



HAL
open science

Franchissement d'interface et enrobage d'une sphère

Olivier Pitois, Pascal Moucheront

► **To cite this version:**

Olivier Pitois, Pascal Moucheront. Franchissement d'interface et enrobage d'une sphère. Comptes Rendus de l'Academie des Sciences Serie II, 1999, 10.1016/S1287-4620(99)80091-X . hal-01990822

HAL Id: hal-01990822

<https://hal.science/hal-01990822>

Submitted on 31 Jan 2019

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Franchissement d'interface et enrobage d'une sphère

Olivier PITOIS, Pascal MOUCHERONT, Claire WEILL

LMSGC, UMR 113 LCPC-CNRS, 2, allée Kepler, 77420 Champs-sur-Marne, France
E-mail : olivier.pitois@lcpc.fr

(Reçu le 18 novembre 1998, accepté le 11 janvier 1999)

Résumé. Le passage d'une sphère millimétrique à travers une interface liquide-liquide est étudié expérimentalement dans le cas où le liquide supérieur est très visqueux. Pour de faibles valeurs du nombre de Bond modifié β , le mouvement de la sphère peut être décomposé en deux phases : une phase lente de drainage du film de liquide supérieur piégé entre la sphère et l'interface et une phase rapide durant laquelle la sphère est reliée au liquide supérieur par un fil liquide. Le volume de liquide emporté par la sphère varie globalement comme $\ln \beta$ et la durée du franchissement varie comme $1/\ln \beta$. © Académie des sciences/Elsevier, Paris

interface liquide-liquide / sphère / enrobage

Interface breakthrough and sphere coating

Abstract. *The passage of a sphere through a liquid-liquid interface is studied experimentally in the particular case of a highly viscous upper liquid. For low values of the modified Bond number β the motion of the sphere consists of two distinct regimes: a slow draining stage of the upper liquid film trapped between the sphere and the interface, and a rapid one where a liquid tail bridges the sphere to the upper phase. It is found that the volume of liquid carried away by the sphere varies as $\ln \beta$ and that the time necessary for breakthrough varies as $1/\ln \beta$. © Académie des sciences/Elsevier, Paris*

liquid-liquid interface / sphere / coating

Abridged English Version

Experiments on granular packings constituted of solid spheres coated with a viscous binder led us to use a coating method called "liquid-liquid coating". In this method, the spheres are allowed to cross an interface formed between two immiscible liquids. We were interested in certain characteristics of the interface breakthrough, and especially in the volume of viscous liquid carried away with the sphere. Since only little work has been devoted to the breakthrough problem [5, 6] (most studies concerning the approach of a sphere to a deformable interface have focused on the coalescence problem [2–4]), we performed some experiments and gathered some interesting results on the interface breakthrough.

Note présentée par Pierre-Gilles de GENNES.

In the system studied, the upper liquid (liquid 2) is a PDMS oil ($\eta_2 = 10$ to 1 000 St), the lower one (liquid 1) is distilled water, and the spheres (S) are stainless steel or glass beads. Surface tension of the system can be adjusted in the range 13.8–38.8 mN·m⁻¹ by adding Sodium Dodecyl Sulfate salt (SDS) in water. Two kinds of experiments are performed:

- the volume of coating liquid carried away with the sphere is directly measured: beads are allowed to cross the interface in a glass tube containing a known quantity of PDMS oil, floating on the water surface; the amount of oil remaining after the passage of a hundred beads is then measured;
- the crossing of the sphere through the interface is filmed by means of a high-speed video camera. The resulting sequence of images is then analysed: various physical parameters describing the motion of the sphere and the deformation of the interface are extracted by means of image processing techniques.

Two typical stages of the interface crossing are presented in *figure 1*: the “draining stage” (*figure 1a*) of the liquid film trapped between the sphere and the interface, and the “tailing stage” (*figure 1b*).

