui ressemblent à des effets de tension de surface. Korteweg (1848 – 1941) introduisit en 1901 une équation constitutive permettant de modéliser ces effets appelés depuis «stress de Korteweg».

élevé (donc, puisqu'ils considèrent un cas où  $R < 0$ , plus  $R$  diminue), plus la traînée à l'arrière de l'échantillon est fine et l'échantillon adopte rapidement une forme de « poire ».

Plus récemment, [Dushin \*et al.\* \(2010\)](#) ont effectué des simulations pour des échantillons initialement circulaires déplacés linéairement dans la cellule, dans le cas  $R < 0$  et  $R > 0$  et en variant le nombre de Péclet  $Pe$ . Les équations qu'ils utilisent sont identiques à celles de [De Wit \*et al.\* \(2005\)](#), seule change la condition initiale. Ils montrent, dans le cas  $R < 0$  et pour un  $Pe$  fixé que, plus le contraste de viscosités augmente, plus cela prend de temps pour évacuer l'échantillon de la cellule. Ils observent également que pour un rapport de viscosité donné, plus on augmente  $Pe$ , plus le motif gagne en complexité. Enfin, dans le cas  $R = 1.1$  et pour  $Pe = 5000$ , ils observent le développement de deux doigts importants à l'arrière de l'échantillon ainsi que d'une sorte de « fuseau » à l'avant de l'échantillon.

## 5.2 Résultats expérimentaux

Afin de quantifier expérimentalement la contribution de la digitation visqueuse à l'étalement d'échantillons de taille finie, nous avons mis au point une série d'expériences dans une cellule de Hele-Shaw. Nous travaillons avec des échantillons circulaires constitués de différents mélanges de glycérol et d'eau, poussés par de l'eau teintée avec 5g/l de rouge d'amarante. La proportion de glycérol et d'eau dans l'échantillon détermine sa viscosité. Typiquement, nous pouvons couvrir des rapports de viscosités  $\mu_2/\mu_1$  compris entre 10 et  $10^3$  à 20°C. Il est à noter que, d'une part, la viscosité ne varie pas linéairement avec la proportion de glycérol dans nos échantillons et, d'autre part, qu'une variation de température de quelques degrés peut provoquer une variation dramatique de la viscosité des échantillons : typiquement, pour une proportion de 60% de glycérol, une variation de 20°C à 10°C suffit à doubler la viscosité du mélange (fig. 5.5). Nous contrôlons donc la température des solutions avant chaque manipulation. Afin de minimiser les effets tri-dimensionnels liés aux variations de densité (cfr. Chap.4), nous avons fixé l'épaisseur de l'interstice entre les plaques à  $e_z = 0.25$  mm.

### 5.2.1 Dynamique de digitation

Lorsque l'on déplace linéairement un échantillon initialement circulaire dans la cellule par un fluide de viscosité plus faible, on observe que l'aspect global de l'échantillon se modifie rapidement et que l'échantillon forme une sorte de goutte prolongée par un fuseau qui finit par connecter l'échantillon

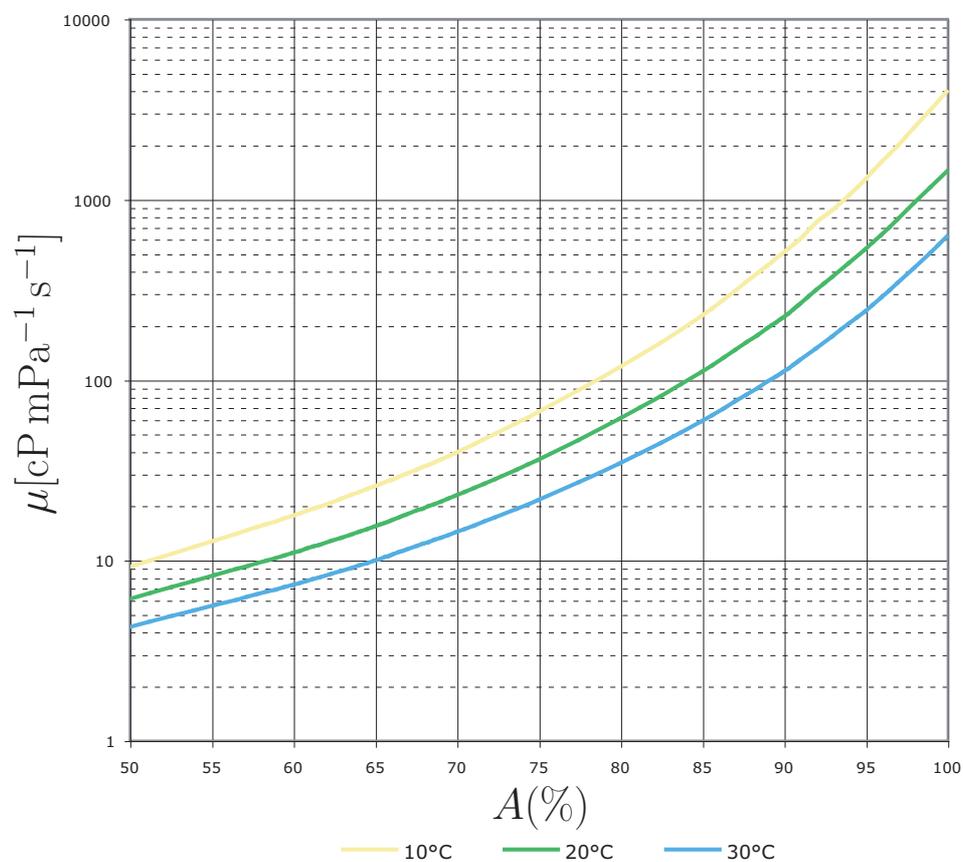


FIGURE 5.5 – Courbe de viscosité  $\mu$  du mélange glycérine-eau en fonction de la proportion de glycérine  $A$  à 10, 20 et 30 °C. Source : Dow Chemical Co (2006)

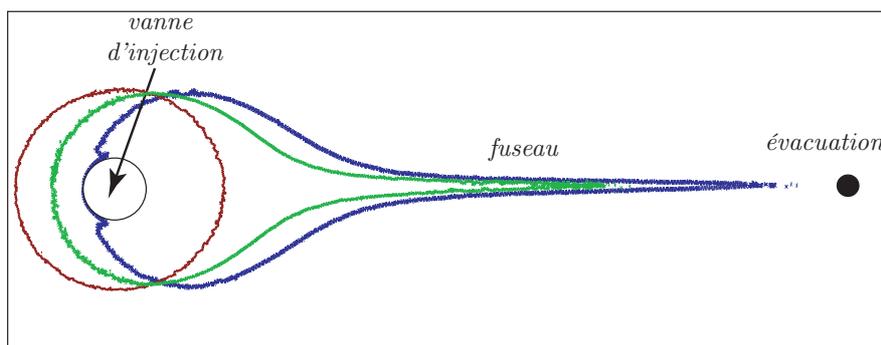


FIGURE 5.6 – Contours d'un échantillon - extrait des données expérimentales - pour  $R = 3.56$ ,  $U = 5$  mm/s, après 0 (courbe rouge), 10 (courbe verte) et 20 s (courbe bleue). Le diamètre initial de l'échantillon est 50 mm.

au puits d'évacuation au bord de la cellule (cfr. Fig.5.6). Plus l'échantillon est visqueux, moins il s'étend dans la direction transverse et plus le fuseau est fin. Le développement de ce fuseau s'explique par la présence du trou d'évacuation.

Notons que si les stress de Korteweg avaient un effet sur la dynamique, comme le suggèrent [Chen \*et al.\* \(2001\)](#) dans le cas d'un échantillon moins visqueux que le fluide vecteur ( $R < 0$ ), l'échantillon (dans notre cas plus visqueux que le fluide vecteur) subirait également une déformation similaire avec l'apparition d'un fuseau et des variations de la largeur de ce fuseau fonction du contraste de viscosités. Cependant, la prise en compte de ces effets reste une question ouverte ([Chen \*et al.\*, 2001](#)).

Lorsque le fluide vecteur est moins visqueux que l'échantillon, la digitation visqueuse apparaît à l'arrière de l'échantillon. Plus on augmente le contraste de viscosités (plus  $R$  augmente) et/ou plus on augmente la vitesse d'injection  $U$ , plus la situation est instable, c'est-à-dire plus la digitation apparaît rapidement et plus la longueur d'onde des doigts est petite.

### Effet de la vitesse d'injection

La Fig.5.7 montre l'évolution temporelle d'un échantillon de même diamètre initial (50 mm) pour trois vitesses d'injection différentes et un même rapport logarithmique des viscosités  $R = 2.37$ . A basse vitesse (Fig.5.7a), la déformation de l'interface arrière est affectée par le trou d'injection radiale, qui provoque une déformation au milieu de l'échantillon. Cette déformation aboutit à la création de deux larges doigts qui se développent en se repoussant mutuellement. La ressemblance entre la dynamique observée dans ce cas et celle de la simulation numérique de [Dushin \*et al.\* \(2010\)](#) et avec l'analogie linéaire de la Fig.5.2 est frappante. Néanmoins, le fuseau à l'avant de l'échantillon est beaucoup plus long et large dans l'expérience que dans la simulation, alors que le contraste de viscosités est plus important dans l'expérience que dans la simulation. Cette différence est sans doute due à la géométrie de notre dispositif expérimental. Il est à noter que d'après [Chen \*et al.\* \(2001\)](#), la prise en compte de stress de Korteweg dans les simulations implique également que le fuseau soit plus long et plus large. A vitesse moyenne (Fig.5.7b), le trou d'injection radiale affecte toujours la déformation de l'échantillon, mais plusieurs doigts de longueur d'onde nettement plus petite se développent autour de la déformation centrale. A haute vitesse (Fig.5.7c), la digitation visqueuse est suffisamment forte pour donner lieu à plusieurs doigts étroits et longs qui envahissent l'échantillon visqueux à partir de l'interface arrière. Dans ce cas, la perturbation due au trou d'injection radiale crée des doigts plus larges qui bloquent le développement de leurs voisins.

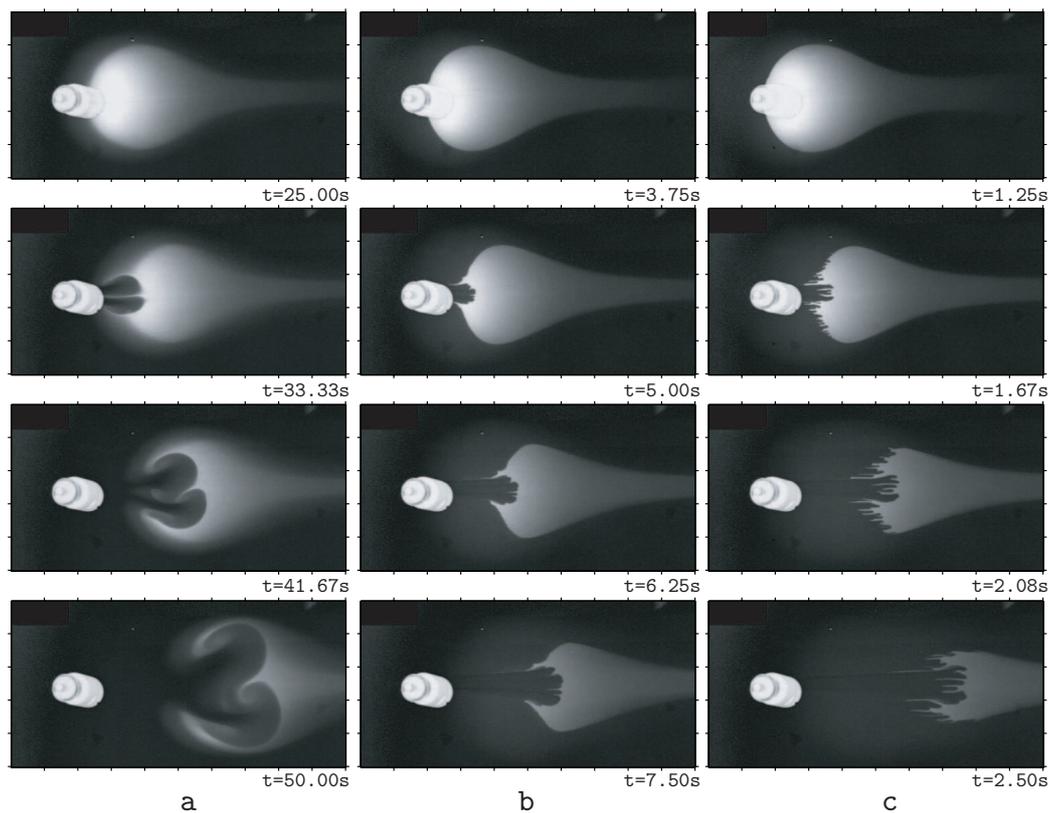


FIGURE 5.7 – Digitation visqueuse d'échantillons fins initialement circulaires : trois expériences différentes pour le même rapport logarithmique de viscosités  $R = 2.37$ , montrées à des temps différents pour 3 valeurs de la vitesse d'injection du fluide vecteur : a)  $U = 1.67$  mm/s, b)  $U = 8.33$  mm/s, c)  $U = 16.67$  mm/s. La taille réelle des images est 100 mm sur 200 mm.

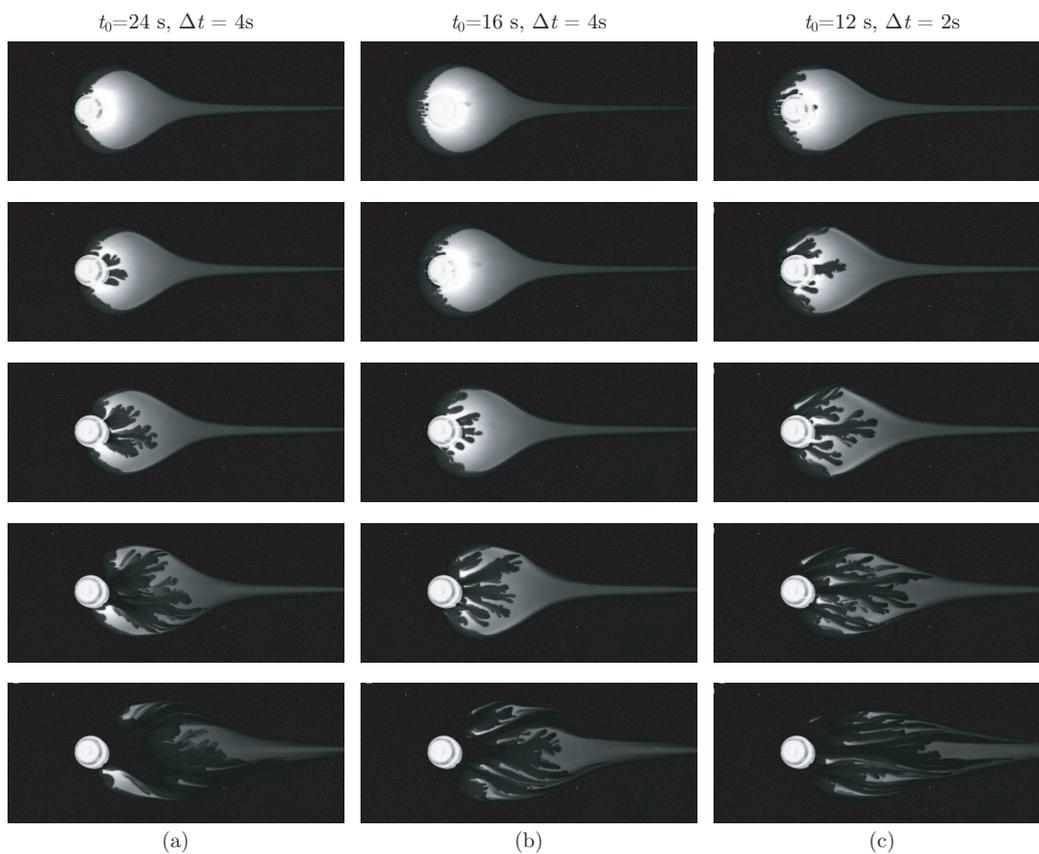


FIGURE 5.8 – Digitation visqueuse d'échantillons fins initialement circulaires : trois expériences différentes pour le même rapport logarithmique de viscosités  $R = 4.69$ , montrées à des temps différents pour 3 valeurs de la vitesse d'injection du fluide vecteur : a)  $U = 8.33$  mm/s, b)  $U = 13.33$  mm/s, c)  $U = 18.33$  mm/s. Les images sont prises à partir du temps initial  $t_0$  avec un écart de temps  $\Delta t$  indiqués au-dessus de chaque série.

La Fig.5.8 montre l'évolution temporelle d'un échantillon pour 3 vitesses d'injection différentes (de modérée  $U = 8.33$  mm/s, à importante  $U = 18.33$  mm/s) mais un même rapport logarithmique des viscosités  $R = 4.69$ . Dans ce cas, la digitation commence bien avant le passage de l'échantillon au niveau de la vanne d'injection radiale. On observe que plus on augmente la vitesse d'injection, plus les doigts deviennent fins et plus ils subissent un grand nombre de subdivisions avant d'atteindre l'interface avant de l'échantillon et moins ils se repoussent les uns les autres. Lorsque la vitesse augmente, les doigts avancent de plus en plus tout droit à travers l'échantillon. Pour  $U = 8.33$  mm/s, deux « paquets » de doigts se développent en se repoussant à travers l'échantillon alors que pour  $U = 18.33$  mm/s, un « paquet » de doigts bien centré au milieu de l'échantillon apparaît. On remarque également que plus la vitesse est élevée, plus la digitation apparaît rapidement ce qui est cohérent avec le fait que le système est plus instable quand la vitesse d'injection augmente.

### Effet du contraste de viscosité

L'influence du contraste de viscosités pour une vitesse d'injection relativement importante  $U = 26.67$  mm/s est représentée en Fig.5.9. L'échantillon est déplacé beaucoup plus lentement hors de la cellule dans le cas de rapports de viscosités importants par rapport au cas de rapports de viscosités faibles. Par exemple, en comparant les Fig.5.9a et Fig.5.9c, on observe que pour le même temps, l'échantillon s'est déplacé en aval du point d'injection dans le cas d'un rapport de viscosités faible alors qu'il paraît presque stationnaire dans le cas d'un rapport de viscosités important. Cela correspond à l'observation de [Dushin et al. \(2010\)](#) dans le cas  $R < 0$  : plus le contraste de viscosités est important, plus cela prend du temps d'éliminer l'échantillon hors de la cellule. On peut également remarquer que pour  $R = 2.37$ , de fins doigts apparaissent après que l'échantillon ait été déplacé au-delà du trou d'injection radiale. Pour  $R = 3.56$ , des doigts longs et fins se développent sur l'interface arrière quand l'échantillon est toujours au-dessus du trou d'injection radiale. Pour  $R = 4.69$  des doigts plus épais envahissent l'échantillon en subissant un tip-splitting intense. Les doigts qui envahissent l'échantillon à proximité de ses extrémités dans le sens de la largeur de la cellule s'écartent du centre de l'échantillon au cours du temps et finissent par isoler des zones de l'échantillon.

