

# Vibration de bulles en armure non sphériques.

M. Baudoin<sup>a</sup>, G. Prabhudesai<sup>a</sup>, F. Zoueshtiagh<sup>a</sup>, J. Jose<sup>a</sup>

a. Univ. Lille, CNRS, Centrale Lille, ISEN, Univ. Valenciennes, UMR 8520, International Laboratory LEMAC/LICS - IEMN, F-59000 Lille, France, michael.baudoin@univ-lille1.fr

## Résumé :

*Les bulles en armure sont des bulles recouvertes d'une monocouche de particules partiellement mouillantes. Ces bulles possèdent des propriétés fascinantes telles qu'une stabilité accrue vis à vis de leur dissolution ou une capacité à adopter des formes non sphériques. Dans ce papier nous étudions la dynamique de bulles en armure cylindriques excitées par des vibrations mécaniques. Une transition étape par étape d'une forme cylindrique à sphérique est observée lorsque l'intensité des vibrations est augmentée. Celle-ci s'accompagne d'une diminution de la surface de la bulle et donc de la dissémination des particules en excès dans le liquide environnant. Nous démontrons via un bilan énergétique qu'une bulle en armure non sphérique constitue un état métastable. La vibration instille l'énergie d'activation nécessaire pour que la bulle retourne vers son état de plus faible énergie à savoir une bulle en armure sphérique. A ce stade, les particules ne peuvent être éliminées de la surface que si l'énergie cinétique transmise aux particules dépasse les forces de rétention capillaire. Ainsi les bulles en armure non sphériques ouvrent des perspectives pour la dissémination ciblée de particules avec une puissance limitée d'excitation.*

## Abstract :

*Armoured bubbles are bubbles covered with a monolayer of partially wetting particles. These bubbles exhibit fascinating properties such as increased stability toward dissolution or the ability to sustain non-spherical shapes. In this paper, we study the dynamics of cylindrical armoured bubbles excited by mechanical vibrations. A step by step transition from cylindrical to spherical shape is reported as the intensity of the vibration is increased, leading to a reduction of the bubble surface and a dissemination of the excess particles. We demonstrate through energy balance that nonspherical armoured bubbles constitute a metastable state. The vibration instills the activation energy necessary for the bubble to return to its least energetic stable state : a spherical armoured bubble. At this point, particle desorption can only be achieved through higher amplitude of excitation required to overcome capillary retention forces. Nonspherical armoured bubbles open perspectives for tailored localized particle dissemination with limited excitation power.*

**Mots clefs : Bulles en armure - Vibration - Délivrance ciblée de particules**

## 1 Introduction

Les bulles en armures (des bulles couvertes par une monocouche de particules partiellement mouillantes) possèdent des propriétés fascinantes telles qu'une stabilité accrue vis à vis de leur dissolution [1, 2] ou

leur capacité à conserver des formes non sphériques [3]. Ces bulles peuvent être produites en masse par des techniques d'émulsification de volume [4, 5, 6] ou par l'injection de bulles dans des suspensions de particules [7]. Plus récemment, des techniques microfluidiques ont été développées pour fabriquer des bulles en armure calibrées avec des formes et des tailles contrôlées [8, 9, 10, 11]. En parallèle, beaucoup d'études ont été consacrées à la caractérisation des propriétés spécifiques de ces bulles, comme leur durée de vie [1, 2], leur stabilité en présence de surfactant [12] ou leur résistance à des surpression élevées [13].

De manière surprenante, beaucoup moins d'efforts ont été consacrée à l'étude des propriétés de vibration de ces bulles particulières [14, 15] alors que les bulles sont connues pour être des oscillateurs exceptionnels avec des facteurs de qualité très importants [16, 17, 18, 19, 20]. Récemment Poulichet et al. [14, 15] ont étudié la vibration de bulles en armures sphériques excitées par des ondes acoustiques. Ils ont montré qu'en faisant vibrer les bulles au dessus d'un certain seuil, il était possible de vaincre les forces de rétention capillaire et donc de disséminer dans le liquide les particules piégées à la surface de la bulle.

Au cours de cette présentation, nous présenterons des résultats expérimentaux sur la réponse de bulles *non sphériques* soumises à des vibrations mécaniques (accélération périodique verticale) [21]. En outre, nous montrerons via un bilan énergétique que les bulles non sphériques constituent un état métastable et que les vibrations mécaniques permettent de fournir l'énergie d'activation nécessaire pour que les bulles retournent à leur état de plus faible énergie, à savoir une bulle en armure sphérique. Cette transition se fait via la dispersion des particules en excès dans le liquide.