Measurements of L/R as a function of time t/t^* (where L is the distance separating the centre of the sphere and the horizontal plane $z = 0$, and $t^* = 9\eta_2/2R(\rho_s - \rho_2)g$, where ρ refers to the density) are reported in *figure 2a* for two steel beads: $R = 1$ mm, and $R = 1.5$ mm. It can be seen that in the case $R = 1$ mm (the number $\beta = R^2(\rho_s - \rho_2)g/\sigma_{12}$ is equal to 1.8), the two previously described regimes are clearly identifiable on the corresponding curve. The first part of the curve refers to slow sphere motions and to a low deformation rate of the interface. In this regime the velocity of the sphere (U) is continuously decreased down to a minimum reached at $L/R \approx 3$ where $U = 0.1U_{St}$. The second regime and the sphere acceleration start from this point. Note that the sphere velocity is equal to the Stokes velocity at a distance $L/R \approx 4.5$ (in *figure 2a*, the slope of the curve is equal to 1 at this point). In the case $R = 1.5$ mm, the decomposition into two regimes is less clear. In fact, the sphere velocity increases continuously during the overall crossing (note that in this case $\beta = 4$). Since the deformation of the interface is induced by the sphere motion, it is interesting to calculate the ratios comparing viscous forces and buoyancy or surface tension forces: $Cg = \eta_2 U/R^2(\rho_1 - \rho_2)g$, and $Ca = \eta_2 U/\sigma_{12}$. The values of (Cg ; Ca) calculated at $L/R = 3$ are (5.23; 0.04) and (36.63; 0.59) for $R = 1$ and 1.5 mm, respectively. When comparing these values to those calculated when the sphere motion is not yet affected by the presence of the interface, one can observe that Ca is decreased by a factor of 10 in the case $R = 1$ mm, but remains almost unchanged in the case $R = 1.5$ mm. As a consequence of these low values for Ca and Cg , further deformation of the interface becomes difficult in the case $R = 1$ mm. In addition, the oil film situated in front of the sphere is efficiently drained away, as seen in *figure 2b*, where the thickness of this film (e) is plotted as a function of L/R . The final value of e/R is increased by about a factor 4 when passing from $R = 1$ mm to 1.5 mm. Note also that the “draining stage” and “tailing stage” are clearly identifiable in the case $R = 1$ mm. Another consequence concerns the time t_f necessary for breakthrough. As the rupture of the tail is generally not captured with the present visualisation device, an estimation of $\tau = t_f/t^*$ can be obtained by extrapolating the curves $L/R = f(t/t^*)$ on the time-axis (note that τ does not depend on oil viscosity). It appears that τ is increased by a factor of 3 when the radius of the sphere is decreased from 1.5 to 1 mm. The duration of the breakthrough τ is plotted as a function of β in *figure 3a* for steel beads. The results are reasonably described by a function $\tau = C/\ln \beta$, where C is a constant. Moreover, this function accounts for the divergence of τ when $\beta = 1$.

The results for the measurements of the volume of oil carried away by the sphere (V) are plotted as a function of β in *figure 3b*. Since no significant variation of V/V_s (where V_s is the volume of the sphere) was observed as the viscosity was varied from 10 to 1 000 St, only the results referring to the viscosity $\eta_2 = 100$ St are presented. It is seen in *figure 3b* that V/V_s is strongly increased in the

range of low values for β , and that the increase becomes weaker as β increases. These variations must be related to the results presented in *figure 3a*: the duration of the breakthrough (and also the duration of the "draining stage") is seriously decreased as β is increased in the range 2–4, but becomes almost unchanged as β increases. Furthermore, the variation of V/V_S is correctly described by a logarithmic function of β : $V/V_S = D \ln \beta$, where D is a constant. Consequently, the variation of V/V_S is found to be inversely proportional to τ .

1. Introduction

L'étude des milieux granulaires nécessite de faire appel à des systèmes modèles pour lesquels les lois de contact entre les grains peuvent s'exprimer de manière simple. Dans le cadre d'un travail expérimental sur des empilements de sphères millimétriques enrobées d'une couche de liquide visqueux [1], nous avons utilisé une méthode d'enrobage consistant à faire passer les sphères à travers une interface formée entre deux liquides non miscibles. Une sphère (particule solide, bulle de gaz ou gouttelette de liquide) approchant une interface liquide-liquide est une situation rencontrée dans de nombreux procédés industriels (extraction liquide-liquide par exemple). Pourtant, les études portant sur ce sujet se sont souvent focalisées sur le problème de la coalescence [2–4] (phase de drainage du film de liquide piégé entre la sphère et l'interface), mais peu de travaux ont concerné le franchissement d'interface dans son intégralité [5, 6]. Nous avons entrepris l'étude expérimentale de l'enrobage d'une sphère solide franchissant une interface liquide-liquide, dans le cas où le liquide supérieur est très visqueux (10–1 000 St). Nous nous sommes intéressés en particulier au temps de franchissement et au volume de liquide emporté par la sphère. Nous présentons le système étudié et les dispositifs d'expérience dans la section suivante. Les résultats sont présentés et analysés dans la section 3.