L'influence du contraste de viscosités pour une vitesse d'injection très faible  $U = 1.67$  mm/s est représentée en Fig.5.10. On observe clairement sur cette figure la transition entre un régime pour  $R$  faible ( $R = 2.37$ ) caractérisé par le développement de deux doigts larges qui envahissent l'échantillon

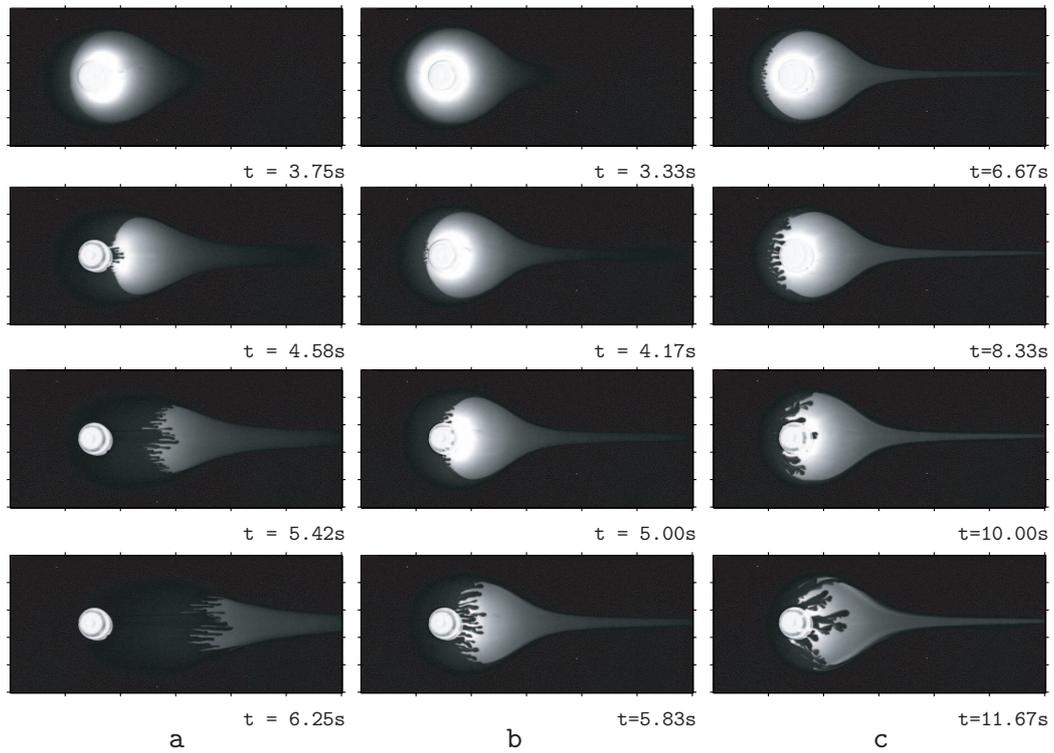


FIGURE 5.9 – Digitation visqueuse d'échantillons fins initialement circulaires : trois expériences différentes pour la même vitesse d'injection  $U = 26.67$  mm/s pour 3 valeurs du rapport de viscosité : a)  $R = 2.37$ , b)  $R = 3.56$ , c)  $R = 4.69$ .



à partir de la perturbation causée par le passage au-dessus de la vanne d'injection et un régime pour  $R$  important ( $R = 4.69$ ) caractérisé par le développement de nombreux petits doigts qui se subdivisent un grand nombre de fois en envahissant l'échantillon. Comme observé précédemment, l'échantillon est déplacé beaucoup plus lentement hors de la cellule dans le cas de rapports de viscosités importants par rapport aux cas de rapports de viscosités faibles. On remarque également que le tip-splitting intense du cas  $R = 4.69$  (Fig.5.10c) permet que le motif de digitation atteigne plus rapidement l'interface avant de l'échantillon que dans les cas où le contraste de viscosités est plus faible (Fig.5.10a et 5.10b). Dans ce cas également, la digitation provoque, pour un rapport de viscosités important, la séparation d'échantillons en plusieurs parties disjointes.

La Fig.5.11 représente le cas  $R = 5.73$  pour une vitesse modérée  $U = 5$  mm/s. Dans ce cas, le fluide moins visqueux est tellement plus mobile que l'échantillon qu'il forme un canal au milieu de l'échantillon et rejoint directement le trou d'évacuation, expulsant les restes de l'échantillon sur les côtés de la cellule. L'élimination de l'entière de ces restes prend énormément de temps (plus de 15 minutes). Ce résultat montre que l'évacuation d'un échantillon très visqueux d'un sous-sol ou d'une colonne chromatographique par déplacement par un fluide vecteur largement moins visqueux peut poser problèmes.

## 5.2.2 Analyse quantitative

Notre objectif est de quantifier l'influence de la digitation visqueuse sur l'étalement des échantillons. Afin d'obtenir des données quantitatives sur base des images post-traitées, nous avons suivi l'évolution temporelle de surfaces d'isoconcentrations. Pour ce faire, nous avons extrait des images post-traitées des courbes d'isoconcentrations qui délimitent les zones de l'image où le niveau de gris normalisé entre 0 et 1 est supérieur ou égal à un certain seuil. Un exemple est donné en Fig.5.12 : les seuils choisis correspondent aux niveaux de gris 0, 0.17, 0.33, 0.50, 0.67 et 0.83. Le niveau 0.83 a été déterminé par essais et erreurs comme étant le niveau de gris supérieur permettant de recouvrir complètement l'échantillon sans montrer de bruit de fond significatif. L'intervalle de 0.17 entre les niveaux d'isoconcentrations est suffisant pour décrire la dynamique et pour isoler clairement chaque surface d'isoconcentration des autres.

La Fig.5.13 montre un exemple d'évolution temporelle des surfaces d'isoconcentration pour une même vitesse d'injection modérée  $U = 5$  mm/s et deux rapports de viscosités différents. On observe clairement que les zones d'isoconcentration évoluent très différemment entre ces deux cas : les zones

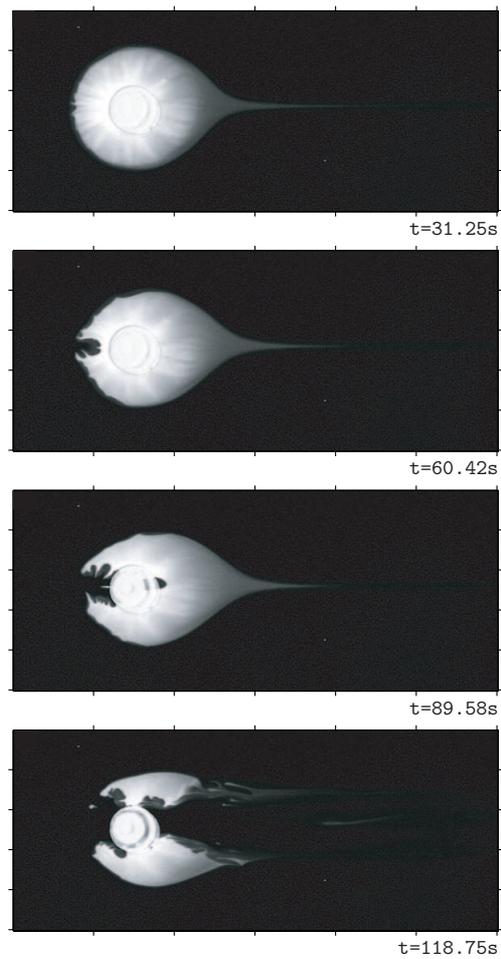


FIGURE 5.11 – Digitation visqueuse d'un échantillon fini initialement circulaire très visqueux :  $R = 5.73$ ,  $U = 5 \text{ mm/s}$ .

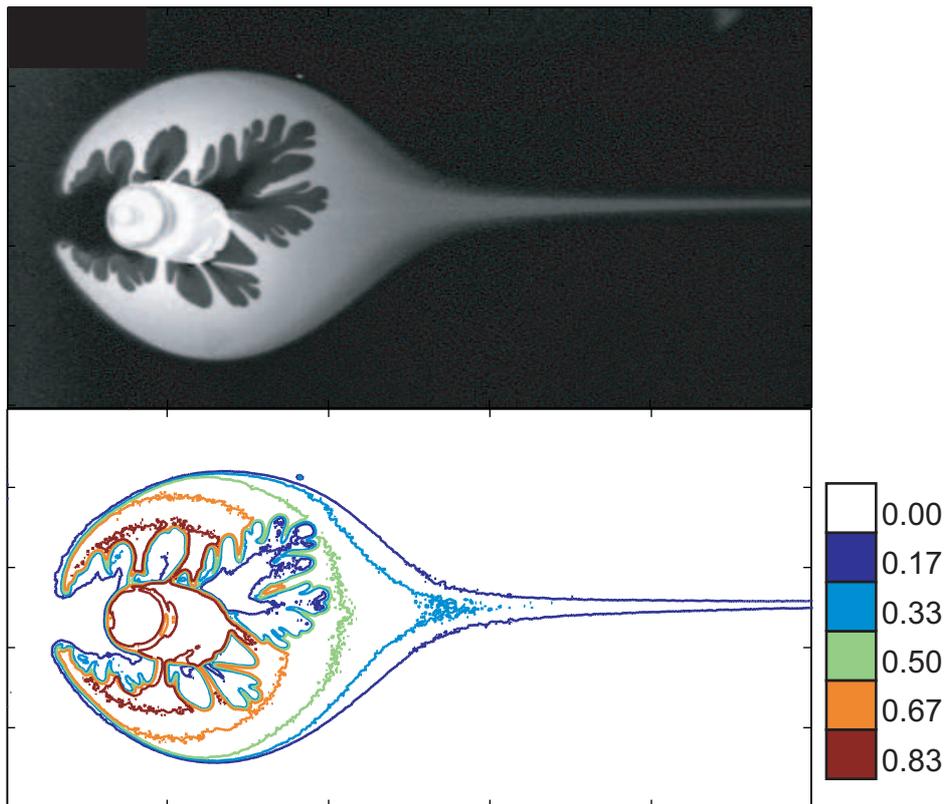


FIGURE 5.12 – Digitation visqueuse d'un échantillon pour  $R = 5.73$  et  $U = 8.33$  mm/s. La zone recadrée est large de 66 mm et longue de 130 mm. La vignette supérieure représente l'image directe de la dynamique à  $t = 12$  s et la vignette inférieure montre les zones d'isoconcentration correspondantes.

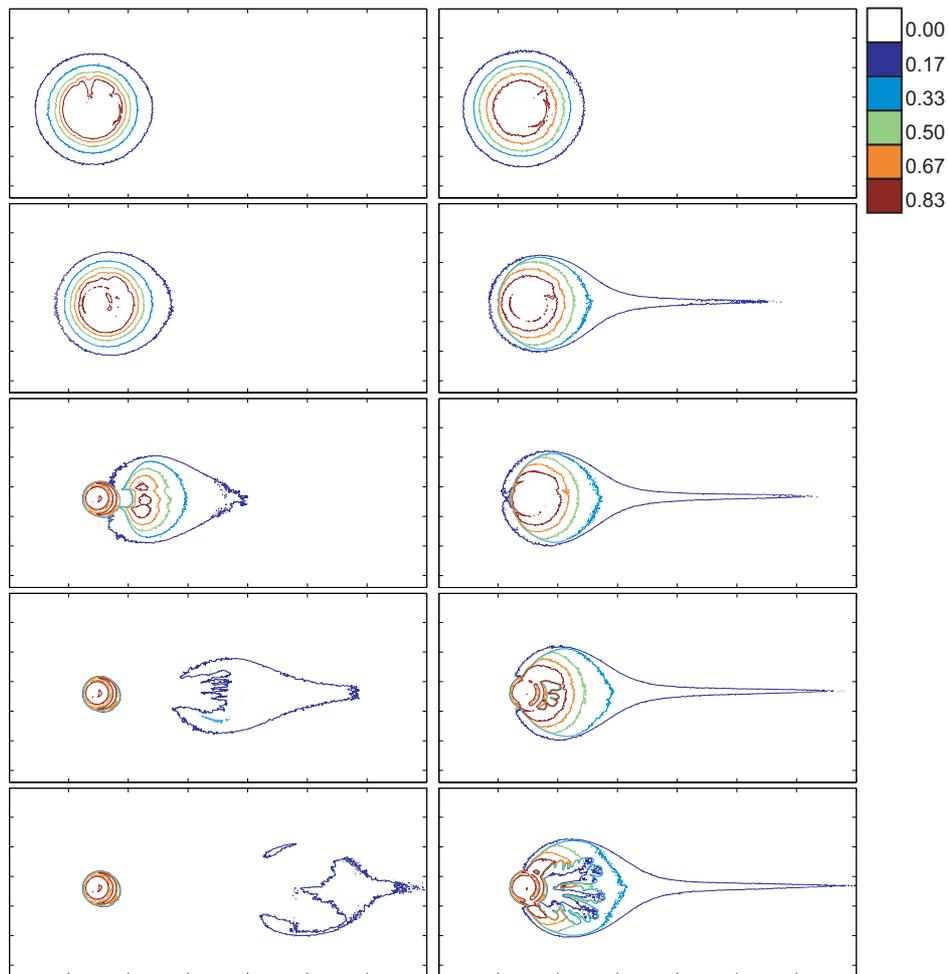


FIGURE 5.13 – Digitation visqueuse d'un échantillon pour une vitesse d'injection fixée  $U = 8.33 \text{ mm/s}$  : évolution temporelle des surfaces d'isoconcentration. Le temps entre chaque image est de 9 s. Le rapport logarithmique vaut : a)  $R = 2.37$  (cfr. Fig.5.6b) et b)  $R = 4.69$  (cfr. Fig.5.7a). La zone recadrée est large de 100 mm et longue de 200 mm.

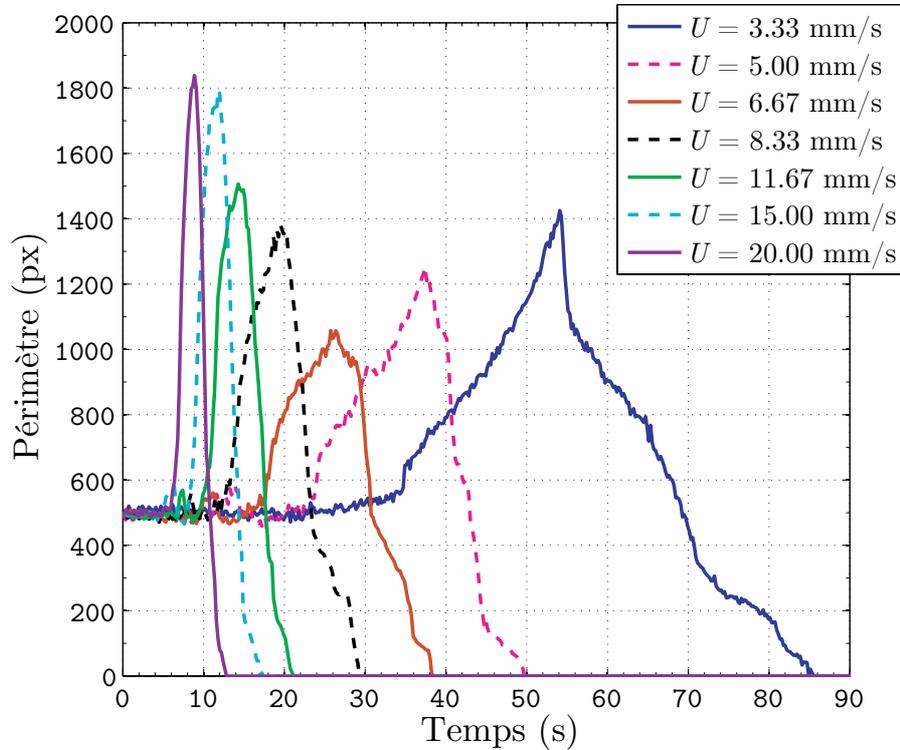


FIGURE 5.14 – Evolution temporelle du périmètre de la zone d'isoconcentration  $S_{0.83}$  correspondant à un niveau de gris supérieur ou égal à 0.83, pour un rapport de viscosité fixé  $R = 2.37$  et 7 valeurs de vitesses différentes.

correspondant aux niveaux inférieurs à 0.83 disparaissent rapidement dans le cas  $R = 2.37$ , ce qui n'est pas le cas pour  $R = 4.69$ . On observe également une déformation et un «shift» vers l'avant de l'échantillon des zones de concentration élevée plus importants pour le contraste de viscosités plus faible.

Sur base des profils d'isoconcentration, nous calculons ensuite le périmètre et l'aire de la surface d'isoconcentration  $S_{0.83}$  correspondant à un niveau de gris supérieur ou égal à 0.83 au cours du temps.

### Effet de la vitesse d'injection

Comme l'illustrent les Fig.5.7 et 5.8, en augmentant la vitesse d'injection  $U$  pour un rapport logarithmique de viscosités  $R$  donné, on observe l'apparition de doigts plus nombreux et plus fins. On observe également que le nombre de subdivisions des doigts au cours de leur développement (*tip-*

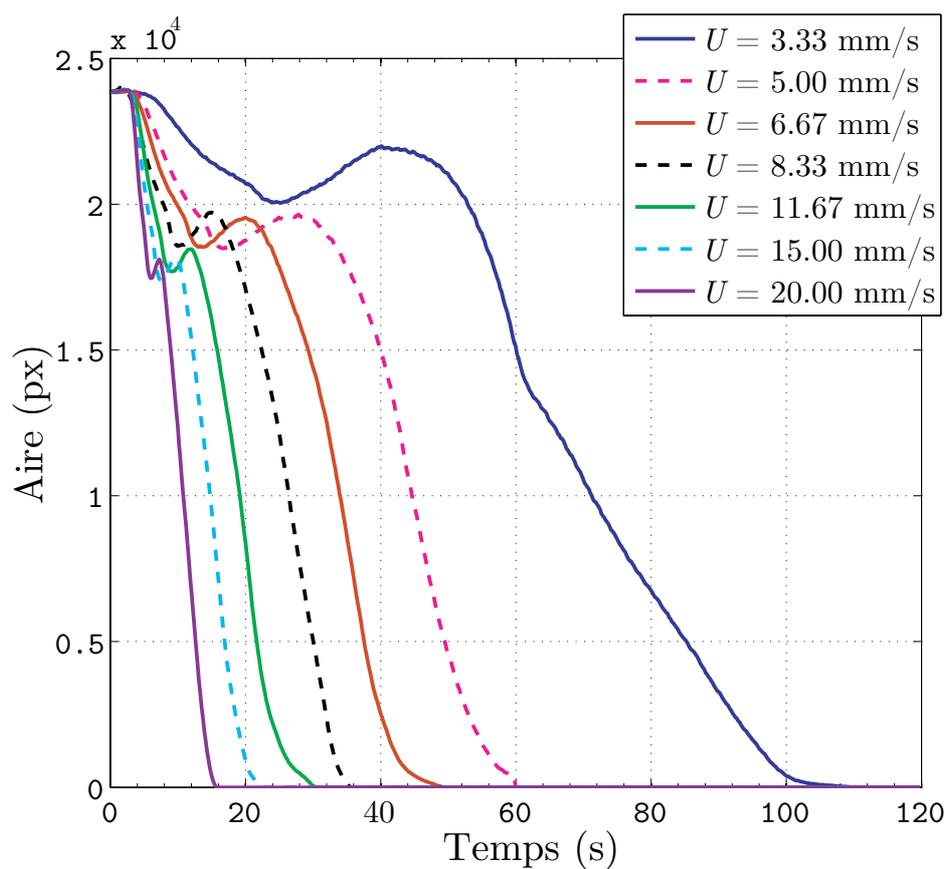


FIGURE 5.15 – Evolution temporelle de l’aire de la zone d’isoconcentration  $S_{0.83}$ , pour un rapport de viscosité fixé  $R = 2.37$  et 7 valeurs de vitesses différentes.

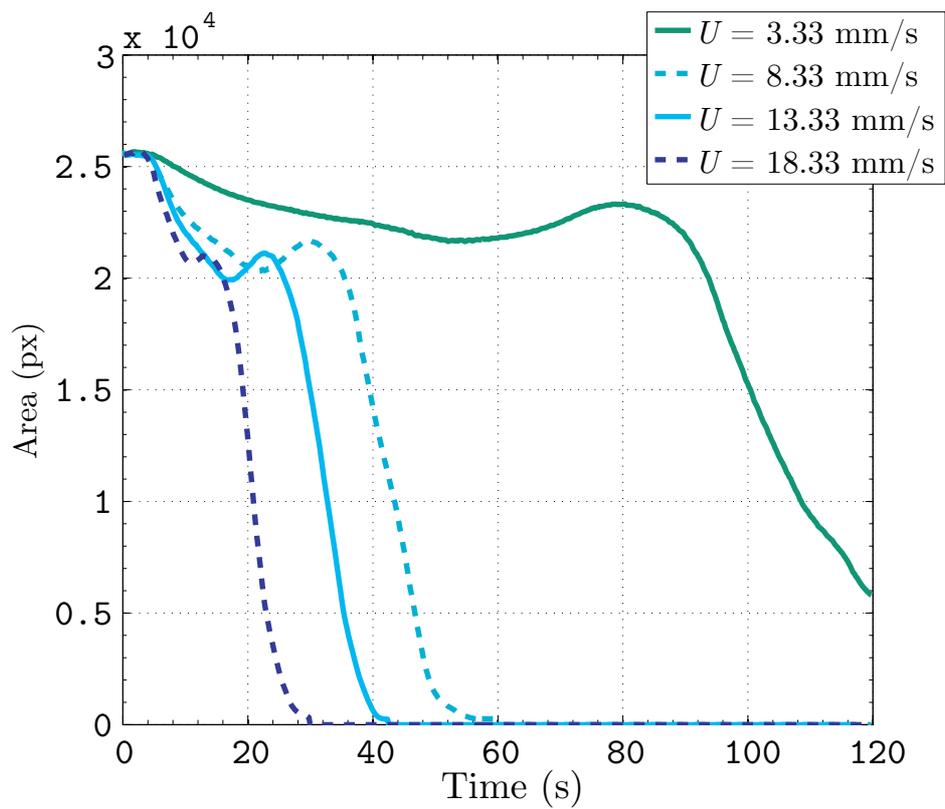


FIGURE 5.16 – Evolution temporelle de l'aire de la zone d'isoconcentration  $S_{0.83}$ , pour un rapport de viscosité fixé  $R = 5.69$  et 4 valeurs de vitesses différentes.