## 2 Dispositif expérimental

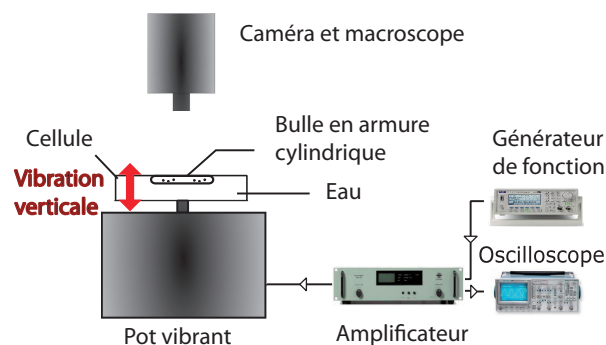


FIGURE 1 – Schéma du dispositif expérimental

Des bulles en armure cylindrique de rayon  $R_c = 0.49 \pm 0.01$  mm et de longueur  $L_c = 8.5 \pm 0.5$  mm sont produites via une méthode introduite dans la référence [10]. Premièrement des tubes en verre de rayon  $R_t = 501 \mu\text{m}$  sont nettoyés successivement dans de l'acétone et de l'alcool. Puis les tubes sont traités au Piranha pour supprimer les résidus organiques des parois. Enfin les tubes sont séchés avant utilisation. Deuxièmement, des particules de Rilsan (Polyamide 11) de rayon  $R_p = 15 \pm 1 \mu\text{m}$  sont soufflées dans le tube pour les distribuer de manière homogène sur les parois du tube. Troisièmement, un doigt de liquide est poussé à débit constant ( $Q = 0.2$  ml/h) dans le tube à l'aide d'un pousse seringue, aboutissant à la formation de bulles en armure cylindriques via le process décrit dans l'article [10]. Enfin les bulles sont extraites du tube et transférée dans une cellule en plexiglas de hauteur 20 mm, longueur 75 mm et largeur 55 mm rempli avec de l'eau désionisée, en appliquant un débit plus élevé  $Q = 5$  ml/h.

Les bulles sont coupées à la longueur souhaitée en déplaçant le tube sur le côté.

Ensuite, la cellule est vibrée verticalement avec un pot vibrant Bruel & Kjaer 4809 excité par un générateur de fonction Voltcraft FG 250D dont le signal est amplifié par un amplificateur Bruel & Kjaer 2718. L'amplitude des oscillations  $A$  est mesurée à l'aide d'un accéléromètre IEPE Deltatron type 4519-002. L'évolution de la forme de la bulle est filmée à l'aide d'une caméra Hamamatsu C9300, et la dynamique rapide de la bulle à l'aide d'une caméra Photron SA3. Enfin, les images sont traitées à l'aide du logiciel ImageJ. L'évolution de la forme de la bulle est quantifiée par l'indicateur de sphéricité  $R_o = 4S/\pi L_m^2$ , où  $S$  désigne la surface apparente de la bulle (surface occupée par la bulle sur l'image 2D) et  $L_m$  désigne la longueur de l'axe principal de la bulle. Bien sûr, on a  $R_o = 1$  pour une bulle sphérique.

### 3 Résultats expérimentaux

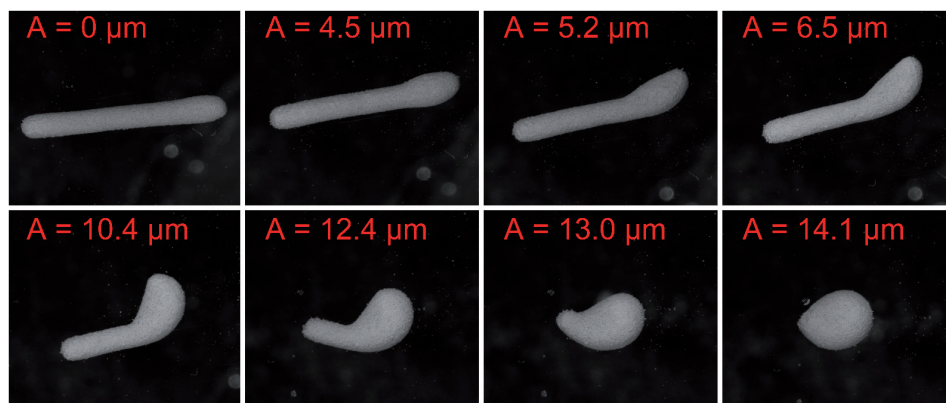


FIGURE 2 – Evolution d'une bulle cylindrique de longueur initiale  $L_c = 8.5$  mm and de rayon  $R_c = 0.5$  mm vibrée verticalement à une fréquence d'excitation  $f_e = 4$  kHz et une amplitude  $A$  indiquée sur chaque image. Chaque image est capturée après 2 minutes d'excitation.