2. Expériences

Le système est constitué d'eau (liquide inférieur), d'huile PDMS (liquide supérieur) et de sphères d'acier ou de verre. Les masses volumiques sont respectivement $\rho_1 = 1\,000$, $\rho_2 = 971$, $\rho_S = 7\,800$ et $\rho_{S'} = 2\,500 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$. Les rayons des sphères d'acier utilisées sont de 1/1,18/1,25/1,39/1,5/1,75 et 2 mm. Ceux des billes de verre sont de 2 et 2,5 mm. Les huiles PDMS utilisées ont des viscosités η_2 comprises entre 10 et 1 000 St. La tension interfaciale du système σ_{12} peut être ajustée entre 13,8 et 38,8 $\text{mN}\cdot\text{m}^{-1}$ par adjonction dans l'eau de dodécyl sulfate de sodium (SDS). Deux types d'expériences sont réalisés.

(i) Mesure directe du volume emporté. – La mesure du volume d'huile emporté par une sphère après le franchissement de l'interface est réalisée de la manière suivante : dans un tube de verre (de diamètre 3 cm et de longueur 8 cm) partiellement plongé dans une coupelle contenant la solution aqueuse, on dépose une quantité connue d'huile. La coupelle se prolonge par une colonne de verre, puis par un récipient de stockage. Les billes sont enrobées dans le tube puis chutent dans la colonne. La hauteur d'huile dans le tube est initialement suffisamment importante pour que les billes déposées sur la surface de l'huile atteignent leur vitesse de Stokes en approchant l'interface. De même, la longueur de la colonne est suffisante pour permettre au fil de liquide reliant la sphère à l'interface (*figure 1b*) de se développer complètement. Une centaine de billes sont déposées, une à une, sur la surface d'huile. La quantité d'huile restant après le franchissement des billes est ensuite mesurée par pesée, permettant d'accéder au volume emporté par une bille.

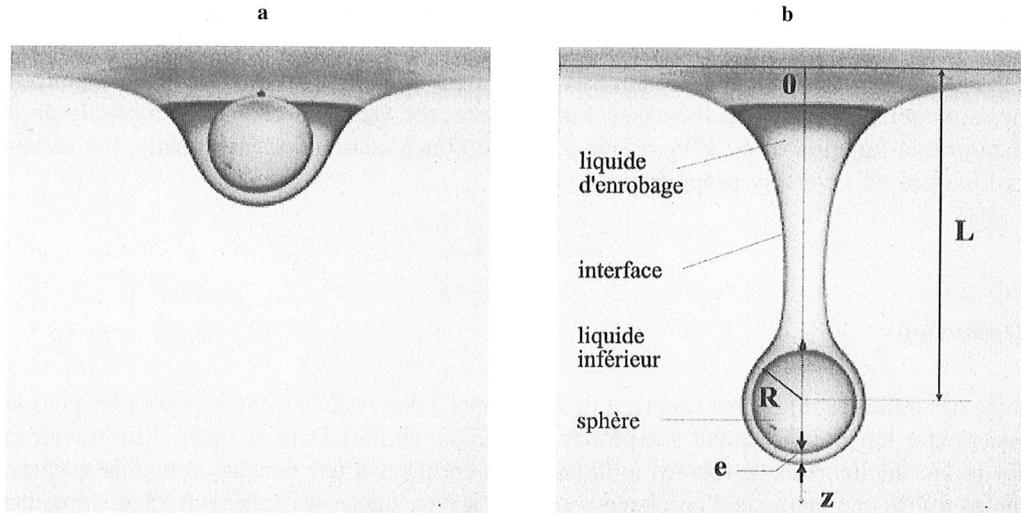


Figure 1. Clichés d'un franchissement d'interface. (a) Phase de drainage du film de liquide piégé entre la sphère et l'interface. (b) Phase d'élongation du fil de liquide reliant la sphère à la phase supérieure.