*splitting*) augmente avec la vitesse.

Sur la Fig.5.14 est représenté le périmètre de la surface d'isoconcentration  $S_{0.83}$  au cours du temps pour plusieurs vitesses et un rapport de viscosité fixé  $R = 2.37$  tel que celui utilisé dans les cas de la Fig.5.7. A basse vitesse ( $U = 3.33$  mm/s), le périmètre augmente lentement à cause du lent développement d'un ou deux doigts larges qui finissent par coalescer (cfr. Fig.5.7). A plus haute vitesse, ( $U = 20$  mm/s), le périmètre croît rapidement jusqu'à son maximum, avant que l'échantillon ne soit totalement évacué hors de la cellule (ce qui provoque la décroissance du périmètre après qu'il ait atteint ce maximum).

De manière surprenante, on constate que la valeur du maximum n'évolue pas de manière monotone avec la vitesse. En effet, dans le cas  $U = 6.67$  mm/s, la valeur maximale du périmètre au cours du temps est inférieure à celle des deux cas limites de haute et basse vitesse. Cette vitesse  $U = 6.67$  mm/s correspond à la transition entre un régime caractérisé par le développement de quelques doigts larges qui finissent par coalescer à basse vitesse et un régime pour lequel de nombreux doigts fins envahissent l'échantillon et se subdivisent quelques fois avant que l'échantillon quitte la cellule à haute vitesse. Pour des valeurs de la vitesse d'injection  $U$  supérieures à cette vitesse « de transition »  $U = 6.67$  mm/s, l'augmentation de la vitesse implique une augmentation de la valeur maximale atteinte par l'évolution temporelle du périmètre : ceci correspond à l'augmentation du nombre de doigts et l'intensification du phénomène de *tip-splitting* au cours du temps.

La Fig.5.15 montre l'évolution de l'aire de la surface d'isoconcentration  $S_{0.83}$  pour  $R = 2.37$  et plusieurs valeurs de la vitesses d'injection  $U$ . La diminution de l'aire au cours du temps est due au fait que l'échantillon est progressivement drainé hors de la cellule au travers du trou d'évacuation. La bosse qui apparaît sur les courbes correspond au développement du motif de digitation visqueuse qui entraîne une augmentation de l'aire par rapport au cas stable. On observe que pour cette valeur du rapport logarithmique des viscosités, la transition entre le régime caractérisé par le développement de quelques doigts bien larges (par exemple à  $U = 3.33$  mm/s) et le régime caractérisé par un *tip-splitting* intense (par exemple à  $U = 8.33$  mm/s) est également située aux alentours de  $U = 6.67$  mm/s. De plus, on observe aussi que la « bosse » des courbes est plus bas dans le cas des hautes vitesses que dans celui des basses vitesses. Comme le montre la Fig.5.7, on observe en effet que pour des valeurs importantes de la vitesse d'injection, l'étalement de l'échantillon dans la direction transverse au flux est moins important que dans le cas « basse vitesse ».

Si on augmente  $R$  à 4.69, (cfr. Fig.5.16), les valeurs maximales atteintes à basse vitesse ( $U = 3.33$  mm/s) sont supérieures à celles atteintes à vitesses

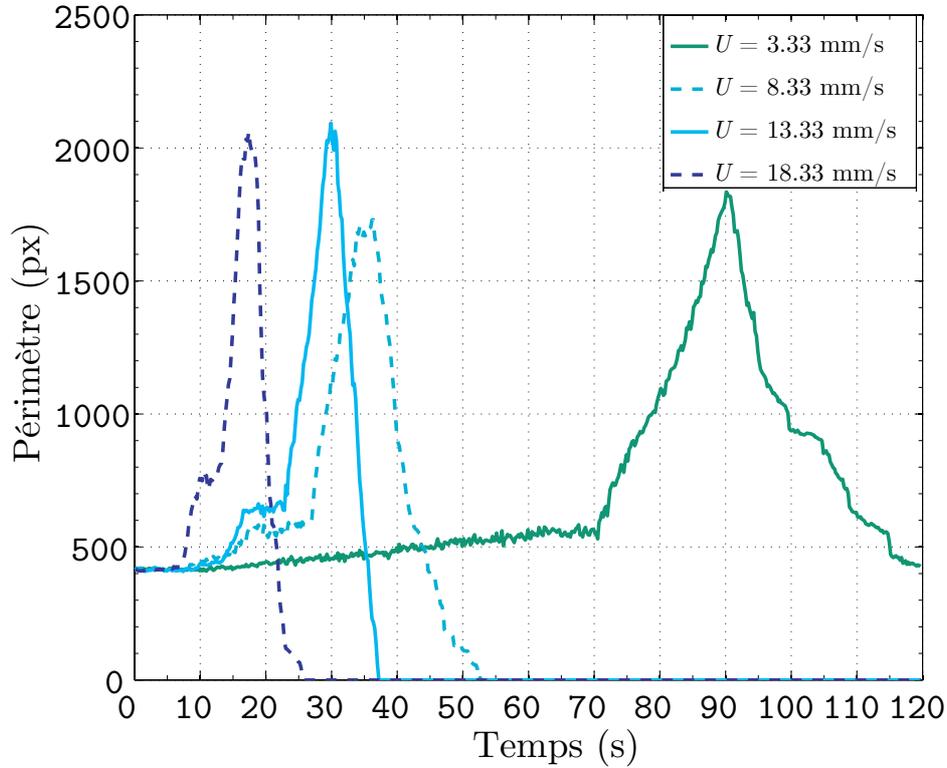


FIGURE 5.17 – Evolution temporelle du périmètre de la zone d'isoconcentration  $S_{0,83}$ , pour un rapport de viscosité fixé  $R = 4.69$  et 4 valeurs de vitesses différentes.

importantes ( $U = 13.33, 18.33$  mm/s). En effet, à vitesse faible à modérée, l'apparition de deux paquets de doigts (cfr. Fig.5.10c et Fig.5.8a) qui se repoussent augmente l'étalement transverse de l'échantillon. Par contre, dans le cas à haute vitesse, l'apparition d'un seul paquet de doigts qui avancent rapidement au centre de l'échantillon n'augmente pas de manière importante l'étalement de l'échantillon (cfr. Fig.5.8b et Fig.5.8c).

On constate sur la Fig.5.17, qui montre l'évolution du périmètre de la surface d'isoconcentration  $S_{0,83}$  pour  $R = 4.69$  et plusieurs valeurs de la vitesse d'injection  $U$ , que les valeurs maximales atteintes à basse vitesse ( $U = 3.33$  mm/s) sont supérieures à celles atteintes à vitesse modérée ( $U = 8.33$  mm/s). A basse vitesse, la dispersion joue un rôle important dans l'élargissement des doigts répartis en deux paquets, qui deviennent bien plus larges que dans le cas des hautes vitesses (cfr. Fig.5.10c et Fig.5.8). Pour une vitesse modérée  $U = 8.33$  mm/s, l'échantillon est en grande partie éliminé avant que l'on atteigne le régime de Taylor-Aris, les doigts sont plus fins. A plus haute

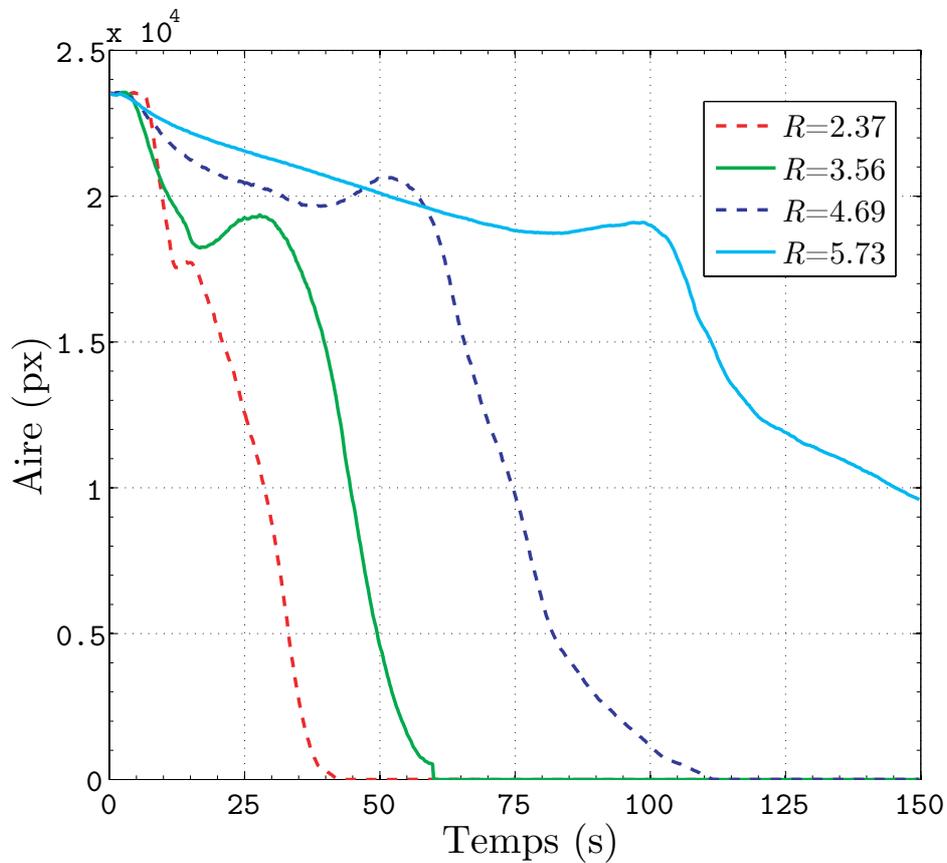


FIGURE 5.18 – Evolution temporelle de l'aire de la zone d'isoconcentration  $S_{0,83}$ , pour une vitesse fixée  $U = 5$  mm/s et 5 valeurs différentes du rapport de viscosités.

vitesse, le tip-splitting de plus en plus intense que subissent les deux paquets de doigts contribue largement à augmenter la valeur maximale du périmètre (cfr. Fig.5.8b). Enfin, à très haute vitesse  $U = 18.33$  mm/s, l'apparition d'un seul paquet de doigts centré au milieu de l'échantillon diminue la valeur maximale atteinte par le périmètre. Comme observé précédemment, plus la vitesse augmente, plus la digitation visqueuse apparaît rapidement.

### Effet du contraste de viscosités

L'évolution temporelle de l'aire d'échantillons de viscosités différentes déplacés à la même vitesse est montrée<sup>2</sup> sur la Fig.5.18. Lorsque l'on passe

2. Dans les cas  $R > 0$ , l'échantillon forme un fuseau qui se connecte au trou d'évacuation et perd donc du volume au cours du temps ; ceci explique le fait que l'aire diminue au cours

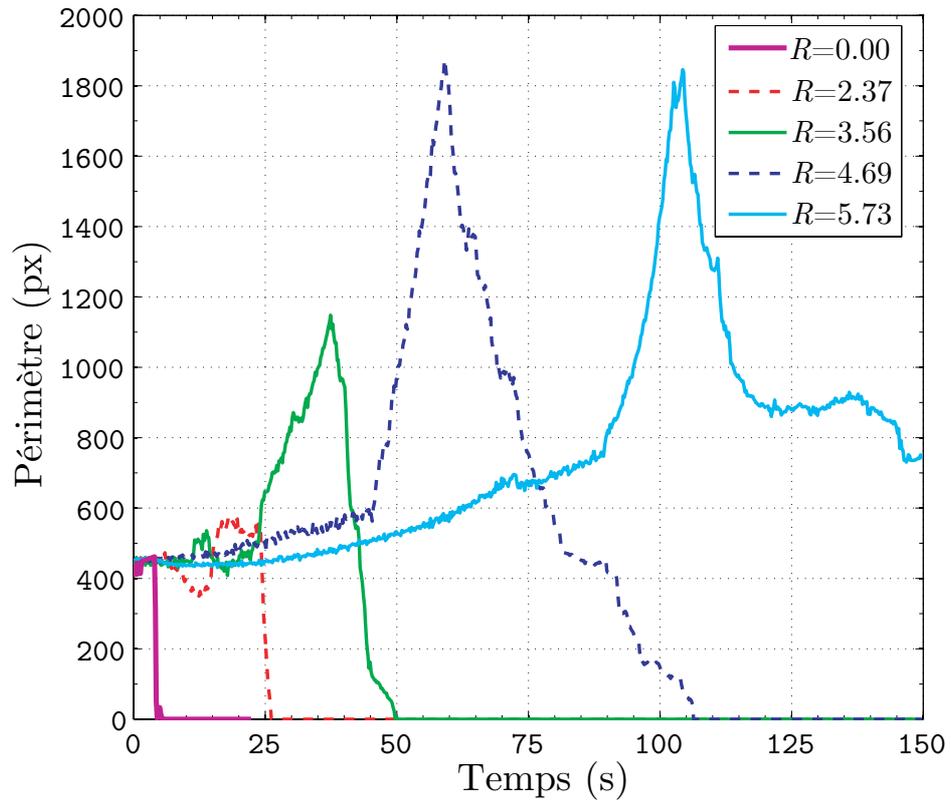


FIGURE 5.19 – Evolution temporelle du périmètre de la zone d'isoconcentration  $S_{0.83}$ , pour une vitesse fixée  $U = 5$  mm/s et 4 valeurs différentes du rapport de viscosités.

d'un rapport logarithmique de viscosités de 2.37 à 3.56, l'échantillon reste plus longtemps dans la cellule et la digitation est plus importante, ce qui implique une bosse plus large sur la courbe. Quand un canal se forme au milieu d'un échantillon très visqueux (comme, par exemple, sur la Fig.5.11 pour  $R = 5.73$ ) le motif de digitation se développe moins bien (ce qui implique une bosse moins importante), mais on peut trouver des restes de l'échantillon dans la cellule pour des temps nettement plus importants que dans le cas où le rapport logarithmique de viscosités est moins important. Par exemple, pour des vitesses inférieures à  $U = 5$  mm/s, il faudra 10 fois plus de temps pour évacuer l'échantillon pour  $R = 3.56$  que pour  $R = 2.37$ .

L'évolution du périmètre de l'échantillon pour une vitesse d'injection donnée et 5 rapports de viscosités différents est montrée sur la Fig.5.19. Le cas stable  $R = 0$  montre une augmentation faible du périmètre avant qu'il ne tombe rapidement vers zéro (ce qui correspond au fait que l'échantillon sort de la cellule pour des échelles de temps très courtes). Quand la digitation visqueuse se produit, c'est-à-dire dès que  $R > 0$ , la distorsion de l'échantillon implique une augmentation importante du périmètre. Pour  $R = 2.37$  et pour des vitesses modérées (par exemple dans ce cas  $U = 5$  mm/s), la digitation n'est visible qu'après un certain laps de temps. Avant que la digitation n'apparaisse, l'échantillon est évacué de la cellule, ce qui implique la diminution du périmètre visible sur la Fig.5.19. Pour des échantillons très visqueux, par exemple dans le cas  $R = 5.73$ , la formation du canal décrite précédemment implique que le périmètre n'atteint pas des valeurs plus importantes que dans le cas  $R = 3.56$ . Précisons également que la digitation visqueuse continue à se produire dans les restes de l'échantillon très visqueux, ce qui explique la bosse observable sur la courbe  $R = 5.73$  après le premier pic.

### 5.3 Conclusions

Nous avons étudié expérimentalement la contribution de la digitation visqueuse à l'étalement d'échantillons de taille finie initialement circulaires, déplacés linéairement par un fluide moins visqueux dans la cellule de Hele-Shaw. Dans ce cas, l'interface arrière entre l'échantillon et le fluide vecteur est instable pour la digitation visqueuse. Nous avons montré que le motif de digitation varie fortement en fonction du contraste de viscosités et de la vitesse d'injection du fluide vecteur : plus le rapport de viscosités ou la vitesse d'injection sont importants, plus le motif de digitation visqueuse est complexe

---

du temps. Il n'en est pas de même pour le cas  $R = 0$  et l'aire de l'échantillon augmente donc continûment au cours du temps, raison pour laquelle nous n'avons pas pu représenter le cas  $R = 0$  sur la Fig.5.18.

et plus l'échantillon subit une déformation importante. Nous avons mis en évidence que pour un débit donné, lorsque le rapport de viscosité devient très important, un canal peut se former au sein de l'échantillon. L'apparition de ce canal sera tout à fait néfaste dans les applications à l'extraction de pétrole notamment en géométrie dite « quarter five spots » (Homsy, 1987).

Afin de quantifier l'importance de la déformation de l'échantillon par digitation, nous avons étudié l'évolution temporelle de l'aire et du périmètre de surfaces d'isoconcentration. Nous avons sur cette base mis en évidence que l'apparition du tip-splitting augmente largement l'aire et le périmètre de l'échantillon. Nous avons également montré que pour un rapport de viscosités donné, plus on augmente la vitesse, moins l'échantillon s'étale dans la direction transverse au flux. Afin d'éliminer le plus efficacement possible un échantillon pour un rapport de viscosités fixé, on essaiera donc de trouver la plus haute vitesse permettant de ne pas avoir un tip-splitting intense. Cette observation prend particulièrement sens par exemple si l'on veut déterminer le débit d'eau adéquat pour éliminer une zone de pollution d'un sous-sol. De plus, pour une vitesse d'injection donnée, l'aire et le périmètre de la zone d'isoconcentration correspondant à une concentration réduite de 0.17 pour un rapport de viscosités modéré atteignent des valeurs maximales supérieures à celles obtenues pour un rapport de viscosités très important. En effet, dans le cas d'un rapport de viscosité très large (ici  $R = 5.73$ ), un canal se forme au milieu de l'échantillon. Ce résultat implique que, par exemple, la taille de la zone de contamination pour des contaminants très visqueux dans un milieu poreux sera moins importante que dans le cas de contaminants de viscosité modérée. Il faut cependant noter que cela prendra nettement plus de temps pour éliminer entièrement le contaminant très visqueux du milieu poreux.

A la suite de nos résultats, il semble pertinent d'étudier dans le futur le cas d'échantillons moins visqueux que le fluide environnant. Il serait également intéressant de construire un système pour lequel l'évacuation est linéaire. Ceci permettrait notamment une meilleure comparaison avec les prédictions théoriques de Chen *et al.* (2001) et un examen de l'effet éventuel des « stress » de Korteweg.

---

## DIGITATION VISQUEUSE INDUITE PAR UNE RÉACTION CHIMIQUE

---

Dans le chapitre précédent, nous avons envisagé le cas d'une digitation visqueuse induite par une différence de viscosité entre deux fluides non réactifs. Dans ce chapitre, nous étudierons le cas où la digitation visqueuse est induite par une réaction chimique entre deux solutions aqueuses de même viscosité contenant chacune un réactif d'une réaction qui génère un produit plus visqueux.