La vibration verticale de la bulle at une amplitude fixée  $A$  ( $0.1 \mu\text{m} < A < 50 \mu\text{m}$ ) et une fréquence  $f_e$  ( $0.5\text{kHz} < f_e < 4\text{kHz}$ ) aboutit à une évolution isovolume de la forme de la bulle via une réduction de sa surface et la libération des particules en excès dans le liquide. Lorsque le pot vibrant est mis en marche, la forme de la bulle évolue dans un premier temps assez rapidement, puis se stabilise en une géométrie qui dépend de l'amplitude d'excitation  $A$  et de la fréquence d'excitation  $f_e$ . Plus l'amplitude d'excitation augmente, plus la forme de la bulle devient sphérique (cf figure 2), jusqu'à ce que la bulle adopte une forme parfaitement sphérique.

L'amplitude critique de vibration  $A_c$  nécessaire pour que la bulle transite de sa forme initiale à une forme cylindrique est très dépendante de la fréquence d'excitation (cf figure 3). En effet les bulles sont des systèmes masse ressort dont le ressort provient de de la dilatation et de l'expansion du gaz de la bulle et des effets de tension superficielle et dont la masse provient de celle du liquide. A l'aide de cette considération très simple, on peut prouver que la fréquence de résonance d'une bulle sphérique, appelée fréquence de Minnaert [17] s'écrit  $f_M = \frac{2\pi}{R_s} \sqrt{\frac{3}{\chi_g \rho_l} - \frac{2\gamma_{GL}}{\rho_l R_s}}$ , avec  $R_s$  le rayon d'une bulle,  $\chi_g$  la compressibilité du gaz,  $\rho_l$  la densité du liquide et  $\gamma_{GL}$  la tension superficielle. Pour une bulle d'air entourée par de l'eau, cela donne (si l'on néglige la tension superficielle) :  $f_M \approx 3.26 \times R_s^{-1}$  avec  $R_s = (3/4\pi V)^{1/3}$ , c'est à dire pour les bulles considérées dans ce papier une fréquence  $f_M \approx 2.8 \pm 0.1$  kHz. Nous observons en effet sur la figure 3 que l'amplitude d'excitation nécessaire pour que la bulle transite

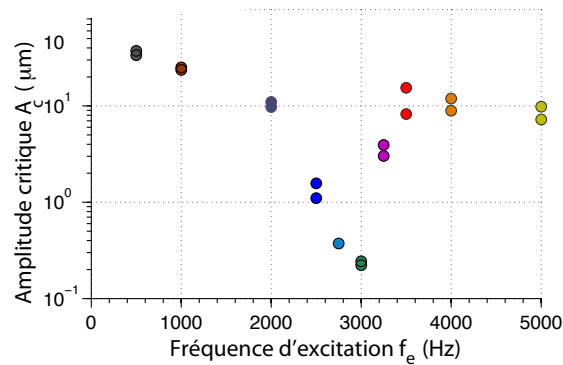


FIGURE 3 – Amplitude d’excitation critique nécessaire pour que la sphéricité de la bulle en armure  $R_o$  atteigne 0.4 en fonction de la fréquence d’excitation  $f_e$ .

d’une forme cylindrique à sphérique est beaucoup plus faible proche de cette fréquence de résonance. Cela souligne un lien très fort entre la vibration de la surface de la bulle et l’évolution de sa forme.

## 4 Discussion : les bulles en armure non sphériques, un état métastable

On peut calculer assez simplement l’énergie nécessaire  $\Delta E$  pour transiter d’une bulle en armure non sphérique à une bulle en armure sphérique, via la libération des particules en excès dans le liquide :

$$\Delta E = -N \times \gamma_{GL} \pi R_p^2 \left[ \frac{1}{\phi} - (1 - \cos \theta_p)^2 \right] \quad (1)$$

avec  $N$  le nombre de particules relâchées dans le liquide,  $\gamma_{GL}$  la tension superficielle,  $R_p$  le rayon des particules, et  $\theta_p$  l’angle de contact gaz-liquide-particule et  $\phi$  la surface spécifique, c’est à dire la fraction de l’interface gaz-liquide que couvrent les particules due à leur forme et leur arrangement. Etant donné que  $0 \leq (1 - \cos \theta_p)^2 \leq 1$  (pour des particules hydrophiles) et que  $1/\phi > 1$ , cette énergie est négative indiquant qu’une bulle non sphérique n’est pas un minimum d’énergie mais un état métastable. La forme cylindrique d’une bulle en armure est donc maintenue par le contact entre les grains. Par conséquent, la vibration d’une bulle non sphérique permet simplement d’instiller à la bulle l’énergie d’activation nécessaire pour transiter vers son état de minimum d’énergie à savoir une bulle en armure sphérique.