Figure 1. Pictures of interface breakthrough. (a) Draining stage of the liquid film trapped between the sphere and the interface. (b) Tailing stage.

(ii) Visualisation du franchissement. – Les interfaces sont formées dans une cuve parallélépipédique en verre ($5 \times 5 \times 25$ cm), en déposant une couche d'huile (de hauteur 3 cm) sur la surface du liquide inférieur (de hauteur 20 cm). Un tube de faible diamètre (5 mm) est fixé sur la partie supérieure de la cuve et permet de guider les billes vers le centre de l'interface. La cuve est placée entre une caméra rapide CCD (230 images par seconde) et un stroboscope. Cette grande vitesse d'acquisition permet de filmer avec suffisamment de précision le déplacement de la sphère pendant la phase finale du franchissement. À partir d'une séquence d'images enregistrées, on étudie l'évolution du système sphère/interface au cours du temps en extrayant sur chaque image plusieurs paramètres. En particulier, la distance L séparant le centre de la sphère de la position de l'interface initialement plane (plan $z = 0$) et l'épaisseur e du film de liquide situé entre la sphère et l'interface sont mesurées (figure 1b).

3. Résultats

Nous commençons par donner une description qualitative du passage d'une sphère à travers une interface. Cette description est en partie illustrée par les deux clichés présentés sur la figure 1. Lorsque la sphère a franchi le plan $z = 0$, l'interface est déjà fortement déformée et le liquide piégé entre la sphère et l'interface est continuellement drainé vers l'extérieur de cette zone (cette étape est la « phase de drainage » illustrée par le cliché 1a). Lorsque la sphère est davantage enfoncée dans le liquide inférieur, la couche d'enrobage est répartie de manière uniforme, excepté à l'arrière de la sphère où se développe un fil de liquide reliant la sphère au liquide supérieur (cette étape est la « phase d'élongation » illustrée par le cliché 1b). L'étape ultime du franchissement est la rupture du fil de liquide, initiée par l'apparition d'instabilités capillaires. Alors qu'une partie du liquide contenu dans le fil est emportée avec la sphère, une autre partie remonte vers l'interface sous forme de gouttelettes.

Un exemple de cinétique de franchissement $L/R = f(t/t^*)$ pour le système acier/PDMS/eau est présenté sur la figure 2a, pour deux valeurs du rayon : $R = 1$ mm et $R = 1,5$ mm. t^* représente le temps