La question du couplage entre digitation visqueuse et réactions chimiques a déjà fait l'objet de plusieurs travaux théoriques et expérimentaux. Typiquement, deux catégories différentes de systèmes réactifs sont étudiées : le cas d'une réaction « passive » pour l'hydrodynamique, c'est-à-dire où le flux ne fait que transporter les solutés par advection et le cas d'une réaction « active » qui modifie la viscosité de la solution. Dans le cas d'une réaction passive, des travaux expérimentaux ont montré que la digitation affecte la répartition spatio-temporelle des composés chimiques : les motifs observés dépendent de la concentration initiale en réactifs et de la vitesse des doigts liée à la vitesse d'injection et à la viscosité des solutions (Jahoda et Hornof, 2000; Nagatsu et Ueda, 2001, 2003, 2004; Nagatsu *et al.*, 2009b).

Le cas d'une réaction active a également fait l'objet de travaux expérimentaux. Dans le cas miscible, Nagatsu *et al.* (2008) ont étudié l'effet d'une réaction de précipitation sur le motif de digitation. Ils ont mis en évidence que pour des concentrations faibles en réactifs, la précipitation diminue le tip-splitting et pour des concentrations plus importantes en réactifs, la précipitation provoque des changements de direction dans la progression des doigts. Nagatsu *et al.* (2007, 2009a) ont également étudié l'influence sur la digitation d'une réaction chimique modifiant la viscosité du solvant. Ils ont examiné en particulier le cas d'une réaction  $A + B \rightarrow C$  où  $A$  est dissout

dans la solution moins visqueuse qui envahit une solution plus visqueuse de  $B$ . La réaction a lieu lorsque les deux solutions réactives entrent en contact, produisant du  $C$  à l'interface. Dans les deux articles de Nagatsu *et al.*, la viscosité de la solution de  $A$  est fixée et inférieure à celle de la solution de  $B$ . Le système est donc déjà visqueusement instable en l'absence de réactions et le but est dans ce cas d'examiner dans quelle mesure la réaction donnant lieu à une différence de viscosités va affecter l'instabilité de digitation visqueuse sous-jacente. Nagatsu *et al.* (2007) considèrent le cas d'une réaction très rapide générant un produit  $C$  dont la viscosité diffère de celle de  $B$ . Lorsque le produit  $C$  est plus visqueux que le réactif  $B$ , l'effet d'écrantage entre les doigts est diminué et le motif devient plus dense dans une zone donnée. Lorsqu'au contraire le produit  $C$  est moins visqueux que le réactif  $B$ , l'effet d'écrantage augmente et le motif devient moins dense dans une zone donnée. Dans le cas d'une réaction relativement lente et pour laquelle le produit  $C$  est moins visqueux que le réactif  $B$  (Nagatsu *et al.*, 2009a), le motif de digitation est plus dense dans le cas réactif que dans le cas non-réactif. Dans ces expériences, le fluide vecteur (la solution de  $A$ ) est moins visqueux que le fluide déplacé (la solution en  $B$ ) (Nagatsu *et al.*, 2007, 2009a). Une telle situation est toujours instable, même en l'absence de réaction : les changements de viscosités induits par la réaction chimique ne font que modifier les propriétés du motif de digitation.

Une situation intéressante est celle où la chimie est la source même de la déstabilisation. Ceci se produit lorsque la viscosité de  $A$  est supérieure ou égale à la viscosité de  $B$  et que la production de  $C$  de viscosité différente parvient à déstabiliser le profil initial de viscosité stable pour la digitation. Ainsi, Podgorski *et al.* (2007) considèrent le cas d'une réaction du type  $A + B \rightarrow C$  où les deux solutions des réactifs  $A$  et  $B$  ont une même viscosité tandis que le produit  $C$  a une viscosité plus élevée. Concrètement, ils utilisent des solutions aqueuses de bromure de cetyltriméthylammonium (CTAB) et de salicylate de sodium (NaSal) qui, lorsqu'elles réagissent entre elles, forment un fluide micellaire hautement visco-élastique (Podgorski *et al.*, 2007). En l'absence de réaction, aucune digitation visqueuse n'apparaîtrait à l'interface entre les deux solutions de réactifs, celles-ci ayant en effet la même viscosité à savoir celle de l'eau. Grâce à la réaction, cependant, un motif de digitation visqueuse induite chimiquement est observé. Podgorski *et al.* (2007) se focalisent sur le cas d'une injection radiale à débit constant d'une solution dans l'autre, les deux solutions ayant une même concentration en réactifs.

Un premier résultat important de Podgorski *et al.* (2007) est la mise en évidence du fait que, à concentrations constantes, le motif de digitation obtenu dans le cas où la solution de CTAB est injectée dans la solution de NaSal n'est pas le même que dans le cas contraire où la solution de NaSal

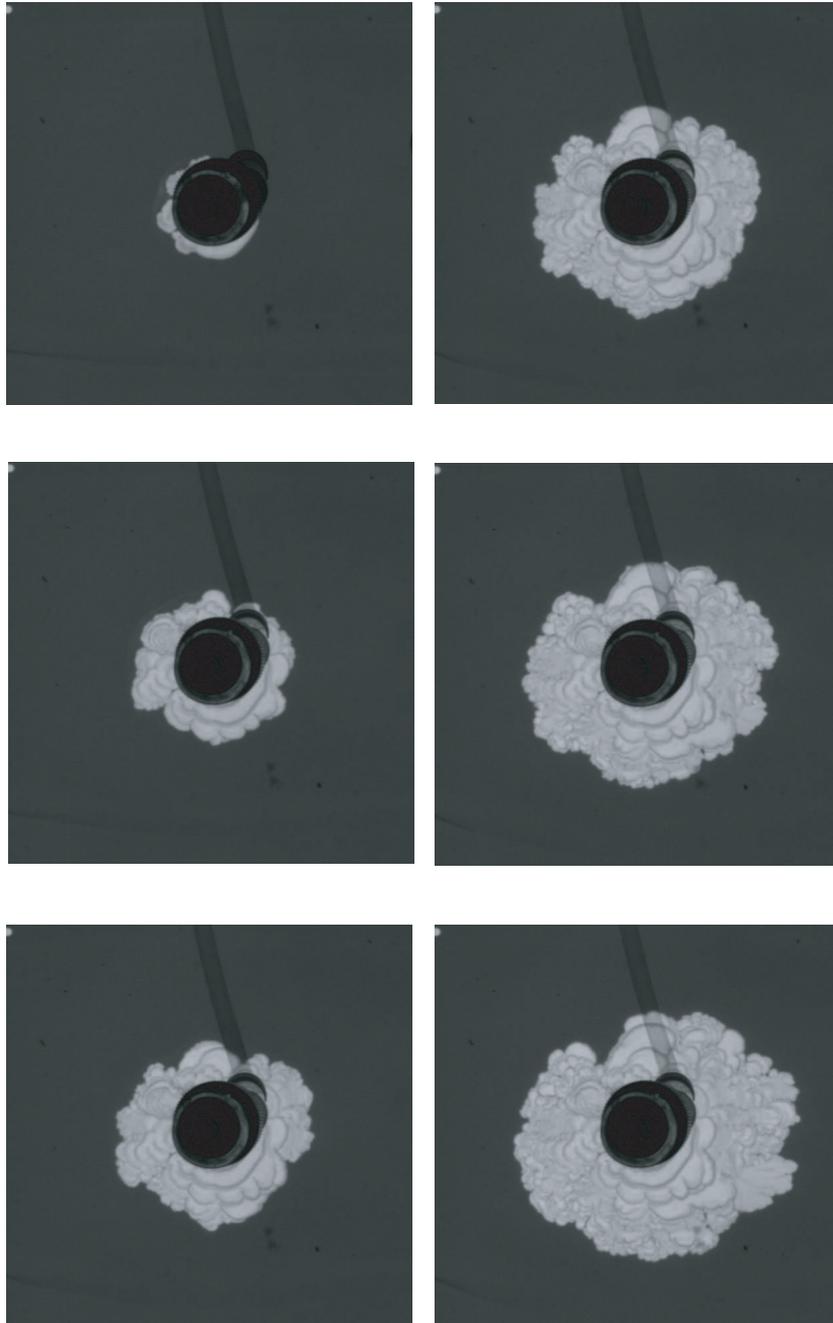


FIGURE 6.1 – Digitation induite par une réaction chimique : injection radiale à débit constant  $Q = 150$  ml/h d'une solution incolore de 30 mM en CTAB dans une solution de 30 mM en NaSal, teintée avec 0.5 g/l de bleu de Trypan. Les dimensions réelles des images sont 8 cm sur 8 cm. Les images se succèdent de haut en bas et de gauche à droite. La première image est prise après 2 s, les autres toutes les 4s.

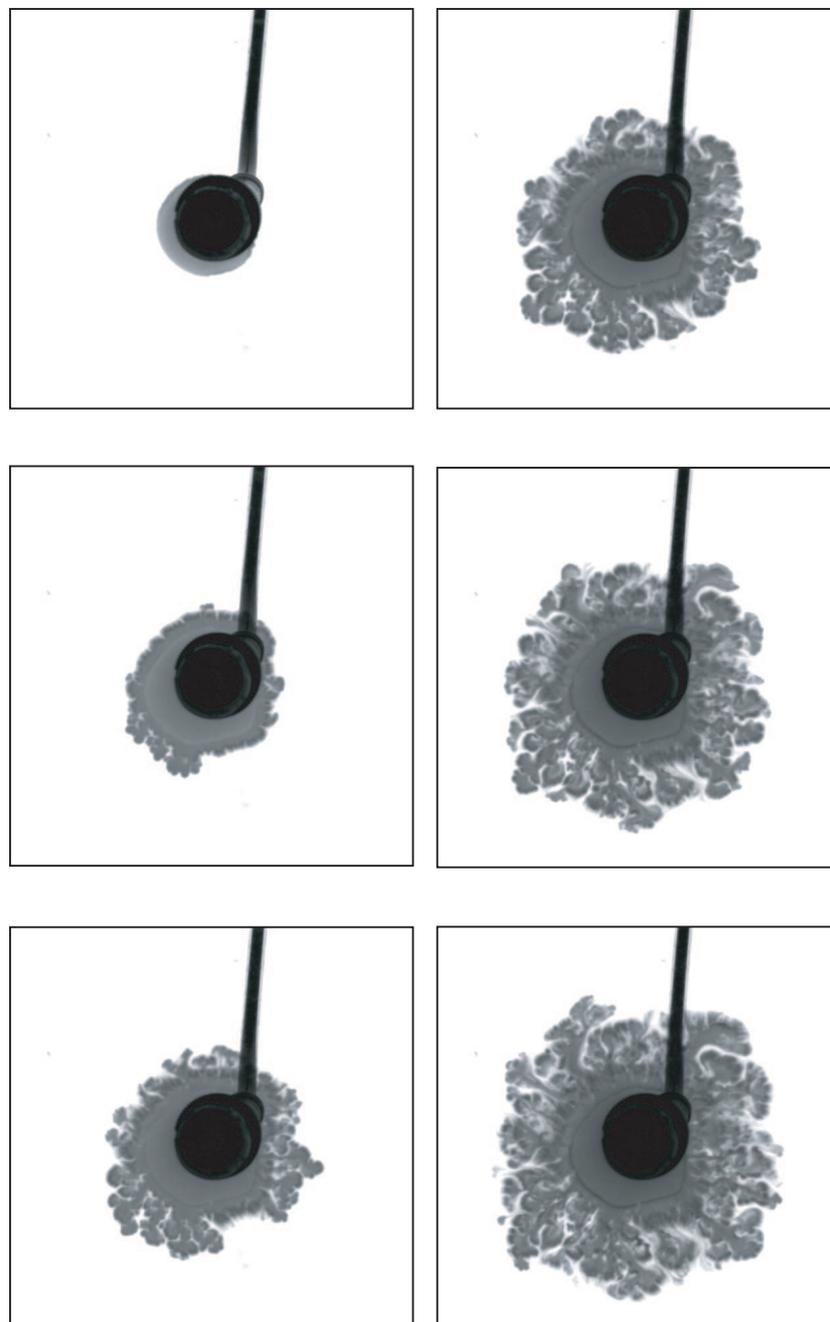


FIGURE 6.2 – Idem que la Fig.6.1 lorsque la solution de NaSal est injectée dans le CTAB. La première image est prise après 2 s, les autres toutes les 2s.

est injectée dans la solution de CTAB. Nous avons dans un premier temps reproduit ce résultat Les Fig.6.1 et 6.2 donnent deux exemples de manipulations en injection radiale, réalisées dans notre dispositif expérimental, sur le modèle de Podgorski *et al.* (2007). Dans les deux figures, les concentrations en CTAB et NaSal sont identiques et valent 30 mM. On a ajouté à la solution de NaSal 0,5 g/l de colorant (bleu de Trypan). Le débit d'injection est fixe et vaut 150 ml/h. Comme on le constate aisément en comparant les figures, le motif obtenu lorsque le CTAB est injecté dans le NaSal diffère fortement de celui obtenu lorsque le NaSal est injecté dans le CTAB. Podgorski *et al.* (2007) suggèrent que cette différence pourrait être liée au fait que le salicylate diffuse beaucoup plus vite que les micelles et que le CTAB (qui est un surfactant).

Ils remarquent de plus que lorsqu'ils injectent une solution de 50 mM de CTAB dans une solution de 50 mM de NaSal, plusieurs régimes de développement de l'instabilité sont observables au cours du temps et en fonction du débit. A bas débit ( $Q < 50$  ml/h), une série de « champignons » se forment autour du point d'injection, qui se transforment ensuite, après 5 à 10 s, en une série de doigts larges formant une sorte « d'éventail ». Après 60 à 80 s, certains doigts filent sous forme de tentacules. A haut débit ( $Q > 120$  ml/h) en revanche, l'interface paraît évoluer au départ sans que l'instabilité apparaisse pour qu'ensuite, l'interface se brise soudainement et forme des motifs en « champignons ». Après moins de 20 secondes, cependant, ce motif laisse place au motif en éventail. L'apparition de « tentacules » n'est pas observée dans ce cas.

La Fig.6.1 illustre le comportement à haut débit pour  $Q = 150$  ml/h. Il est à noter que l'utilisation d'une pompe péristaltique induit des variations périodiques de débit qui impliquent que la membrane de gel se « casse » en plus d'endroits et que la longueur d'onde des doigts soit plus faible que dans le cas d'une injection assurée par un pousse-seringue — à l'instar des expériences de Podgorski *et al.* (2007). Au départ, les motifs sont assez larges (2s, 6s) pour évoluer progressivement vers une série de doigts plus petits (18s, 22s).

D'un point de vue théorique, Gérard et De Wit (2009) ont tenté de comprendre l'asymétrie des motifs obtenus selon qu'une solution pousse l'autre ou vice-versa. Pour ce faire, ils simulent la digitation visqueuse induite par la chimie dans le cas des expériences de Podgorski *et al.* (2007) pour un fluide newtonien. Ils examinent numériquement comment la production d'une espèce  $C$  plus visqueuse par une réaction  $A + B \rightarrow C$  peut générer une instabilité de digitation visqueuse dans ce cas où  $\mu_A = \mu_B$ . Pour ce faire, ils simulent le cas d'un échantillon de taille finie initialement rectangulaire contenant une solution du réactif B déplacé linéairement dans une cellule de Hele-Shaw par

une solution du réactif  $A$ . Ils considèrent la loi de Darcy dans laquelle la viscosité dépend de la concentration  $c$  en produit couplée aux équations de réaction-diffusion-convection pour les concentrations des espèces impliquées dans une réaction  $A + B \rightarrow C$ . Ils montrent que le motif de digitation visqueuse est symétrique quand  $A$  pousse  $B$  ou quand  $B$  pousse  $A$  si les réactifs ont un même coefficient de diffusion ( $D_m^A = D_m^B$ ) et que les concentrations initiales en réactifs sont identiques. Lorsque ces conditions ne sont pas vérifiées, le motif de digitation visqueuse est différent selon que  $A$  envahit  $B$  ou l'inverse à cause de l'asymétrie des profils de concentration des espèces chimiques et des profils de viscosité correspondants. Ils définissent un paramètre de contrôle

$$\gamma = \frac{D_m^A}{D_m^B} \frac{1}{\phi^2} \quad (6.1)$$

où  $D_m^A$  et  $D_m^B$  sont les coefficients de diffusion de  $A$  et de  $B$  et  $\phi$  est le rapport de la concentration initiale en réactif  $B$  et de celle du réactif  $A$  :

$$\phi = \frac{[B]_0}{[A]_0}. \quad (6.2)$$

En l'absence d'instabilités, la théorie de réaction-diffusion montre que pour  $\gamma = 1$ , le flux de  $A$  et le flux de  $B$  vers la zone réactive sont identiques. De ce fait, le gradient de viscosité est le même que  $A$  pousse  $B$  ou que  $B$  pousse  $A$ . Gérard et De Wit (2009) suggèrent que, pour deux réactifs  $A$  et  $B$  donnés et donc pour un rapport  $D_m^A/D_m^B$  fixé, en variant le rapport des concentrations  $\phi$  de manière à faire varier  $\gamma$  d'une valeur inférieure à 1 jusqu'à une valeur supérieure à 1, on peut inverser le sens de propagation du front de réaction-diffusion et, par là, obtenir des changements visibles dans le motif de digitation visqueuse.

Dans les expériences menées par Podgorski *et al.* (2007), les concentrations en réactifs sont identiques, mais les coefficients de diffusion diffèrent, ce qui pourrait expliquer l'asymétrie observée entre le cas où le CTAB pousse le NaSal et le cas inverse.

Une modélisation générale du problème de digitation visqueuse influencée ou induite par une réaction  $A + B \rightarrow C$  a été effectuée récemment par Hejazi *et al.* (2010) : ils montrent que les propriétés de stabilité de systèmes réactifs pour lesquels la réaction affecte la viscosité de la solution dépendent fortement du fait que le cas non-réactif est ou non stable et du caractère monotone ou non du profil de viscosité qui apparaît au cours du temps.

Dans ce cadre, notre objectif est d'étudier expérimentalement la digitation visqueuse *induite* par une réaction de type  $A + B \rightarrow C$  où les deux réactifs  $A$  et  $B$  ont une même viscosité et le produit  $C$  a une viscosité plus élevée.

En particulier, nous désirons vérifier les prédictions théoriques de [Gérard et De Wit \(2009\)](#) quant à l'impact de changements de concentration en l'un ou l'autre réactif sur le motif de digitation. Pour ce faire, nous avons étudié expérimentalement la digitation induite par la même réaction que [Podgorski et al. \(2007\)](#), c'est-à-dire le cas d'une solution de CTAB et d'une solution de NaSal mises en contact et déplacées dans une cellule de Hele-Shaw. Néanmoins, afin de permettre une meilleure comparaison avec les simulations de [Gérard et De Wit \(2009\)](#), nous avons injecté linéairement une solution dans l'autre.

Tout d'abord, nous avons voulu vérifier si la présence d'un colorant influait ou pas sur le motif de digitation obtenu. Dans un second temps, nous avons mené une première série d'expériences pour des hauts débits. Cette première série nous a permis d'étudier l'effet des concentrations en réactifs et du débit d'injection pour le cas où une solution de CTAB déplace une solution teintée de NaSal. Dans le cas contraire, c'est-à-dire dans le cas où du NaSal teinté est injecté dans du CTAB, et pour ces hauts débits, on a systématiquement observé la formation d'une « barrière » à l'interface entre les deux solutions qui, après quelques secondes, est expulsée dans la cellule à haute vitesse et ce, indépendamment des variations de concentration et de débit d'injection. Afin d'éviter ce problème, nous avons alors effectué une autre série d'expériences en diminuant largement le débit d'injection. Pour ces débits faibles, nous avons mené une seconde étude de l'impact des paramètres expérimentaux (concentrations des deux solutions, débit et choix du fluide vecteur) sur la dynamique.