## 5 Conclusion

Dans ce papier, nous étudions la réponse de bulles non sphériques à des vibrations mécanique. Nous montrons qu’une bulle en armure non sphériques constitue un état métastable qui évolue vers son état de minimum d’énergie, à savoir une bulle en armure sphérique, lorsque sa surface est vibrée. Cette évolution aboutit à une réduction de la surface de la bulle et par conséquent à la libération des particules en excès. Ainsi les bulles en armures pourraient constituer un vecteur efficace pour transporter des particules et ensuite les disséminer localement, par exemple en médecine, pour la délivrance ciblée de médicaments.

## Références

- [1] Z.P. Du, M.P. Bilbao-Montoya, B.P. Binks, E. Dickinson, R. Ettelaie, and B. Murray. Outstanding stability of particle-stabilized bubbles. *Langmuir*, pages 3105–3108, 2003.
- [2] M. Abkarian, A.B. Subramaniam, S.-H. Kim, R.J. Larsen, S.-M. Yang, and H.A. Stone. Dissolution arrest and stability of particle-covered bubbles. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :188301, 2007.
- [3] A.B. Subramaniam, M. Abkarian, L. Mahadevan, and H.A. Stone. Non-spherical bubbles. *Nature*, 438 :930, 2005.
- [4] B.P. Binks and R. Murakami. Phase inversion of particle-stabilized materials from foams to dry water. *Nat. Mater.*, 5 :865–869, 2006.
- [5] B.P. Binks and T.S. Horozov. *Colloidal particles at liquid interfaces*. Cambridge University Press, 2006.
- [6] S. Fujii, A.J. Ryan, and S.P. Armes. Long-range structural order, moirÉ patterns, and iridescence in latex-stabilized foams. *J. Am. Chem. Soc.*, 128 :7882–7886, 2006.
- [7] A.R. Studart, U.T. Gonzenbach, I. Akartuna, E. Tervoort, and L.J. Gauckler. *J. Mater. Chem.*, 17 :3283–3289, 2007.
- [8] A.B. Subramaniam, M. Abkarian, and H.A. Stone. Controlled assembly of jammed colloidal shells on fluid droplets. *Nature Materials*, 4(7) :553–556, 2005.
- [9] A.P. Kotula and S.L. Anna. Probing timescales for colloidal particle adsorption using slug bubbles in rectangular microchannels. *Soft Matter*, 8 :10759, 2012.
- [10] F. Zoueshtiagh, M. Baudoin, and D. Guerrin. Capillary tube wetting induced by particles : towards armoured bubbles tailoring. *Soft Matter*, 10 :9403, 2014.
- [11] I. Bihi, M. Baudoin, J.E. Butler, C. Faille, and F. Zoueshtiagh. Inverse saffman-taylor experiments with particles lead to capillarity driven fingering instability. *Phys. Rev. Lett.*, 117 :034501, 2016.
- [12] A.B. Subramaniam, C. Mejean, M. Abkarian, and H.A. Stone. Microstructure, morphology, and lifetime of armored bubbles exposed to surfactants. *Langmuir*, 22 :5986–5990, 2006.
- [13] N. Taccoen, F. Lequeux, D.Z. Gunes, and C.N. Baroud. Probing the mechanical strength of an armored bubble and its implication to particle-stabilized foams. *Phys. Rev. X*, 6 :011010, 2016.
- [14] V. Poulichet and V. Garbin. Ultrafast desorption of colloidal particles from fluid interfaces. *Proc. Nat. Ac. Sci.*, 112(19) :5932–5937, 2015.
- [15] V. Poulichet, A. Huerre, and V. Garbin. Shape oscillations of particle-coated bubbles and directional particle expulsion. *Soft Matter*, 13 :125, 2016.
- [16] J.W. Strutt (Lord Rayleigh). On the pressure developed in a liquid during the collapse of a spherical cavity. *Philos. Mag.*, 34 :94–98, 1917.
- [17] M. Minnaert. On musical air-bubbles and the sound of running water. *Phyl. Mag.*, pages 235–248, 1933.
- [18] M.S. Plesset. The dynamics of cavitation bubbles. *ASME J. Appl. Mech.*, 16 :228–231, 1949.
- [19] J.B. Keller and I.I. Kolodner. Damping of underwater explosion bubble oscillations. *J. Appl. Phys.*, 27 :1152–1161, 1956.
- [20] C.E. Brennen. *Cavitation and bubble dynamics*. Oxford University Press, New York, 1995.
- [21] G. Prabhudesai, I. Bihi, J. Jose, F. Zoueshtiagh, and M. Baudoin. Nonspherical armoured bubble vibration. *Soft Matter*, 2017.