nécessaire pour une sphère se déplaçant à sa vitesse de Stokes dans le liquide supérieur (U_{S2}) pour parcourir une distance égale à son rayon R , soit $t^* = 9\eta_2/2R(\rho_s - \rho_2)g$. Nous commençons d'abord le cas $R = 1$ mm. Pour cette valeur du rayon, le nombre comparant les forces relatives au poids de la sphère et les forces de tension de surface $\beta = R^2(\rho_s - \rho_2)g/\sigma_{12}$ vaut environ 1,8. La première partie de la courbe correspond à la phase de drainage représentée sur la *figure 1a*. Cette étape est associée aux faibles vitesses de déformation de l'interface, et c'est essentiellement elle qui fixe la durée totale du franchissement. La sphère est continuellement ralentie jusqu'à $L/R \approx 3$ (sa vitesse est alors $U \approx 0,1U_{S2}$) avant d'accélérer progressivement. Notons que durant cette première phase, la vitesse de la sphère reste inférieure à sa vitesse de Stokes dans le liquide supérieur. Dans le système de représentation adopté pour la *figure 2a*, la vitesse de la sphère est égale à U_{S2} lorsque la pente de la courbe est égale à 1, soit approximativement lorsque $L/R \approx 4,5$ pour les deux courbes (*figure 2a*). Lorsque le deuxième régime est atteint (deuxième partie de la courbe), la sphère est suspendue à la phase supérieure par un fil de liquide : c'est la vitesse d'élongation de ce fil qui fixe alors la vitesse de la sphère. Cette deuxième partie correspond à la situation illustrée sur le cliché *1b*. En ce qui concerne le cas $R = 1,5$ mm, la décomposition effectuée précédemment est beaucoup moins évidente. En fait, la sphère est continuellement accélérée durant tout le franchissement. Cela reflète la faible résistance de l'interface au mouvement de la sphère. Il est d'ailleurs intéressant de calculer les rapports des forces visqueuses (forces motrices de la déformation de l'interface) aux forces de pesanteur et de tension de surface (forces s'opposant à la déformation), soit respectivement : $Cg = \eta_2 U I R^2 (\rho_1 - \rho_2) g$ et $Ca = \eta_2 U / \sigma_{12}$ (les vitesses U sont évaluées en dérivant les courbes de la *figure 2a*). Les valeurs de $(Cg ; Ca)$ calculées à $L/R = 3$ sont (5,23 ; 0,04) pour $R = 1$ mm et (36,63 ; 0,59) pour $R = 1,5$ mm. En comparant ces rapports à ceux calculés lorsque le mouvement de la sphère n'est pas encore affecté par l'interface ($Cg^0 ; Ca^0$), on constate que Ca a chuté d'un facteur 10 pour $R = 1$ mm, mais reste du même ordre de grandeur pour $R = 1,5$ mm ($\beta = 4$). Cette forte baisse des valeurs de $(Cg ; Ca)$ dans le cas $R = 1$ mm influence nettement l'évolution du franchissement et les caractéristiques de l'enrobage. En particulier, la forte chute des forces visqueuses provoque le drainage efficace de la couche de liquide située entre la sphère et l'interface : cela apparaît clairement sur la *figure 2b*, où l'on constate que la quasi-totalité du drainage du liquide d'enrobage a lieu durant la première phase du franchissement et que, par la suite, la sphère se déplace dans un mouvement d'ensemble avec sa couronne d'enrobage. Une seconde conséquence du ralentissement de la bille est l'augmentation de la durée totale du franchissement t_f . Dans la mesure où la phase d'élongation du fil d'huile est généralement très courte devant la durée totale du franchissement, on peut estimer la durée adimensionnée du franchissement $\tau = t_f / t^*$ en extrapolant les courbes de la *figure 2a* sur l'axe des abscisses, juste avant la rupture du fil (que l'on ne parvient généralement pas à visualiser). Les durées de franchissement mesurées avec les billes d'acier sont reportées sur la *figure 3a*, en fonction de β . Les résultats sont raisonnablement décrits par la courbe $\tau = C / \ln \beta$, où C est une constante. Cette loi rend compte en particulier de la divergence de τ lorsque β tend vers 1. Les résultats relatifs aux mesures de volume emporté sont présentés sur la *figure 3b*. L'augmentation de la viscosité de l'huile n'ayant pas entraîné de variation significative du volume emporté par la sphère, nous n'avons reporté sur la *figure 3b* que les résultats obtenus pour $\eta_2 = 100$ St. Ces résultats montrent que V/V_S (où V_S est le volume de la sphère) augmente de manière importante pour les faibles valeurs de β ($V/V_S \propto \beta^2$), puis augmente moins rapidement pour les valeurs plus élevées de β ($V/V_S \propto \beta^{1/2}$). Ces résultats sont à comparer avec ceux de la figure précédente : la durée du franchissement (et donc essentiellement la durée de la phase de drainage) est raccourcie de manière très importante pour les faibles valeurs de β , puis n'évolue que très faiblement par la suite. De la même manière, le rapport Ca/Ca^0 (calculé pour la vitesse la plus faible de la sphère durant le franchissement) tend rapidement vers une valeur proche de 1, traduisant l'augmentation importante des forces visqueuses par rapport aux forces de tension de surface, puis