## 6.1 Effet de la concentration en colorant

Des études expérimentales récentes ([Almarcha et al., 2010](#)) ont montré que la présence ou non d'un indicateur coloré dans les solutions réactives pouvait avoir un effet capital sur les propriétés des instabilités hydrodynamiques dues à des variations de densité dans le champ de gravité. Dans ce cadre, nous avons voulu vérifier si le colorant rajouté à l'une des solutions pour une meilleure visualisation de la dynamique avait bien un comportement passif dans la dynamique. Nous avons, dans une première étape, étudié l'effet de la concentration en colorant sur la dynamique observée. Typiquement, le colorant est ajouté à la solution de NaSal (en effet, la limite de solubilité du NaSal dans l'eau est largement supérieure à celle du CTAB qui est d'après le fournisseur - Sigma-Aldrich - d'environ 65 mM à 20°C). Nous avons tenté de reproduire les expériences de [Podgorski et al. \(2007\)](#) en utilisant le même colorant alimentaire vert (Mc Cormick). Nous faisons varier la concentration de

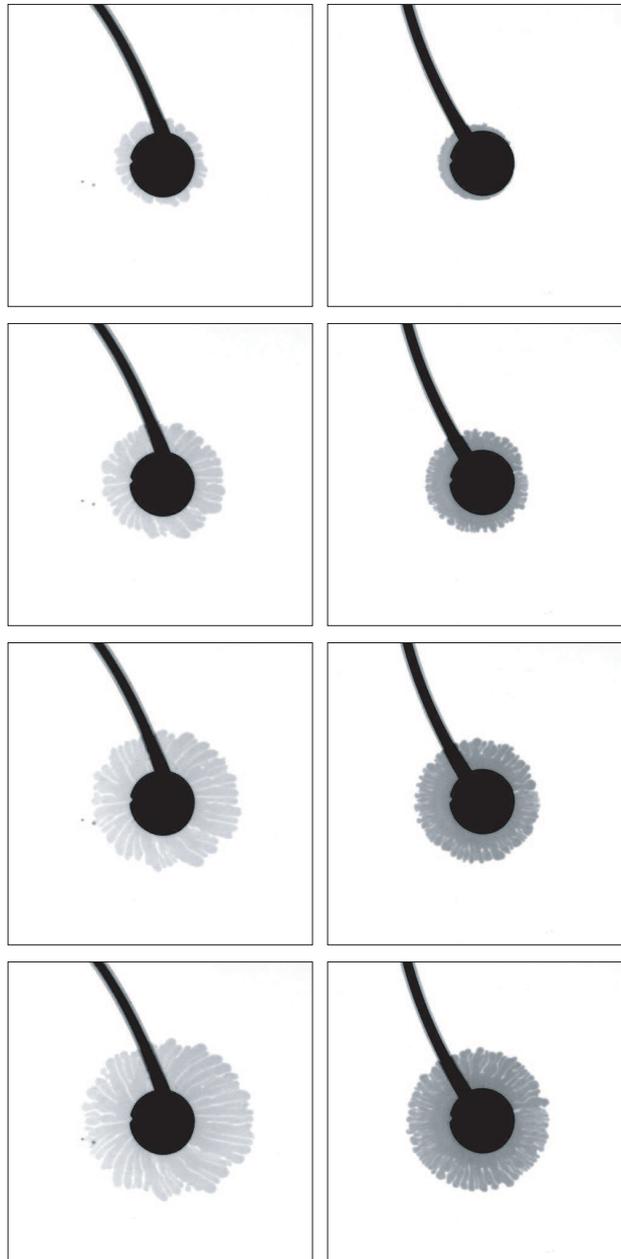


FIGURE 6.3 – Effet de la concentration en colorant sur le motif formé par du NaSal 25 mM injecté radialement à 0.04 ml/s dans du CTAB 25 mM : la concentration en colorant (vert, Mc Cormick) est de 4.00 g/l (gauche) et de 6.00 g/l (droite). L'écart de temps entre chaque image est de 3 s. La zone réelle représentée par l'image est large de 80 mm.

colorant dans le cas d'une solution de 25 mM de NaSal injectée radialement à un débit fixé de 0.04 ml/h dans une solution de 25 mM de CTAB. La Fig. 6.3 montre le résultat obtenu dans le cas de deux concentrations différentes en colorant : 4 g/l et 6 g/l. Comme on l'observe sur la Fig. 6.3, la concentration en colorant modifie la dynamique de l'instabilité : pour 4 g/l, l'instabilité apparaît plus tôt et est caractérisée par le développement de doigts plus longs au même temps que pour le cas 6 g/l. Clairement, le colorant modifie les propriétés de la solution et influence donc la dynamique.

Suite à ce constat, nous avons mesuré la viscosité des solutions de NaSal colorées au moyen d'un viscosimètre (Brookfield LV II+) et nous avons constaté que l'ajout du colorant vert Mc Cormick modifie la viscosité de la solution : le rapport entre la viscosité d'une solution de 25 mM de NaSal colorée et la viscosité d'une solution de la même solution sans colorant passe de 1.09 dans le cas de 4 g/l de colorant à 1.30 dans le cas de 6g/l de colorant. Ces variations substantielles de viscosités induites par l'ajout du colorant expliquent sans doute les différences dans les motifs obtenus dans nos expériences. Ce résultat montre la nécessité, lorsque l'on présente des résultats expérimentaux, de toujours indiquer la concentration effective et la nature du colorant utilisé si on veut permettre à d'autres de reproduire les résultats par la suite.

Afin de diminuer au maximum la concentration en colorant tout en garantissant un contraste visuel suffisant entre les deux solutions, nous avons utilisé dans un premier temps une concentration fixée de 5g/l d'un autre colorant, en l'occurrence du rouge d'amarante (Acros Organics). Le rapport entre la viscosité d'une solution de 25 mM teintée et d'une solution identique sans colorant est de 1.02. Pour les résultats présentés dans ce chapitre dans le cas d'un débit important (Sec.6.2), nous avons donc utilisé 5g/l de rouge d'amarante.

Dans un second temps, nous avons utilisé du bleu de Trypan (Sigma-Aldrich). Ce colorant est en effet très puissant et, même pour de très basses concentrations, il permet toujours un contraste excellent entre le fluide teinté et le fluide transparent. Nous avons fixé la concentration à 0.5 g/l, ce qui permet à la fois un contraste suffisant et une minimisation des effets liés à la présence de ce colorant. La mesure de la viscosité d'une solution de 25 mM de NaSal teintée par 0.5g/l de bleu de Trypan n'a pas montré de différence significative par rapport à une solution identique mais non teintée. Pour les résultats présentés dans ce chapitre dans le cas d'un débit faible (Sec.6.3), nous avons utilisé 0.5g/l de bleu de Trypan.

## 6.2 Hauts débits $Q > 0.1$ ml/s

Pour étudier l'influence de la concentration de chaque réactif et du débit d'injection sur la digitation induite par réaction, nous avons mené une première série d'expériences à haut débit en utilisant du rouge d'amarante. Ces premières expériences effectuées en injection linéaire confirment que lorsque l'on injecte du CTAB dans du NaSal, le motif est différent de celui que l'on obtient dans le cas inverse (NaSal injecté dans du CTAB) (Fig.6.4). Dans le cas du NaSal injecté dans le CTAB, on observe l'apparition d'une « barrière » à l'interface entre les deux solutions. Après quelques secondes, cette « barrière » est éjectée dans la cellule et une série de doigts très fins apparaissent qui sont provoqués par le dépôt dans la cellule « d'éclats » de cette barrière initiale (éclats qui prennent la forme de petits grains sombres observables sur la Fig.6.4a). Dans le cas contraire du CTAB déplaçant le NaSal (Fig.6.4b), on observe la formation de quelques doigts larges, qui se développent en formant des canaux sinueux emplis de CTAB. Ces canaux sont séparés par des parois faites d'une sorte de gel qui reste figé dans la cellule. Lorsque l'on a ouvert la cellule pour la nettoyer après cette expérience, ce gel est apparu collant et élastique.

Nous avons étudié l'effet des concentrations et de la vitesse d'injection dans le cas du CTAB déplaçant le NaSal. Comme le montre la Fig.6.5, plus la concentration de CTAB augmente pour une concentration fixée de NaSal, plus la distorsion du front entre les fluides est importante et plus la longueur d'onde caractéristique du motif augmente. Une comparaison des Fig.6.5a et de la Fig.6.4b montre de plus qu'à même rapport de concentrations initiales  $\phi = 1$ , la longueur d'onde du motif est plus petite à  $[\text{CTAB}] = [\text{NaSal}] = 35$  mM (Fig.6.5a) plutôt que 50 mM (Fig.6.4b). Enfin, la comparaison de la Fig.6.4b et de la Fig.6.5b indique que pour une concentration en CTAB fixée à 50 mM, la longueur d'onde de l'instabilité diminue lorsque la concentration en NaSal diminue.

En comparant la Fig.6.6 et la Fig.6.4, on observe qu'en augmentant la vitesse de déplacement pour une concentration en CTAB et en NaSal fixée, les doigts sont plus larges. A haute vitesse un motif « régulier » apparaît, caractérisé par des doigts qui se « déroulent » parallèlement les uns aux autres (Fig.6.6).

Dans le cas du NaSal déplaçant le CTAB, peu importe le débit d'injection ou la concentration en réactif, nous avons toujours observé l'apparition de la « barrière » à l'interface entre les deux fluides qui finit par être expulsée dans la cellule et former une série de dépôts en amont de l'interface. Cette dynamique rend impossible la comparaison entre prédictions théoriques et expériences : en effet, il est impossible dans ce cadre de mettre en évidence

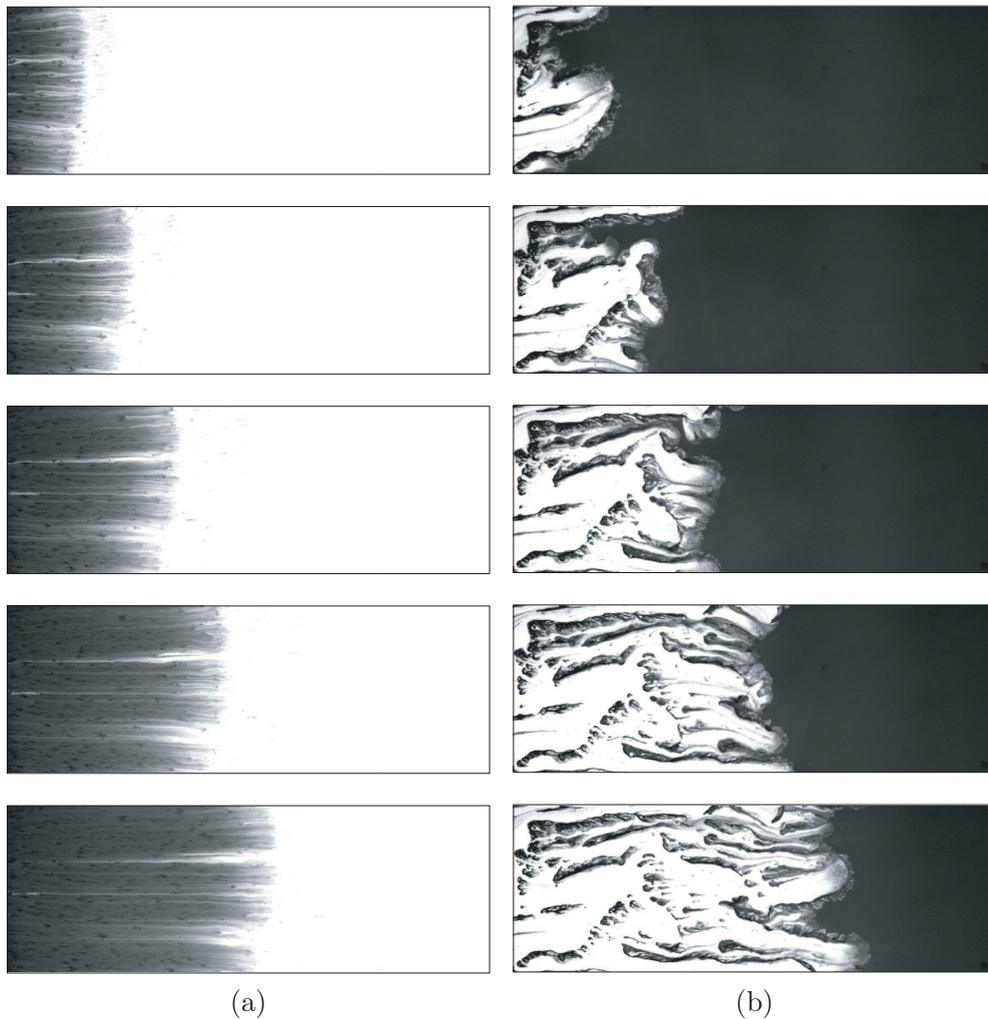


FIGURE 6.4 – Motifs obtenus dans le cas (a) du NaSal déplaçant le CTAB et (b) du CTAB déplaçant le NaSal à haut débit. Les concentrations sont 50 mM CTAB et 50 mM NaSal; le débit d'injection est fixé à 0.16 ml/s. Le temps entre chaque image est de 15 s. La taille réelle de l'image est de 100 mm sur 300 mm.

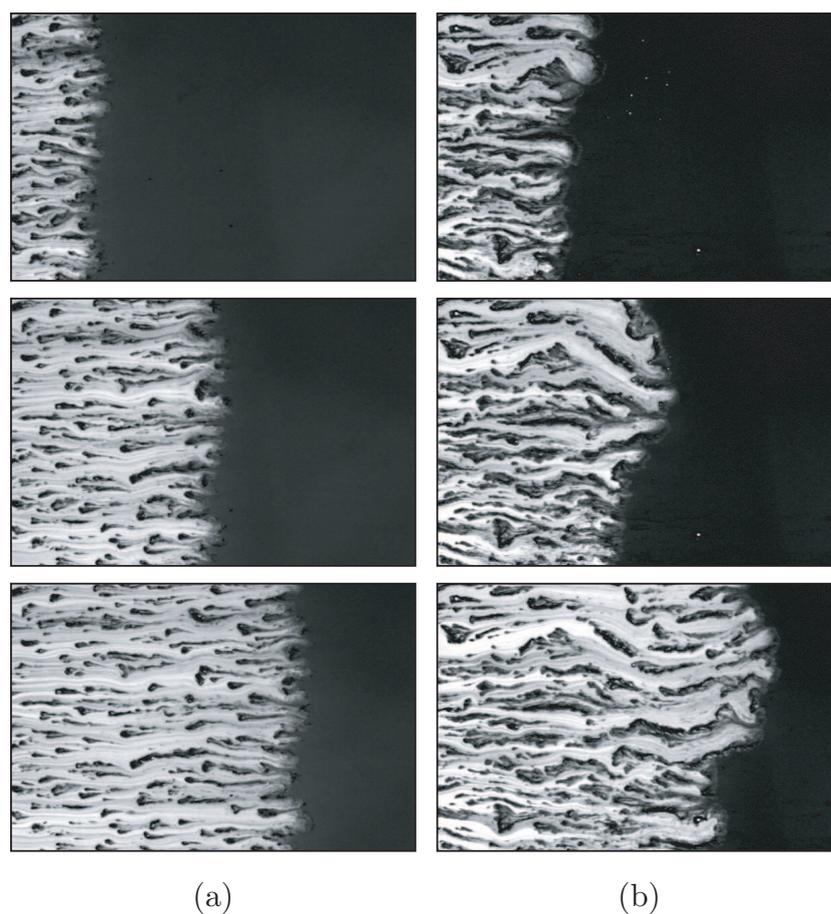


FIGURE 6.5 – Effet de la concentration en CTAB sur le motif pour une concentration en NaSal fixée à 35 mM, dans le cas où du CTAB pousse du NaSal à haut débit : (a)  $[CTAB] = 35$  mM et (b)  $[CTAB] = 50$  mM. Le débit d'injection est 0.16 ml/s. La taille réelle de l'image est 100 mm sur 150 mm. De haut en bas, les temps correspondants aux images sont 15, 30 et 45 s.

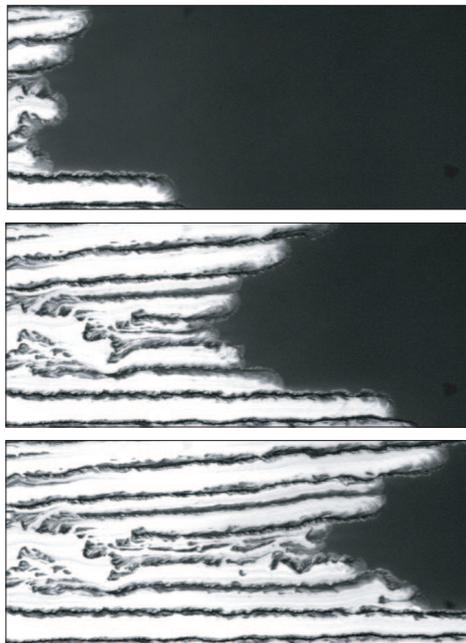


FIGURE 6.6 – Motifs obtenus à grand débit. Dans ce cas, les concentrations sont 50 mM CTAB et 50 mM NaSal, le débit d'injection est fixé à 0.4 ml/s. Le temps entre chaque image est 8 s. La taille réelle de l'image est 80 mm sur 180 mm.

un renversement du sens de la propagation du front de réaction-diffusion en faisant varier les concentrations d'un des deux réactifs. Nous avons donc dû trouver une solution afin d'éviter la formation de cette barrière : il nous a suffi de diminuer le débit d'injection.

### 6.3 Bas débits $Q < 0.05$ ml/s

Suite à des discussions menées avec Andrew Belmonte, nous avons en effet constaté qu'une diminution importante de la vitesse d'injection permettait d'éviter la formation de la barrière entre les fluides dans le cas du NaSal déplaçant le CTAB. En parallèle, la mise en évidence des effets du colorant sur la dynamique nous ont amené à vouloir diminuer au maximum la concentration en colorant. Nous avons donc acquis une seconde série de manipulations à plus bas débit (en utilisant la pompe péristaltique en lieu et place de la pompe à engrenage), colorée avec du bleu de Trypan.

Ainsi, la Fig. 6.7 est l'équivalent, à basse vitesse, de la Fig. 6.4 : les concentrations sont de 50 mM CTAB et 50 mM NaSal mais le débit est fixé à 0.03 ml/s. La Fig. 6.7a représente le cas où le NaSal envahit le CTAB. A haute vitesse (cfr. Fig. 6.4a), le gel qui se forme à l'interface dès la mise en contact des deux solutions est soudain « expulsé » dans la cellule. A plus basse vitesse, on observe que le gel se forme continûment à l'interface entre les deux solutions réactives et que des doigts se développent clairement. Progressivement, le développement de certains doigts inhibe celui des autres, les doigts se repoussant les uns les autres et une série de « canaux » apparaissent au milieu de zones où le gel semble rester immobile. A l'extrémité de ces canaux apparaissent des « inflorescences » d'où naissent une nouvelle série de doigts. Certains de ces doigts apparaissent initialement parallèles. Néanmoins, au fur et à mesure de leur développement, ils se repoussent mutuellement et se déforment.

La Fig. 6.7b représente le cas où le CTAB envahit le NaSal. A haute vitesse (Fig. 6.4b), on observait l'apparition de doigts larges qui s'avançaient en serpentant dans le NaSal. A basse vitesse (Fig. 6.7b), on observe l'apparition de structures plus complexes : le gel forme une série de poches emplies de CTAB. Ces poches rompent en plusieurs points et lorsque le CTAB envahit le NaSal, le gel créé reforme une nouvelle poche. Progressivement, bien en amont du front, les motifs dessinés par le gel sont emportés par le flux. Cependant, contrairement au cas où le NaSal envahit le CTAB, on ne constate pas l'apparition d'un « canal ».

Il apparaît donc que pour la gamme de débits accessibles pour la pompe péristaltique, la dynamique observée permet potentiellement une comparai-

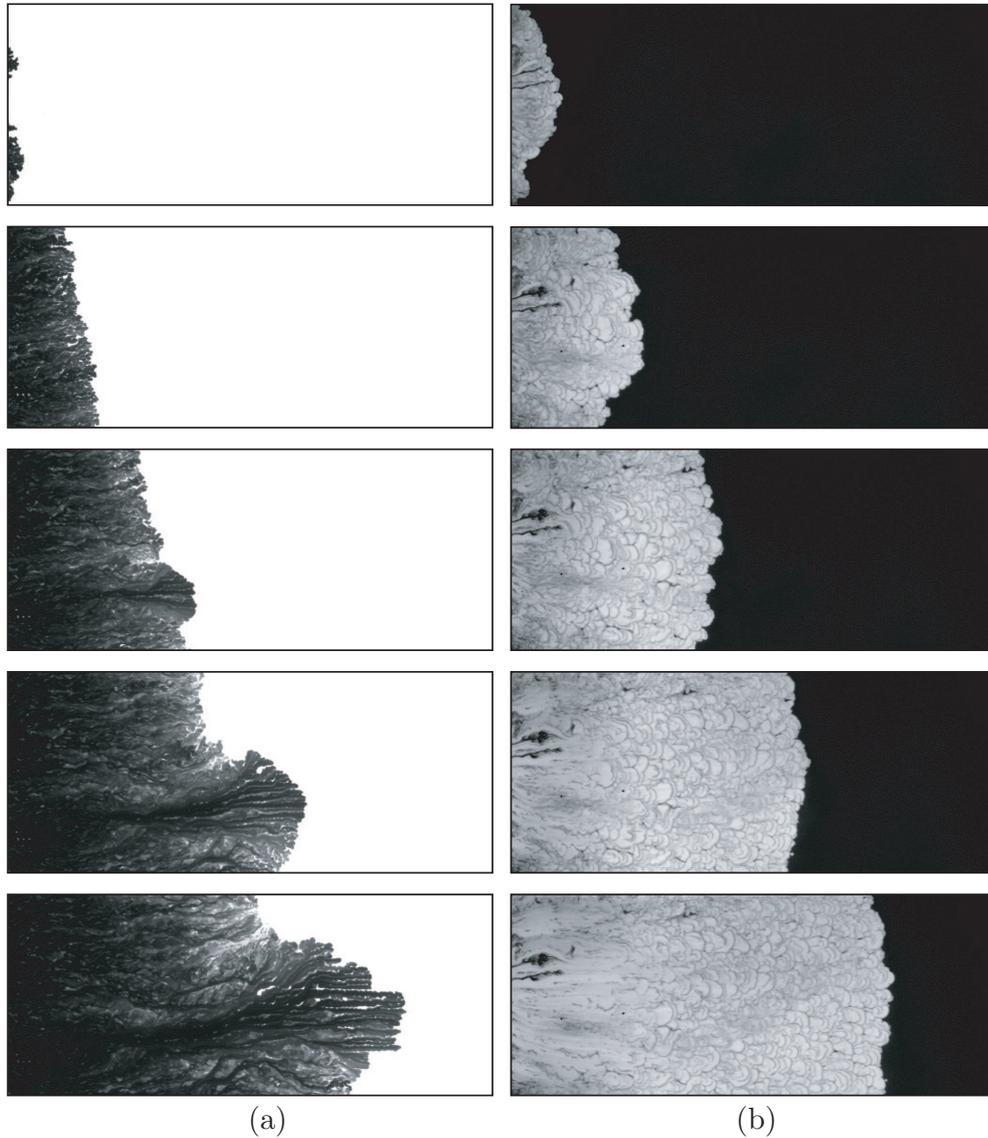


FIGURE 6.7 – Motifs obtenus à bas débit dans le cas (a) du NaSal déplaçant le CTAB et (b) du CTAB déplaçant le NaSal. Les concentrations sont 50 mM CTAB et 50 mM NaSal; le débit d'injection est fixé à 0.03 ml/s. Le temps entre chaque image est de 30 s. La taille réelle de l'image est de 100 mm sur 265 mm.

$Q$ [ml/s]	0.02,0.03,0.04
[CTAB][mM]	25, 30, 50
[NaSal][mM]	25, 30, 50, 65

TABLE 6.1 – Table des valeurs des paramètres de nos expériences à bas débit.

son avec les résultats théoriques et les travaux expérimentaux antérieurs. Nous avons donc fixé la gamme des débits entre 0.02 ml/s et 0.04 ml/s. Nous avons alors effectué une étude paramétrique du cas où la solution de CTAB déplace la solution de NaSal teintée pour les valeurs des paramètres reprises dans la table 6.1.

### 6.3.1 Effet du débit d'injection

Nous avons étudié l'effet du débit d'injection  $Q$  pour des concentrations en CTAB et en NaSal fixées et identiques ( $\phi = 1$ ). A titre d'exemple, la Fig.6.8 représente l'effet d'une variation du débit d'injection pour des concentrations fixées de 25 mM en CTAB et en NaSal.

On observe que dans le cas du débit plus faible ( $Q = 0.03$  ml/s, Fig.6.8a), bien que quelques poches apparaissent au tout début de l'expérience, rapidement des doigts fins prennent le dessus et croissent plus ou moins parallèlement les uns aux autres. De temps en temps, il arrive que ces doigts se subdivisent.

Dans le cas du débit plus important ( $Q = 0.04$  ml/s, Fig.6.8b), des poches contenant le CTAB et séparées les unes des autres par une sorte de membrane de gel se forment continûment tout au long de l'expérience.

Pour ces bas débits ( $Q < 0.05$  ml/s), *plus le débit est important, plus le motif est complexe*. Pour rappel, dans le cas des hauts débits, nous sommes arrivés à la conclusion inverse. Néanmoins, il faut noter que la largeur des doigts observés à bas débit est nettement inférieure à celle des doigts observés à haut débit : par exemple, celle des doigts observés sur la Fig.6.6 pour un débit  $Q = 0.4$  ml/s varie entre 5 et 15 mm, alors que celle des doigts observés sur la Fig.6.8a pour un débit  $Q = 0.03$  ml/s varie entre 0.2 et 2 mm.

### 6.3.2 Effet des variations de concentration avec $\phi = 1$

La Fig.6.9 représente l'effet d'une augmentation de concentrations identiques en NaSal et en CTAB ( $\phi = 1$ ) pour un débit fixé (en l'occurrence,  $Q = 0.04$  ml/s). La Fig.6.9a représente le cas [CTAB] = [NaSal] = 25mM et la Fig.6.9b le cas [CTAB] = [NaSal] = 50mM. Les Fig.6.7b et 6.8a permettent la même comparaison pour  $Q = 0.03$  ml/s. A ces débits, les poches

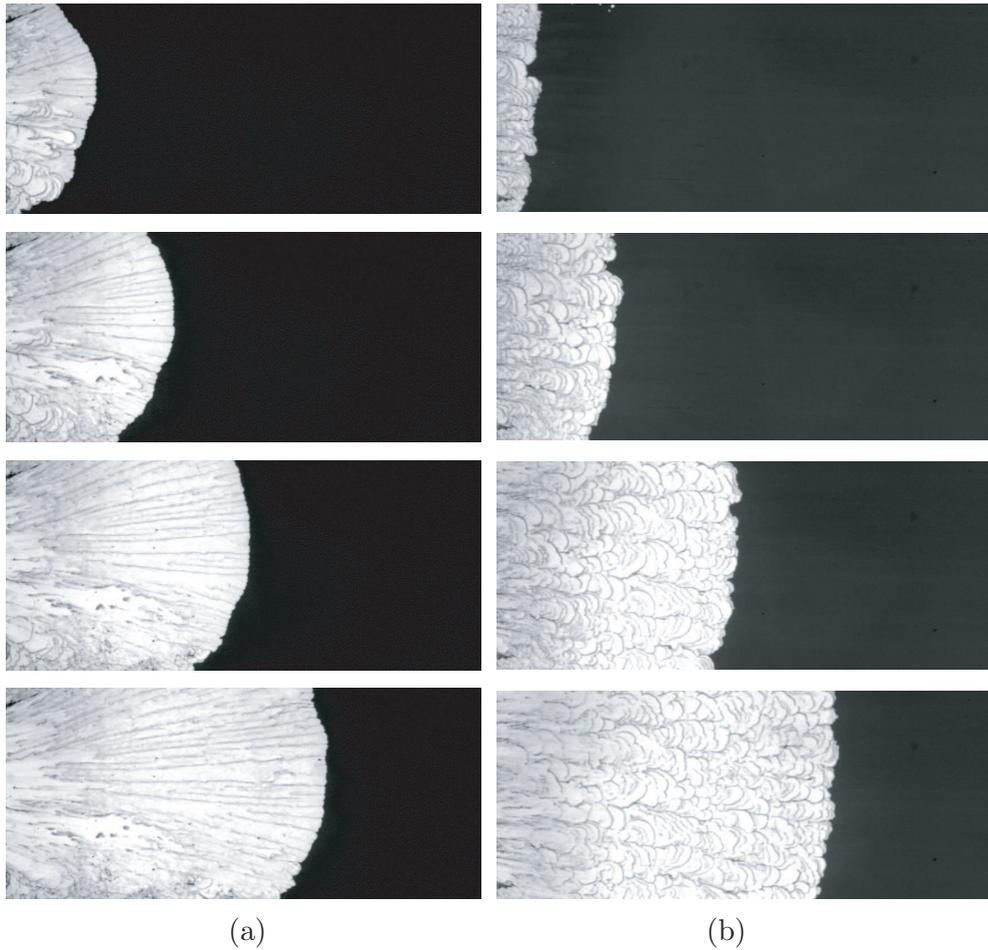


FIGURE 6.8 – Effet du débit d’injection  $Q$  pour des concentrations en CTAB et en NaSal fixées et identiques (25 mM) : (a)  $Q = 0.03$  ml/s et (b)  $Q = 0.04$  ml/s . Le temps entre chaque image est de 30 s. La taille réelle de l’image est de 100 mm sur 265 mm.

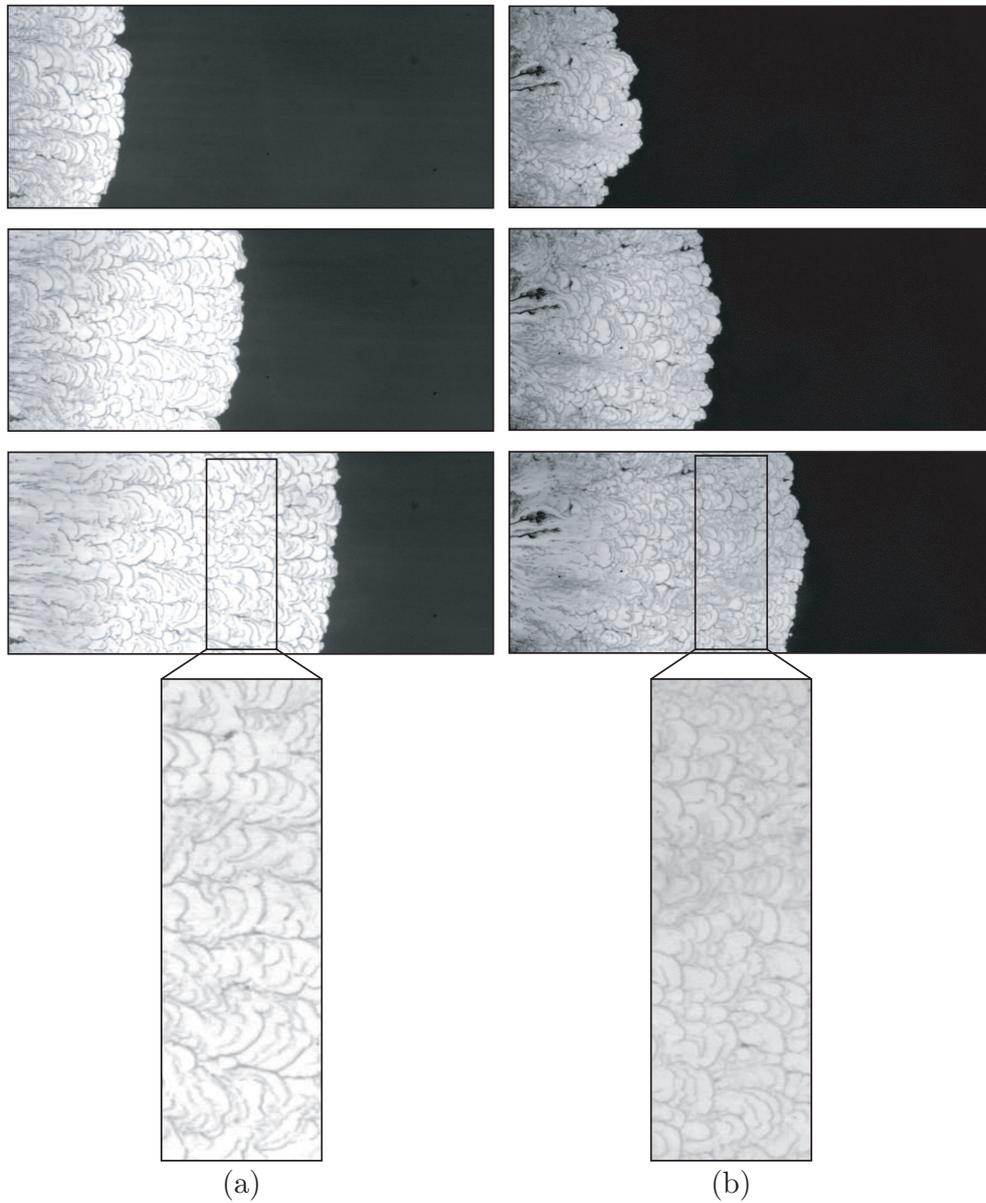


FIGURE 6.9 – Effet des variations de concentrations en CTAB et en NaSal identiques ( $\phi = 1$ ) pour un débit fixé  $Q = 0.04$  ml/s. (a)  $[\text{CTAB}] = [\text{NaSal}] = 25\text{mM}$  (b)  $[\text{CTAB}] = [\text{NaSal}] = 50\text{mM}$ . Le temps entre chaque image est de 30 s. La taille réelle de l'image est de 100 mm sur 265 mm. Un zoom a été effectué sur la zone indiquée sur la dernière image de chacune des deux séries.

de CTAB formée par l'apparition d'une membrane de gel apparaissent dans les deux cas. Dans le cas des concentrations fixées à 25 mM, on observe que les poches sont plus larges et qu'elles ne contiennent que du CTAB, raison pour laquelle leur contenu apparaît blanc comme sur la Fig.6.9a. Par contre, pour les concentrations plus importantes (50 mM), les poches sont petites et nombreuses. Elles apparaissent grisées, ce qui indique que dans ce cas-là, elles contiennent sans doute encore un peu de solution colorée de NaSal.

On observe donc que plus on augmente les concentrations absolues en NaSal et CTAB pour un rapport fixé  $\phi = 1$  et pour une vitesse donnée, plus le motif est complexe car plus de gel se forme. Cela correspond à ce que l'on avait observé pour les hauts débits.

### 6.3.3 Effet des variations de concentration lorsque $\phi \neq 1$

Notre objectif dans ce cadre est d'arriver à obtenir un motif similaire à celui du cas où du NaSal teinté déplace du CTAB (comme sur la Fig.6.7a) mais dans le cas où du CTAB déplace du NaSal et ce, en variant uniquement les concentrations en NaSal et en CTAB.

La Fig.6.10 montre l'évolution du motif formé par 25 mM de CTAB déplaçant 25 mM de NaSal (Fig.6.10a) et celle du motif formé par 25 mM de CTAB déplaçant 50 mM de NaSal (Fig.6.10b) pour un débit fixé de 0.03 ml/s. On observe que les motifs obtenus en inversant les concentrations en NaSal et en CTAB sont très différents. Pour 50 mM de CTAB et 25 mM de NaSal ( $\phi = 0.5$ ), une série de doigts fins parallèles se développent et on observe peu de structures transverses au sens du flux. Par contre, dans le cas de 25 mM de CTAB et 50 mM de NaSal ( $\phi = 2$ ), une série de structures transverses formant des méandres complexes apparaissent.

En augmentant la concentration en CTAB jusqu'à 60 mM tout en gardant la concentration de NaSal fixée à 25 mM (c'est-à-dire pour  $\phi = 0.4$ ) et le débit à 0.03 ml/s et en poussant la solution de NaSal teintée par la solution de CTAB, comme sur la Fig.6.11 on obtient un motif tout à fait différent : on observe l'apparition d'un nombre très important de petites cellules à l'arrière du front. Apparaissent également des « canaux » à l'issue desquels les doigts se développent préférentiellement. Cette dynamique est semblable à celle de la Fig.6.7a, qui correspondait au cas où 50 mM de NaSal poussait 50 mM de CTAB. Il semble donc qu'en variant les concentrations en NaSal et en CTAB, il est effectivement possible de passer d'un type de motif à un autre.

Le NaSal diffuse plus vite que le CTAB (Podgorski *et al.*, 2007) :  $D_m^{\text{NaSal}} > D_m^{\text{CTAB}}$ . Dès lors, dans le cas où le NaSal pousse le CTAB et pour une concen-

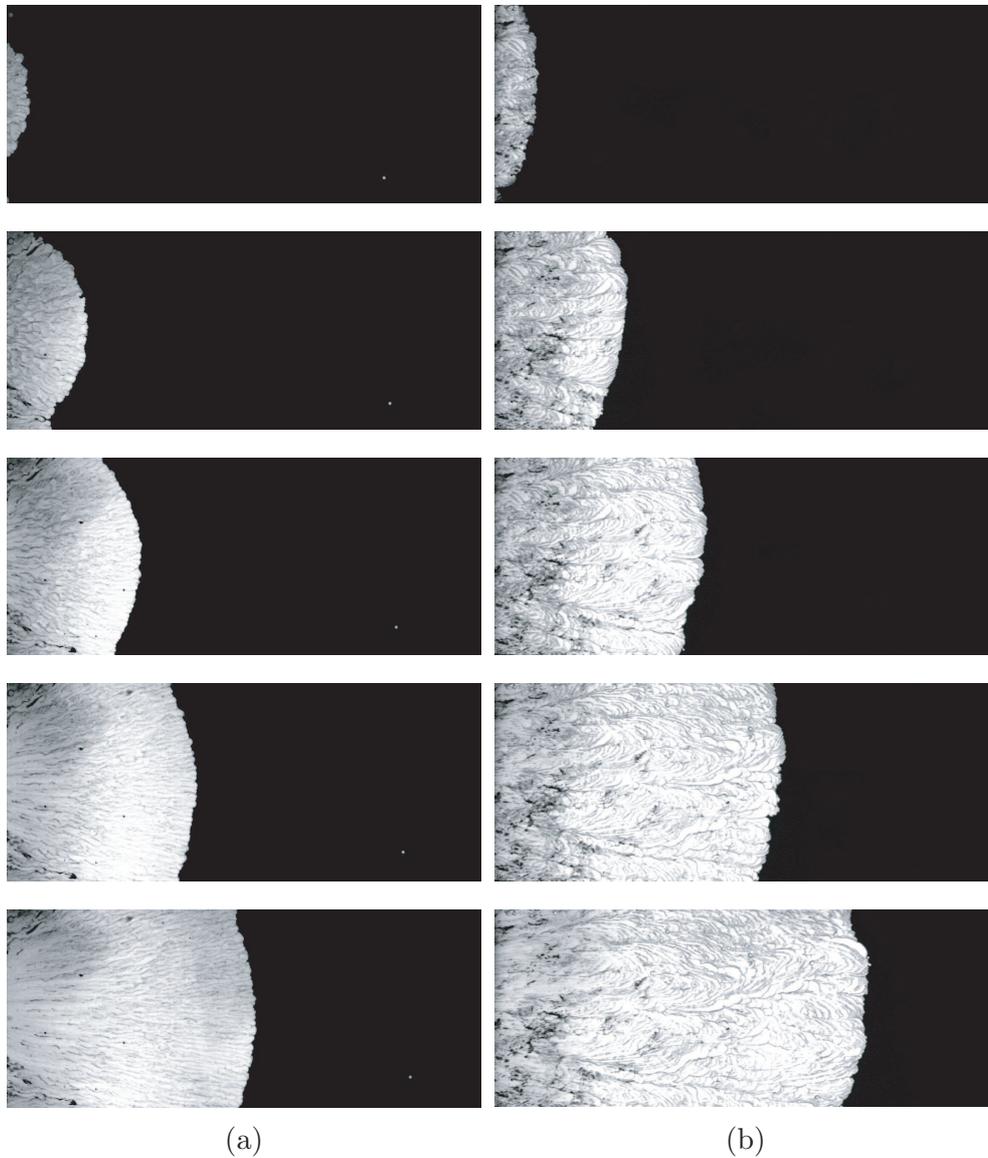


FIGURE 6.10 – Effet de la variation de la concentration en CTAB et en NaSal lorsque  $\phi \neq 1$ . Motifs obtenus (a) lorsque 50 mM CTAB déplace 25 mM NaSal ( $\phi = 0.5$ ) et (b) lorsque 25 mM CTAB déplace 50 mM NaSal ( $\phi = 2$ ) pour un débit fixé à 0.03 ml/s. Le temps entre chaque image est de 30 s. La taille réelle de l'image est de 100 mm sur 265 mm.