n'évolue pratiquement plus. Parallèlement à l'augmentation de β , les forces de poussée d'Archimède s'exerçant sur le volume de liquide d'enrobage déplacé sous le plan $z = 0$ contribuent de plus en plus efficacement au drainage, y compris dans les derniers instants du franchissement (voir le cas $R = 1,5$ mm sur la *figure 2b*). Il peut être intéressant de comparer nos résultats avec ceux obtenus pour le cas d'une fibre de section circulaire (de rayon R) tirée à vitesse constante d'un bain de liquide. Dans ce cas, on trouve (théoriquement [7] et expérimentalement [8]) que l'épaisseur d'enrobage e varie comme $RCa^{2/3}$. En prenant pour Ca les valeurs correspondant à l'approche de la sphère se déplaçant à sa vitesse de Stokes vers l'interface (soit $Ca = Ca^0 = 2\beta/9$), on trouve, pour la situation la plus proche (i.e. pour les grandes valeurs de Ca^0 , lorsque la sphère est peu freinée par l'interface), un exposant légèrement inférieur à $2/3$. Globalement, la variation de V/V_S est relativement bien décrite par une fonction logarithmique de β , soit $V/V_S = D \ln \beta$, où D est une constante. On en déduit que la variation de V/V_S est inversement proportionnelle à τ .

L'influence de la différence de densité entre les deux liquides n'a pas été étudiée ici dans la mesure où celle-ci varie peu dans le type de systèmes que nous utilisons habituellement pour réaliser nos enrobages (pour le système étudié ici, $\Delta\rho_{12} = 0,029$). Toutefois, des résultats obtenus avec un autre système semblent montrer que l'augmentation de $\Delta\rho_{12} = 0,029$ diminue la valeur de la constante D .

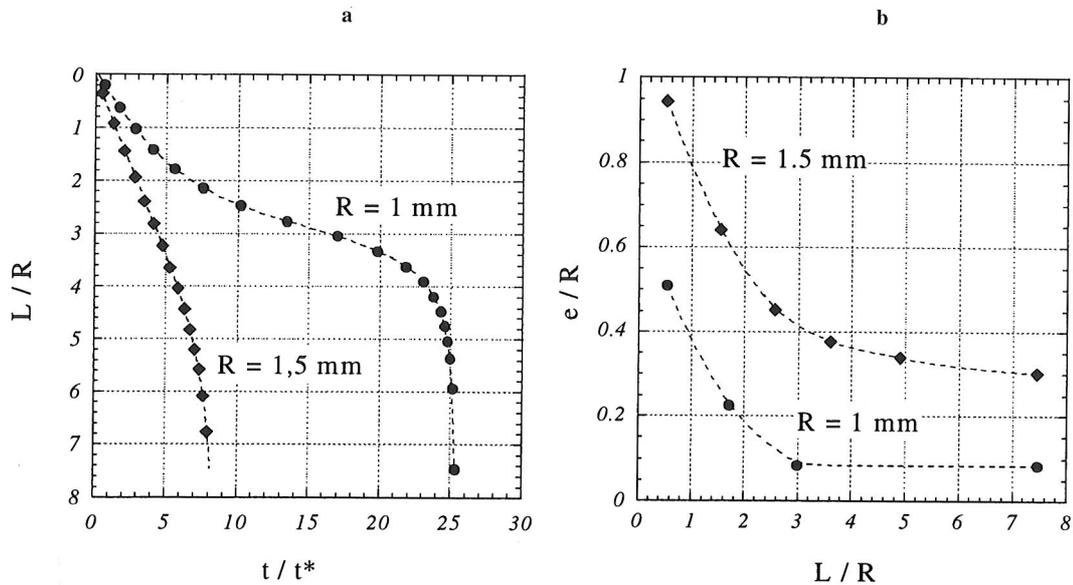


Figure 2. (a) Cinétique de franchissement de deux sphères de rayon $R = 1$ mm et $R = 1,5$ mm. (b) Épaisseurs e/R du film d'huile situé entre la sphère et l'interface en fonction de l'enfoncement de la sphère L/R .

Figure 2. (a) Motion of two spheres ($R = 1$ mm and $R = 1,5$ mm) as a function of time. (b) Thicknesses e/R of the film of liquid situated in front of the sphere as a function of the distance L/R .