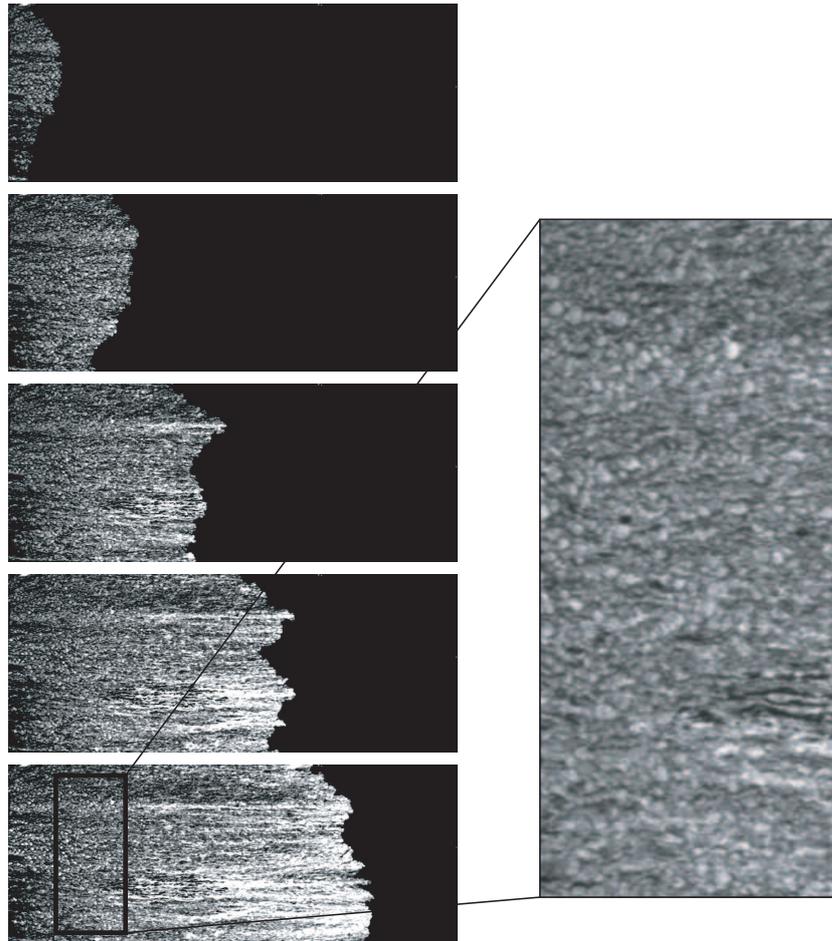


FIGURE 6.11 – Motifs obtenus lorsque 60 mM CTAB déplace 25 mM NaSal ( $\phi = 0.4$ ) pour un débit fixé à 0.03 ml/s. Le temps entre chaque image est de 20 s. La taille réelle de l'image est de 100 mm sur 265 mm. Un zoom est effectué sur la zone encadrée dans la dernière image : on y observe un très grand nombre de structures très fines.

tration initiale identique en CTAB et en NaSal ( $\phi = 1$ ), on a

$$\gamma = \frac{D_m^{\text{NaSal}}}{D_m^{\text{CTAB}}} > 1. \quad (6.3)$$

Dans le cas inverse où le CTAB pousse le NaSal et toujours pour  $\phi = 1$ , on a

$$\gamma = \frac{D_m^{\text{CTAB}}}{D_m^{\text{NaSal}}} < 1. \quad (6.4)$$

Dès lors, d'après [Gérard et De Wit \(2009\)](#), il est donc logique que les motifs diffèrent selon que le CTAB est injecté dans le NaSal ou que le NaSal est injecté dans le CTAB. En diminuant  $\phi$  dans ce cas où le CTAB pousse le NaSal de manière à obtenir une valeur de  $\gamma > 1$ , on peut s'attendre à obtenir un motif similaire au cas où le NaSal pousse le CTAB avec  $\phi = 1$ . C'est ce que nous constatons effectivement dans nos expériences.

## 6.4 Conclusions

Nous avons mené une étude paramétrique de la digitation visqueuse induite par une réaction  $A+B \rightarrow C$  telle que le produit  $C$  est plus visqueux que les réactifs  $A$  et  $B$  qui ont une même viscosité. En l'absence de la réaction, l'interface entre une solution de  $A$  et une solution de  $B$  serait visqueusement stable et évoluerait dans le temps sous l'effet de la dispersion uniquement. La réaction provoque ici la déstabilisation de l'interface par l'apparition du produit visqueux lorsque les solutions de réactifs sont mises en contact et déplacées dans la cellule. Nous avons choisi d'étudier la réaction précédemment considérée par [Podgorski \*et al.\* \(2007\)](#) : nous avons injecté dans la cellule des solutions de CTAB et de NaSal qui, une fois mises en contact, réagissent et forment un produit micellaire très visqueux.

Dans un premier temps, nous avons montré que le choix d'un colorant doit s'effectuer avec le plus grand soin : en effet, celui-ci peut modifier la viscosité des solutions de réactifs, ce qui affecte le motif de digitation obtenu. Nous avons ensuite étudié l'effet du choix du fluide vecteur, de la concentration en NaSal, de la concentration en CTAB et du débit d'injection sur le motif de digitation pour des hauts débits ( $Q > 0.1$  ml/s). La formation d'une barrière de gel dans le cas de l'injection de NaSal dans le CTAB qui finit par être éjectée dans la cellule empêche cependant la comparaison avec le cas où le CTAB pousse le NaSal. Nous avons donc diminué le débit d'injection ( $Q < 0.05$  ml/s). Nous avons montré dans ce cas l'effet d'une variation du débit et des concentrations en CTAB et en NaSal dans le cas où le rapport

des concentrations initiales  $\phi = 1$ . Dans le cas où  $\phi \neq 1$  et lorsque le CTAB déplace le NaSal, on observe qu'une variation de la concentration en NaSal permet d'obtenir une dynamique proche de celle obtenue dans le cas où le NaSal déplace le CTAB. Ceci suggère qu'en variant les concentrations relatives en NaSal et CTAB, il est effectivement possible de changer la nature des motifs de digitation induits par réaction comme le suggèrent [Gérard et De Wit \(2009\)](#).

---

## DISCUSSION ET PERSPECTIVES

---

L'objectif de notre thèse était l'étude expérimentale de la digitation visqueuse dans le cas d'échantillons de taille finie et de fluides réactifs déplacés dans un milieu poreux. En particulier, nous avons cherché à caractériser la contribution de la digitation à l'étalement dans l'espace d'échantillons de taille finie. Pour les fluides réactifs, nous avons étudié la digitation visqueuse induite par une réaction  $A + B \rightarrow C$  à l'interface entre une solution de  $A$  déplaçant une solution de  $B$  et dont le produit  $C$  est plus visqueux que les réactifs  $A$  et  $B$ , ceux-ci ayant le même viscosité.

Nous avons utilisé le dispositif expérimental décrit dans le chapitre 2, permettant d'étudier la digitation visqueuse dans plusieurs configurations différentes. Il s'agit d'une cellule de Hele-Shaw, qui peut être considérée comme l'analogie d'un milieu poreux bidimensionnel. Nous avons vérifié les conditions d'utilisation de notre dispositif pour lesquelles cette analogie tient. Nous avons montré le lien entre les images acquises par une caméra CCD pilotée par ordinateur et la concentration et décrit le post-traitement à appliquer aux données brutes enregistrées lors de chaque expérience. Nous avons de plus explicité les moyens de contrôle des paramètres expérimentaux (vitesse d'injection par les pompes, fluides injectés par la vanne d'injection). Enfin, nous avons décrit les différentes configurations que peut adopter notre dispositif et qui permettent d'étudier plusieurs problèmes différents.

Afin de déterminer la contribution de la digitation visqueuse à l'étalement d'échantillons de taille finie, il est nécessaire de caractériser dans un premier temps l'étalement d'échantillons en l'absence de la digitation, c'est-à-dire dans le cas stable où l'échantillon a la même viscosité que le fluide vecteur. Dans ce cas, l'échantillon s'étale sous l'effet de la dispersion dont l'étude fait l'objet du chapitre 3. La dispersion résulte du couplage entre diffusion moléculaire et transport par advection : l'étalement d'un scalaire passif (ici un colorant) au cours du temps peut alors se décrire mathématiquement comme un processus diffusif de type fickien mais le coefficient de diffusion effectif de ce transport est une fonction de la vitesse d'injection du fluide vecteur. Cepen-

nant, le régime dispersif n'est atteint qu'après un certain temps, dépendant de la géométrie du système considéré et de la vitesse d'advection. Nous avons étudié expérimentalement la dispersion dans notre cellule de Hele-Shaw en suivant l'étalement d'échantillons initialement circulaires d'eau colorée avec du rouge d'amarante déplacés par de l'eau non-colorée. Tout d'abord, pour une épaisseur de l'interstice entre les plaques de la cellule de Hele-Shaw fixée à  $e_z = 0.25$  mm, nous avons fait varier la vitesse d'injection du fluide vecteur. Nous avons mis en évidence que, dans le cas de vitesses faibles, l'échantillon s'étale bien selon un processus dispersif. Nous avons sur base de l'évolution temporelle de la largeur de l'échantillon, estimé la valeur du coefficient de diffusion moléculaire du colorant (rouge d'amarante). Ceci nous a permis de montrer que, sur les échelles de temps et de longueur de nos expériences, le régime dispersif n'est atteint que pour les vitesses faibles. A haute vitesse, l'étalement de l'échantillon observé dans nos expériences est donc essentiellement dû à l'advection. Sur base des profils de concentration obtenus pour un cas purement advectif et en tenant compte du seuil de détection en concentration, nous calculons l'évolution temporelle de la largeur de l'échantillon dans un cas purement advectif. L'agrément entre les données théoriques et les données issues de l'expérience est excellent. Nous avons ensuite proposé un modèle simple pour simuler l'évolution temporelle de l'échantillon au cours du temps dans le régime purement advectif en tenant compte du seuil de détection en concentration. Ce modèle permet d'expliquer quelques observations expérimentales. Nous avons ensuite étudié l'effet de la largeur initiale de l'échantillon sur l'évolution temporelle de l'élargissement de l'échantillon. Nous avons mis en évidence que lorsque le régime dispersif est atteint et pour un temps donné, plus l'échantillon est initialement large, plus l'étalement de l'échantillon est important. Enfin, nous avons montré expérimentalement que plus l'interstice entre les deux plaques est épais, plus il faut de temps pour atteindre le régime dispersif à une vitesse fixée. Nos travaux montrent donc l'utilité d'effectuer une étude de la dispersion dans un dispositif expérimental donné afin de pouvoir distinguer la contribution de la digitation visqueuse et celle de la dispersion à l'étalement d'échantillons fins. Dans les travaux expérimentaux futurs, il serait dès lors intéressant d'adopter systématiquement la même démarche pour caractériser un système expérimental donné et donc d'étudier l'étalement d'échantillons de même viscosité que le fluide vecteur avant de passer au cas d'échantillons de viscosité différente à celle du fluide vecteur. En particulier, cette étude devrait être menée afin de caractériser les systèmes expérimentaux tels que les colonnes utilisées par [Catchpole \*et al.\* \(2006\)](#); [Shalliker \*et al.\* \(2007a,b\)](#) et la cellule utilisée par [De Malsche \*et al.\* \(2009\)](#).

Nous avons ensuite mis en évidence dans le chapitre 4 que, même dans

le cas d'une cellule de Hele-Shaw placée horizontalement, l'interface entre deux fluides peut être déstabilisée par des effets dus à la différence de densité entre les deux fluides. En effet, le développement d'un profil de Poiseuille dans l'épaisseur de l'interstice entre les deux plaques de la cellule de Hele-Shaw peut mener localement à une stratification instable de densité dans la zone où un fluide plus dense se trouve au dessus d'un fluide moins dense dans le champ de gravité. Ceci se traduit par l'apparition de stries à l'interface entre deux fluides déplacés dans la cellule même dans le cas d'un déplacement stable d'un fluide moins visqueux par un fluide plus visqueux. Nous avons montré que le type et l'intensité des effets observés dépend de la vitesse d'injection, de la différence de densité et de l'épaisseur de la cellule. A basse vitesse et pour une différence de densité faible, on observe le développement d'un liseré qui est progressivement envahi par des stries qui apparaissent légèrement en amont de l'interface. Plus la différence de densité augmente, plus le liseré disparaît rapidement. Par ailleurs, si on augmente la vitesse d'injection, les stries deviennent plus fines. Nous avons mis en évidence les conditions expérimentales permettant de minimiser ces effets liés à la densité. Ces travaux pourraient être prolongés par une quantification plus pointue de ces effets (notamment en déterminant la longueur d'onde des stries, ce qui nécessite une augmentation très importante de la résolution des images acquises durant l'expérience) mais également par le développement d'un modèle théorique du problème adapté à notre géométrie.

Dans le chapitre 5, avons étudié expérimentalement la contribution de la digitation visqueuse à l'étalement d'échantillons de taille finie initialement circulaires, déplacés linéairement par un fluide moins visqueux dans la cellule de Hele-Shaw. Dans ce cas, l'interface arrière entre l'échantillon et le fluide vecteur est instable par rapport à la digitation visqueuse. Nous avons montré que le motif de digitation varie fortement en fonction du contraste de viscosités et de la vitesse d'injection du fluide vecteur : plus le rapport de viscosités ou la vitesse d'injection sont importants, plus le motif de digitation visqueuse est complexe et plus l'échantillon subit une déformation importante. Nous avons mis en évidence que pour un débit donné, lorsque le rapport de viscosité devient très important, un canal peut se former au sein de l'échantillon et il faut un temps conséquent avant que les restes de l'échantillon situés autour de ce canal soient éliminés de la cellule. Afin de quantifier l'importance de la déformation d'échantillons par la digitation visqueuse, nous avons étudié l'évolution temporelle de l'aire et du périmètre de surfaces d'isoconcentration. Nous avons sur cette base mis en évidence que l'apparition du tip-splitting augmente largement l'aire et le périmètre de l'échantillon. Nous avons également montré que pour un rapport de viscosités donné, plus on augmente la vitesse, moins l'échantillon s'étale dans la direction transverse

au flux. Afin d'éliminer le plus efficacement possible un échantillon d'un milieu poreux pour un rapport de viscosités fixé, on essaiera donc de trouver la plus haute vitesse permettant de ne pas avoir un tip-splitting intense. De plus, pour une vitesse d'injection donnée, l'aire et le périmètre de la zone d'isoconcentration correspondant à une concentration réduite de 0.2 pour un rapport de viscosités modéré atteignent des valeurs maximales supérieures à celles obtenues pour un rapport de viscosités très important. Dans l'avenir, il serait pertinent de poursuivre cette approche par l'étude du cas d'une évacuation linéaire des fluides, ce qui permettrait peut-être d'identifier les potentiels effets liés aux stress de Korteweg. Il serait également intéressant d'étudier le cas d'échantillons localisés de fluides réactifs afin de comprendre l'effet de la digitation induite par une réaction chimique sur l'étalement de l'échantillon. Un autre développement à nos travaux est l'étude de l'influence différences de températures initiales entre échantillon et fluide vecteur sur la dynamique de digitation visqueuse. En effet, comme la viscosité des solutions dépend de la température, ces variations de températures pourraient induire des modifications importantes du développement du motif de digitation.

Nos derniers travaux, qui font l'objet du sixième et dernier chapitre, ont consisté en l'étude de la digitation visqueuse induite par une réaction chimique  $A + B \rightarrow C$ . Dans un premier temps, nous avons montré que l'usage d'un colorant doit s'effectuer avec le plus grand soin : en effet, celui-ci peut modifier la viscosité des solutions de réactifs, ce qui affecte le motif de digitation obtenu. Nous avons ensuite étudié l'effet du choix du fluide vecteur, de la concentration en  $A$  et  $B$  et du débit d'injection sur le motif de digitation. La réaction provoque la déstabilisation de l'interface par l'apparition du produit visqueux lorsqu'une solution d'un réactif déplace l'autre. Nous avons choisi d'étudier la réaction précédemment considérée par [Podgorski et al. \(2007\)](#) entre du CTAB et du NaSal qui, une fois mis en contact, réagissent pour former un fluide micellaire très visqueux. A haut débit, la formation d'une barrière de gel dans le cas de l'injection de NaSal dans le CTAB qui finit par être éjectée dans la cellule empêche cependant la comparaison entre le cas où le NaSal pousse le CTAB et le cas où le CTAB pousse le NaSal. Nous avons donc diminué le débit d'injection. Nous avons montré l'effet d'une variation du débit et des concentrations en CTAB et en NaSal dans le cas où le rapport des concentration  $\phi = 1$ . Dans le cas où  $\phi \neq 1$  et lorsque le CTAB déplace le NaSal, on observe qu'une variation de la concentration en NaSal permet d'obtenir une dynamique proche de celle obtenue dans le cas où le NaSal déplace le CTAB. Ceci suggère qu'en variant les concentrations en NaSal et CTAB, il est effectivement possible de provoquer un changement de direction du front de réaction-diffusion comme le suggèrent [Gérard et De Wit \(2009\)](#). Ces travaux doivent être prolongés par une quantification

précise des effets mis en évidence dans notre étude paramétrique. Un autre cas d'intérêt est celui où l'on injecte un fluide contenant un réactif  $A$  plus visqueux dans un fluide contenant un réactif  $B$  moins visqueux qui, une fois mis en contact, forme un produit  $C$  plus visqueux que la solution de  $A$ . Dans ce cas également, l'interface visqueusement stable en l'absence de réaction est déstabilisée par la réaction chimique. L'étude d'un système de ce genre prolongera les travaux décrits dans le cadre du chapitre 6.

En conclusion, notre travail de thèse a fourni une des premières études expérimentales quantitatives de la digitation visqueuse d'échantillons de taille finie. Ceci a permis de mieux comprendre la contribution de cette instabilité à l'étalement dans l'espace de ces échantillons au cours du temps. Ces travaux ouvrent ainsi de nouvelles perspectives tant d'un point de vue fondamental que du point de vue d'applications industriellement et écologiquement importantes. Notre thèse a aussi permis de confirmer tout l'intérêt de la cellule de Hele-Shaw en tant que modèle de laboratoire simple et peu onéreux de milieu poreux bidimensionnel. Nos travaux constituent enfin la première étude expérimentale de la digitation visqueuse induite par une réaction chimique en systèmes miscibles dans le cas d'une injection linéaire. Ces résultats devraient permettre à l'avenir le développement d'études quantitatives de phénomènes de digitations en systèmes réactifs.

---

## BIBLIOGRAPHIE

---

- ALMARCHA, C., TREVELYAN, P.M.J., RIOLFO, L.A., ZALTS, A., EL HASI, C., D'ONOFRIO, A. et DE WIT, A. *Active role of a color indicator in buoyancy-driven instabilities of chemical fronts*. The Journal of Physical Chemistry Letters, 1(4) : p. 752–757, 2010.
- ARIS, R. *On the dispersion of solute in a fluid flowing through a tube*. Proceedings of the Royal Society of London. Serie A, Mathematical and Physical Sciences, 235 : p. 67–77, 1956.
- ARIS, R. *On the dispersion of a solute by diffusion, convection and exchange between phases*. Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences, 252 : p. 538–550, 1959.
- BACHMAT, Y. et ELRICK, D.E. *Hydrodynamic instability of miscible fluids in a vertical porous column*. Water Resources Research, 6 : p. 156–170, 1970.
- BACRI, J.C., SALIN, D. et WOUMENI, R. *Three-dimensional viscous fingering in porous media*. Physical Review Letters, 67 : p. 2005–2008, 1991.
- BACRI, J., RAKOTOMALALA, N., SALIN, D. et WOUMENI, R. *Miscible viscous fingering : Experiments versus continuum approach*. Physics of Fluids A : Fluid Dynamics, 4(8) : p. 1611–1619, 1992.
- BAE, J., BETA, C. et BODENSCHATZ, E. *Rapid switching of chemical signals in microfluidic devices : Supplementary notes on Taylor-Aris dispersion*. Lab on a Chip, 9 : p. 3059–3065, 2009.
- BASSINGTHWAIGHTE, J.B. et ALLEN HOLLOWAY JR., G. *Estimation of blood flow with radioactive tracers*. Seminars in Nuclear Medicine, 6(2) : p. 141 – 161, 1976. Blood Flow Part I.