4. Conclusion

Deux types d'expériences ont été réalisées pour visualiser le mouvement d'une sphère à travers une interface formée entre deux liquides non miscibles et pour mesurer le volume emporté par la sphère lors du franchissement. Les résultats montrent que le volume emporté (adimensionné par le volume de

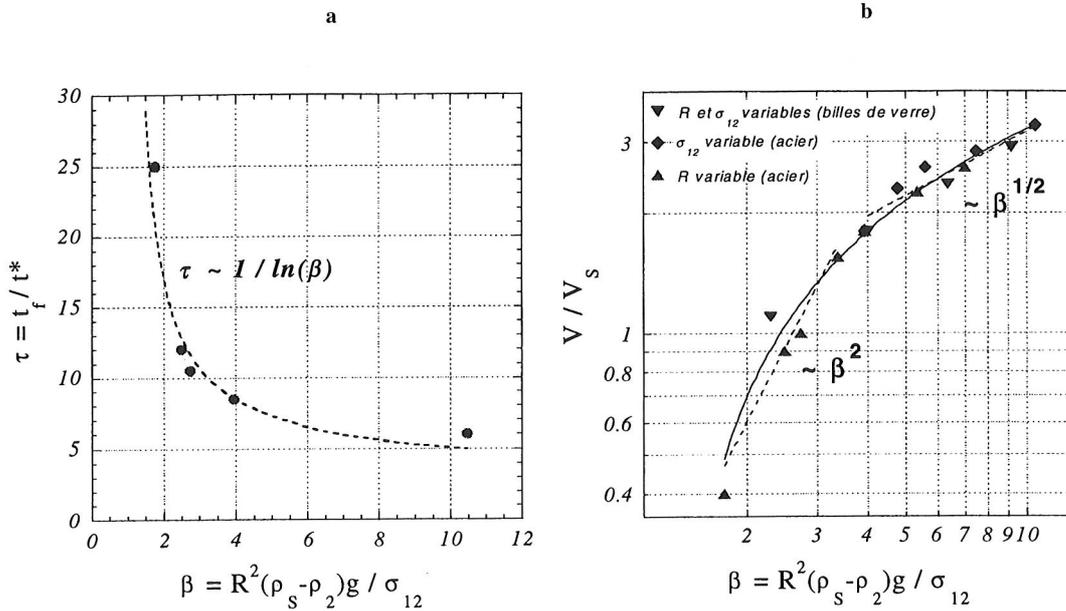


Figure 3. (a) Durée du franchissement en fonction de β . (b) Volume de liquide emporté en fonction de β .
 Figure 3. (a) Time necessary for breakthrough as a function of β . (b) Volume of upper liquid carried away by the sphere as a function β .

la sphère) varie proportionnellement au logarithme du nombre β , sur une gamme de valeurs décrivant aussi bien des situations où le mouvement de la sphère est très affecté par l'interface, que des situations où la sphère n'est plus ralentie par l'interface. La durée du franchissement (adimensionnée par le temps t^*) varie proportionnellement à l'inverse du logarithme de β . Ces résultats sont applicables aux systèmes pour lesquels la différence de densité des deux liquides est donnée et dont le rapport des viscosités η_2/η_1 est supérieur à 10^3 .

Références bibliographiques

- [1] Pitois O., Moucheront P., Weill C., Lubricated granular assemblies: a new experimental model system, in preparation.
- [2] Hartland S., The approach of a rigid sphere to a deformable liquid/liquid interface, *J. Colloid Interf. Sci.* 26 (1968) 383.
- [3] Jeffreys G.V., Davies G.A., in: Hanson C. (Ed.), *Recent Advances in Liquid/Liquid Extraction*, Pergamon Press, Oxford, 1971, p. 495.
- [4] Jones A.F., Wilson S.D.R., The film drainage problem in droplet coalescence, *J. Fluid. Mech.* 87 (1978) 263.
- [5] Maru H.C., Wasan D.T., Kintner R.C., Behavior of a rigid sphere at a liquid-liquid interface, *Chem. Eng. Sci.* 26 (1971) 1615.
- [6] Geller A.S., Lee S.H., Leal L.G., The creeping motion of a spherical particle normal to a deformable interface, *J. Fluid Mech.* 169 (1986) 27.
- [7] (a) Landau L., Levich B., *Actaphysicochim. USSR* 17 (1942) 42 ; (b) Deryaguin B., *Actaphysicochim. USSR* 20 (1943) 349.
- [8] De Ryck A., Quéré D., *J. Fluid Mech.* 311 (1996) 219.