- BATCHELOR, G.K. *Geoffrey Ingram Taylor*. Biographical Memoirs of Fellows of the Royal Society of London, 22 : p. 565–633, 1976.
- BAUER, D., GREBE, R. et EHRLACHER, A. *A three-layer continuous model of porous media to describe the first phase of skin irritation*. Journal of Theoretical Biology, 232(3) : p. 347–362, 2005.
- BENHAM, A.L. et OLSON, R.W. *A model study of viscous fingering*. Society of Petroleum Engineering Journal, 3 : p. 138–144, 1963.
- BROYLES, B., SHALLIKER, R., CHERRAK, D. et GUIOCHON, G. *Visualization of viscous fingering in chromatographic columns*. Journal of Chromatography, 822 : p. 173–187, 1998.
- CASTANY, G. *Principes et méthodes de l'hydrogéologie*. Dunod Université. Bordas, 1982.
- CATCHPOOLE, H.J., SHALLIKER, R.A., DENNIS, G.R. et GUIOCHON, G. *Visualising the onset of viscous fingering in chromatography columns*. Journal of Chromatography A, 1117 : p. 137–145, 2006.
- CHANDRASEKHAR, S. *Hydrodynamic and Hydromagnetic Stability*. Oxford University Press, 1961.
- CHATWIN, P.C. et SULLIVAN, P.J. *The effect of aspect ratio on longitudinal diffusivity in rectangular channels*. Journal of Fluid Mechanics Digital Archive, 120 : p. 347–358, 1982.
- CHEN, C.Y., WANG, L. et MEIBURG, E. *Miscible droplets in a porous medium and the effects of Korteweg stresses*. Physics of Fluids, 13(9) : p. 2447–2456, 2001.
- CRANK, J. *The Mathematics of Diffusion*. Oxford University Press, 2 édition, 1976.
- CUSSLER, E. *Diffusion. Mass transfer in Fluid Systems*. Cambridge University Press, 2 édition, 1997.
- DARCY, H. *Les fontaines publiques de la ville de Dijon : exposition et application des principes à suivre et des formules à employer dans les questions de distribution d'eau*. Victor Dalmont, 1856.
- DE MALSCHE, W., OP DE BEECK, J., GARDENIERS, H. et DESMET, G. *Visualization and quantification of the onset and the extent of viscous fingering in micro-pillar array columns*. Journal of Chromatography A, 1216(29) : p. 5511 – 5517, 2009.

- DE WIT, A. *Fingering of chemical fronts*. Thèse d'Agrégation de l'Enseignement supérieur, Université Libre de Bruxelles, Bruxelles, 2003.
- DE WIT, A., BERTHO, Y. et MARTIN, M. *Viscous fingering of miscible slices*. *Physics of Fluids*, 17 : p. 054114, 2005.
- DESMET, G. et BARON, G. *Chromatographic explanation for the side-wall induced band broadening in pressure-driven and shear-driven flows through channels with a high aspect-ratio rectangular cross-section*. *Journal of Chromatography A*, 946 : p. 51–58, 2002.
- DICKSON, M.L., NORTON, T. et FERNANDEZ, E. *Chemical imaging of multicomponent viscous fingering in chromatography*. *AIChE Journal*, 43 : p. 409–418, 1997.
- DORFMAN, K.D. et BRENNER, H. *Comment on "Taylor dispersion of a solute in a microfluidic channel" [j. appl. phys. [89], 4667 (2001)]*. *Journal of Applied Physics*, 90(12) : p. 6553–6554, 2001.
- DOSHI, M., DAIYA, P. et GILL, W. *Three dimensional laminar dispersion in open and closed rectangular conduits*. *Chemical Engineering Science*, 33 : p. 795–804, 1978.
- DOW CHEMICAL CO. *Viscosity and Density of Aqueous Glycerin Solutions Tables*, 2006.
- DUSHIN, V., NIKITIN, V., PHYLIPPOV, Y. et LEGROS, J. *Two-component fluid convective flow in thin gaps*. *Acta Astronautica*, 66(5-6) : p. 742 – 747, 2010.
- FELDER, C. *Transport d'une solution saline en cellule de Hele-Shaw : expériences et simulations numériques*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2003.
- FELDER, C., OLTEAN, C., PANFILOV, M. et BUÈS, M. *Dispersion de Taylor généralisée à un fluide à propriétés physiques variables*. *Comptes Rendus Mécanique*, 332(3) : p. 223–229, 2004.
- FERNANDEZ, E., NORTON, T., JUNG, W. et TSAVALAS, J. *A column design for reducing viscous fingering in size exclusion chromatography*. *Biotechnology Progress*, 12 : p. 480–487, 1996.
- FERNANDEZ, E.J., GROTEGUT, C.A., BRAUN, G.W., KIRSCHNER, K.J., STAUDAHER, J.R., DICKSON, M.L. et FERNANDEZ, V.L. *The effects of permeability heterogeneity on miscible viscous fingering : A three-dimensional*

- magnetic resonance imaging analysis*. *Physics of Fluids*, 7(3) : p. 468–477, 1995.
- FERNANDEZ, J., KUROWSKI, P., PETITJEANS, P. et MEIBURG, E. *Density-driven unstable flows of miscible fluids in a Hele-Shaw cell*. *Journal of Fluid Mechanics*, 451 : p. 239–260, 2002.
- GILL, W.N. et SANKARASUBRAMANIAN, R. *Exact analysis of unsteady convective diffusion*. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences.*, 316 : p. 341–350, 1970.
- GILL, W. *A note on the solution of transient dispersion problem*. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences.*, 298(21) : p. 335–339, 1967.
- GOLAY, M.J. *Theory of chromatography in open and coated tubular columns with round and rectangular cross-sections*. Dans D. Despy, rédacteur, *Gas Chromatography 1958 : Proceedings of the Second Symposium on Gas Chromatography 19–23 May 1958*, p. 36–55. Butterworths, 1958.
- GOYAL, N. et MEIBURG, E. *Unstable density stratification of miscible fluids in a vertical Hele-Shaw cell : Influence of variable viscosity on the linear stability*. *Journal of Fluid Mechanics*, 516 : p. 211–238, 2004.
- GRIFFITHS, A. *On the movement of a coloured index along a capillary tube, and its application to the measurement of the circulation of water in a closed circuit*. *Proceedings of the Physical Society of London*, 23(1) : p. 190–197, 1911.
- GUELL, D.C., COX, R.G. et BRENNER, H. *Taylor dispersion in conduits of large aspect ratio*. *Chemical Engineering Communications*, 58(1) : p. 231–244, 1987.
- GUYON, E., HULIN, J.P., PETIT, L. et MITESCU, C.D. *Physical hydrodynamics*. Oxford University Press, 2001.
- GÉRARD, T. et DE WIT, A. *Miscible viscous fingering induced by a simple  $A + B \rightarrow C$  chemical reaction*. *Physical Review E*, 79(1) : p. 016308–016318, 2009.
- HEJAZI, S.H., TREVELYAN, P.M.J., AZAIEZ, J. et DE WIT, A. *Viscous fingering of a miscible reactive  $A + B \rightarrow C$  interface : a linear stability analysis*. *Journal of Fluids Mechanics*, NA : p. NA, 2010.

- HELE-SHAW, H.S. *The flow of water*. Nature, 58 : p. 33–36, 1898.
- HILL, S. *Channeling in packed columns*. Chemical Engineering Science, 1 : p. 247–253, 1952.
- HOLM, L. *Miscibility and miscible displacement*. Journal of Petroleum Technology, 8 : p. 817–818, 1986.
- HOMSY, G.M. *Viscous fingering in porous media*. Annual Review of Fluid Mechanics, 19 : p. 271–311, 1987.
- HU, H.H. et JOSEPH, D.D. *Miscible displacement in a Hele-Shaw cell*. Zeitschrift für Angewandte Mathematik und Physik, 43(4) : p. 626–644, 1992.
- HUYGHE, J.M., OOMENS, C.W., VAN CAMPEN, D.H. et HEETHAAR, R.M. *Low Reynolds number steady state flow through a branching network of rigid vessels. I. A mixture theory*. Biorheology, 26(1) : p. 55–71, 1989.
- IFP. *Les réserves de pétrole. Où en est-on ?* Institut français du Pétrole, 2006.
- IGONIN, M. *Hydrodynamic instabilities of miscible and immiscible magnetic fluids in a Hele-Shaw cell*. Thèse de doctorat, Université Paris VII - Denis Diderot, 2004.
- JAHODA, M. et HORNOF, V. *Concentration profiles of reactant in a viscous finger formed during the interfacially reactive immiscible displacements in porous media*. Powder Technology, 110(3) : p. 253–257, 2000.
- JIAO, C.Y. et HÖTZL, H. *An experimental study of miscible displacements in porous media with variation of fluid density and viscosity*. Transport in Porous Media, 54 : p. 125–144, 2004.
- KIDDER, R.E. *Flow of immiscible fluids in porous media : Exact solution of a free boundary problem*. Journal of Applied Physics, 27 : p. 867, 1956.
- KRETZ, V., BEREST, P., HULIN, J.P. et SALIN, D. *An experimental study of the effects of density and viscosity contrasts on macrodispersion in porous media*. Water Resources Research, 39 : p. 1032–1038, 2003.
- LAJEUNESSE, E., MARTIN, J., RAKOTOMALALA, N., SALIN, D. et YORTSOS, Y. *Miscible displacement in a Hele-Shaw cell at high flow rates*. Journal of Fluid Mechanics, 398 : p. 299–319, 1999.

- LARBI BOUGUERRA, M. *Bataille planétaire pour l'or bleu*. Le Monde Diplomatique, 11 : p. 24–27, 1997.
- LINDNER, A. *L'instabilité de Saffman-Taylor dans les fluides complexes : relation entre les propriétés rhéologiques et la formation des motifs*. Thèse de doctorat, Université de Paris VI, Paris, 2000.
- MAES, R., ROUSSEAU, G., SCHEID, B., MISHRA, M., COLINET, P. et DE WIT, A. *Experimental study of dispersion and miscible viscous fingering of initially circular samples in Hele-Shaw cells*. Physics of Fluids, soumis pour publication, 2009.
- MAYET, F., PINOLI, J.C. et JOURLIN, M. *Justifications physiques et applications du modèle lip pour le traitement des images obtenues en lumière transmise*. Traitement du Signal, 13 : p. 252–262, 1996.
- MAYFIELD, K.J., SHALLIKER, A.R., CATCHPOOLE, H.J., SWEENEY, A.P., WONG, V. et GUIOCHON, G. *Viscous fingering induced flow instability in multidimensional liquid chromatography*. Journal of Chromatography A, 1080 : p. 124–131, 2005.
- MCDUGALL, S., ANDERSON, A., CHAPLAIN, M. et SHERRATT, J. *Mathematical modelling of flow through vascular networks : Implications for tumour-induced angiogenesis and chemotherapy strategies*. Bulletin of Mathematical Biology, 64(4) : p. 673–702, 2002.
- MILLER, J.M. *Chromatography, Concepts and Contrasts*. John Wiley & Sons, 2 édition, 2005.
- MISHRA, M., MARTIN, M. et DE WIT, A. *Miscible viscous fingering with linear adsorption on the porous matrix*. Physics of Fluids, 19(7) : p. 073101–9, 2007.
- MISHRA, M., MARTIN, M. et DE WIT, A. *Differences in miscible viscous fingering of finite width slices with positive or negative log-mobility ratio*. Phys. Rev. E, 78(6) : p. 066306, 2008.
- MISHRA, M., MARTIN, M. et DE WIT, A. *Influence of miscible viscous fingering of finite slices on an adsorbed solute dynamics*. Physics of Fluids, 21(8) : p. 083101–10, 2009.
- MUSKAT, M. et WYCKOFF, R. *An approximate theory of water coning in oil production*. AIME Transactions, 114 : p. 144–159, 1935.

- NAGATSU, Y., KONDO, Y., KATO, Y. et TADA, Y. *Effects of moderate Damköhler number on miscible viscous fingering involving viscosity decrease due to a chemical reaction.* Journal of Fluids Mechanics, 625 : p. 97, 2009a.
- NAGATSU, Y. et UEDA, T. *Effects of reactant concentrations on reactive miscible viscous fingering.* AIChE Journal, 47 : p. 1711–1720, 2001.
- NAGATSU, Y. et UEDA, T. *Effects of finger-growth velocity on reactive miscible viscous fingering.* AIChE Journal, 49 : p. 789–792, 2003.
- NAGATSU, Y. et UEDA, T. *Analytical study of effects of finger-growth velocity on reaction characteristics of reactive miscible viscous fingering by using a convection–diffusion–reaction model.* Chemical Engineering Science, 59 : p. 3871–3826, 2004.
- NAGATSU, Y., BAE, S.K., KATO, Y. et TADA, Y. *Miscible viscous fingering with a chemical reaction involving precipitation.* Physical Review E, 77(6) : p. 067302–067306, 2008.
- NAGATSU, Y., MATSUDA, K., KATO, Y. et TADA, Y. *Experimental study on miscible viscous fingering involving viscosity changes induced by variations in chemical species concentrations due to chemical reactions.* Journal of Fluid Mechanics, 571 : p. 475–493, 2007.
- NAGATSU, Y., OGAWA, T., KATO, Y. et TADA, Y. *Investigation of reacting flow fields in miscible viscous fingering by a novel experimental method.* AIChE Journal, 55(3) : p. 563–580, 2009b.
- NORTON, T. et FERNANDEZ, E. *Viscous fingering in size exclusion chromatography : insights from numerical simulation.* Industrial Engineering Chemistry Research, 35 : p. 2460, 1996.
- OLTEAN, C., FELDER, C., PANFILOV, M. et BUÈS, M.A. *Transport with a very low density contrast in Hele-Shaw and porous medium : evolution of the mixing zone.* Transport in Porous Media, 55 : p. 339–360, 2004.
- OLTEAN, C., GOLFIER, F. et BUÈS, M. *Experimental and numerical study of the validity of Hele-Shaw cell as analogue model for variable-density flow in homogeneous porous media.* Advances in Water Resources, 31(1) : p. 82 – 95, 2008.
- PAGITSAS, M., NADIM, A. et H., B. *Multiple time scale analysis of macrotransport processes.* Physica A : Statistical and Theoretical Physics, 135(2-3) : p. 533 – 550, 1986.

- PERKINS, T., JOHNSTON, O. et HOFFMAN, R. *Mechanics of viscous fingering in miscible systems*. Society of Petroleum Engineering Journal, 5 : p. 301–317, 1965.
- PETITJEANS, P., CHEN, C.Y., MEIBURG, E. et MAXWORTHY, T. *Miscible quarter five-spot displacements in a Hele-Shaw cell and the role of flow-induced dispersion*. Physics of Fluids, 11(7) : p. 1705–1716, 1999.
- PODGORSKI, T., SOSTARECZ, M.C., ZORMAN, S. et BELMONTE, A. *Fingering instabilities of a reactive micellar interface*. Physical Review E, 76(1) : p. 016202–016208, 2007.
- PORGES, F. *Gas and Water Coning*, p. 583–649. Gulf Professional Publishing, Burlington, 2006.
- RAYMOND, M. et LEFFLER, W.L. *Oil and gas production in nontechnical language*. PennWell, 2005.
- RIAZ, A. et MEIBURG, E. *Three-dimensional miscible displacement simulations in homogeneous porous media with gravity override*. Journal of Fluid Mechanics, 494 : p. 95–117, 2003.
- ROUSSEAU, G., DE WIT, A. et MARTIN, M. *Viscous fingering in packed chromatographic columns : Linear stability analysis*. Journal of Chromatography A, 1149(2) : p. 254–273, 2007.
- SAFFMAN, P. et TAYLOR, G.I. *The penetration of a fluid into a porous medium or Hele-Shaw containing a more viscous liquid*. Proceedings of the Royal Society A, 245 : p. 312–329, 1958a.
- SAFFMAN, P. *Viscous fingering in Hele-Shaw cells*. Journal of Fluid Mechanics, 1 : p. 73–94, 1986.
- SAFFMAN, P. et TAYLOR, G. *The penetration of a fluid into a porous medium or Hele-Shaw cell containing a more viscous liquid*. Proceedings of the Royal Society of London. Serie A, Mathematical and Physical Sciences, 245 : p. 312–329, 1958b.
- SCHINCARIOL, R.A. et SCHWARTZ, F. *An experimental investigation of variable density flow and mixing in homogeneous and heterogeneous media*. Water Resources Research, 26 : p. 2317–2329, 1990.
- SERRANO, S. *Propagation of nonlinear reactive contaminants in porous media*. Water Resources Research, 39 : p. 1228–1232, 2003.

- SHALLIKER, R.A., BROYLES, B.S. et GUIOCHON, G. *Visualization of solute migration in liquid chromatography columns*. Journal of Chromatography A, 826 : p. 1–13, 1998.
- SHALLIKER, R.A., CATCHPOOLE, H.J., DENNIS, G.R. et GUIOCHON, G. *Visualising viscous fingering in chromatography columns : High viscosity solute plug*. Journal of Chromatography A, 1142 : p. 48–55, 2007a.
- SHALLIKER, R.A. et GUIOCHON, G. *Understanding the importance of the viscosity contrast between the sample solvent plug and the mobile phase and its potential consequence in two-dimensional high-performance liquid chromatography*. Journal of Chromatography A, 1216 : p. 787–793, 2009.
- SHALLIKER, R.A., WONG, V. et GUIOCHON, G. *Reproducibility of the finger pattern in viscous fingering*. Journal of Chromatography A, 1161 : p. 121–131, 2007b.
- SLOBOD, R. et THOMAS, R. *Effect of transverse diffusion on fingering in miscible phase displacement*. Society of Petroleum Engineering Journal, 3 : p. 9–13, 1963.
- SMITH, R.M. *Gas and liquid chromatography in analytical chemistry*. John Wiley & Sons, 1988.
- TAN, C. et HOMSY, G. *Stability of miscible displacements in porous media : rectilinear flow*. Physics of Fluids, 29 : p. 3549–3556, 1986.
- TAN, C. et HOMSY, G. *Simulation of nonlinear viscous fingering in miscible displacement*. Physics of Fluids, 31(6) : p. 1330–1338, 1988.
- TARBÉ DE ST.-HARDOUIN, F.P.H. *Notices biographiques sur les ingénieurs des ponts et chaussées depuis la création du Corps, en 1716, jusqu'à nos jours*. Baudry et Cie, 1884.
- TAYLOR, G.I. *Dispersion of soluble matter in solvent flowing slowly through a tube*. Proceedings of the Royal Society of London. Serie A, Mathematical and Physical Sciences, 219 : p. 186–203, 1953.
- TAYLOR, G.I. *Conditions under which dispersion of a solute in a stream of solvent can be used to measure molecular diffusion*. Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences, 225(1163) : p. 473–477, 1954a.

- TAYLOR, G.I. *The dispersion of matter in turbulent flow through a pipe.* Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences, 223(1155) : p. 446–468, 1954b.
- TRITTON, D.J. *Physical fluid dynamics.* Oxford Science, 2 édition, 1988.
- VAN DEEMTER, J., F.J., Z. et KLINKENBERG, A. *Longitudinal diffusion and resistance to mass transfer as causes of nonideality in chromatography.* Chemical Engineering Science, 5(6) : p. 271–289, 1956.
- VEDERNIKOV, A., SCHEID, B., ISTASSE, E. et LEGROS, J.C. *Viscous fingering in miscible liquids under microgravity conditions.* Physics of Fluids, 13 : p. S12, 2001.
- WOODING, R.A. *Free convection of fluid in a vertical tube filled with porous material.* Fluids Mechanics, 13 : p. 129–144, 1962.
- WOODING, R.A. *Growth of fingers at an unstable diffusing interface in a porous medium or Hele-Shaw cell.* Journal of Fluid Mechanics, 39(03) : p. 477–495, 1969.