



**HAL**  
open science

# Caractérisation des phénomènes hydrodynamiques lors de l'impact de gouttes sur différents types de substrats

Damien Vadillo

► **To cite this version:**

Damien Vadillo. Caractérisation des phénomènes hydrodynamiques lors de l'impact de gouttes sur différents types de substrats. Dynamique des Fluides [physics.flu-dyn]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2007. Français. NNT: . tel-00178665

**HAL Id: tel-00178665**

**<https://theses.hal.science/tel-00178665v1>**

Submitted on 11 Oct 2007

**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.

Université Joseph Fourier – Grenoble 1

*N° attribué par la bibliothèque*

□□□□□□□□□□

**THÈSE**

*pour obtenir le grade de*

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ JOSEPH FOURIER - GRENOBLE**

préparée au laboratoire des Ecoulements Géophysiques et Industriels

Discipline : **Mécanique & Energétique**

Présentée et soutenue publiquement par

**Damien VADILLO**

**CARACTÉRISATION DES PHÉNOMÈNES HYDRODYNAMIQUES LORS DE  
L'IMPACT DE GOUTTES SUR DIFFERENTS TYPES DE SUBSTRATS**

*Thèse dirigée par Arthur SOUCEMARIANANDIN*

Soutenue le 13 Juillet 2007

**Jury :**

M Jean Pierre Chollet	Président
M. Jean Paul SCHÖN	Rapporteur
Me Michèle ADLER	Rapporteur
M. Arthur SOUCEMARIANANDIN	Directeur de thèse
M. Cyril DELATTRE	Examineur
M. Denis ROUX	Examineur
M. Guido DESIE	Examineur

## **Avant propos**

Une thèse ne s'effectue pas seul, même si souvent c'est ce sentiment qui domine tous les autres. Je tiens donc à remercier ceux qui ont contribué à ce que je m'engage sur ce chemin et qui m'ont soutenu jusqu'à la fin.

En premier lieu M. Verron, et M. Cartellier après lui, directeur du laboratoire des Ecoulements Géophysiques et Industriels de Grenoble (LEGI) de m'avoir accueilli au sein du laboratoire.

Je suis très heureux que M. Schon Jean Paul, professeur au laboratoire de Hubert Curien St Etienne, ait accepté d'être rapporteur. Je le remercie pour sa lecture et ses remarques sur mes travaux.

Je suis particulièrement touché que Md Adler Michèle, Directrice de Recherche au Laboratoire de Physique des Matériaux Divisés et des Interfaces, ait accepté, sur un délai aussi court, d'être rapporteur. C'est pour moi un honneur qu'une spécialiste aussi reconnue du sujet de l'impact de goutte fasse des remarques sur mon travail.

Je remercie M. Chollet Jean Pierre, Professeur à l'université Joseph Fourier de Grenoble, d'avoir accepté de faire partie du jury. J'ai particulièrement apprécié notre collaboration sur les enseignements.

Je remercie le Docteur Guido Desie pour m'avoir accueilli à plusieurs reprises dans les locaux de la société AGFA-GEVAERT, ainsi que pour son intérêt pour mon travail. Je le remercie également pour sa patience, sa disponibilité et sa confiance et enfin, d'avoir accepté de faire partie du jury.

Je remercie M. Delattre, chercheur au CEA LETI, pour son aide dans la fabrication des surfaces modèles, pour son soutien constant et pour avoir accepté de faire partie du jury. Je le remercie d'avoir pris le temps de m'expliquer en détail les problématiques de la synthèse in situ d'oligonucléotides.

Je remercie M. Rous Denis, Maître de Conférence au Laboratoire de Rhéologie de Grenoble, pour ses remarques et ses conseils. Je le remercie également d'avoir accepté de faire partie du jury.

M. Soucemarianadin Arthur, Professeur de l'université Joseph Fourier de Grenoble au LEGI, qui a dirigé cette thèse : je le remercie d'avoir toujours su écouter mon avis, de m'avoir permis de participer à ses travaux et de m'avoir fait découvrir le monde de la recherche.

Je remercie M. Giraud pour son soutien constant et son intérêt perpétuel pour mon travail. Travailler avec lui m'a permis de faire le pont entre la recherche et l'industrie.

Sans le soutien de ma famille et de mes amis, je n'aurais pas pu mener mon travail à son terme. Je remercie mon petit frère Raphaël et mes parents Marie-Reine et Joaquin qui ont su me soutenir (mentalement et financièrement !!) tout au long de mes études. Un remerciement particulier à ma petite sœur Marie-Laure pour son inestimable aide sur la relecture.

Je remercie tous mes ami(e)s qui ont été présents et qui tous, par leur importance particulière, ont permis de faire de moi celui que je suis aujourd'hui. Dans le désordre : Julie, Guillaume, Cécile, Jessie, Elodie, Marie, Loïc, Fabrice, Remy-Pierre, Gautier et Béatrice pour son soutien dans un moment particulièrement difficile. Un mot particulier pour Amélie qui a eu la gentillesse de contribuer à la relecture.

Je remercie spécialement Sandrine qui m'a supporté pendant 4 ans en collocation, dans les bons et les mauvais moments. Sa présence a été pour moi un moteur perpétuel, une aide précieuse et un soutien permanent.

Je remercie Jérémie pour son amitié et nos discussions interminables. Comment envisager la vie sans un ami avec lequel la partager ?

Je remercie à l'équipe pédagogique de l'IUT génie thermique de Grenoble avec qui j'ai passé 3 ans en monitorat. Un merci particulier à Marie-Thé, Nicole et surtout à M. McCluskey, Professeur de l'UJF que je considère aujourd'hui comme un ami.

Enfin, merci à tous ceux que je n'ai pas nommés explicitement mais qui ont participé ou m'ont apporté leur soutien.

Ces remerciements ne seraient pas complets si j'oubliais mon ami Frédéric Pirotais qui a jugé préférable, pour notre bien à tous, de nous quitter prématurément. Je ne peux me résoudre à oublier le temps que nous avons passé ensemble, le soutien qu'il m'a apporté et l'importance de ses conseils ; pour son amitié en définitive.

## Notations

Les notations sont, dans la mesure du possible, les notations standard. Elles sont définies au fur et à mesure de leur utilisation dans le mémoire et sont conservées tout au long de celui-ci. Il nous a cependant paru utile de rassembler ici les notations des grandeurs principales.

<b>Sigle</b>	<b>Définition</b>	<b>Unité</b>
$C_0$	Célérité du son dans un fluide	m/s
$D_0$	Diamètre initial de la goutte en vol	m
$D_f$	Diamètre à l'équilibre	m
$D_{\max}$	Diamètre à l'étalement maximum	m
$d_a$	Diamètre de contact d'avancée du fluide sur la surface	m
$d_r$	Diamètre de reculée du liquide sur la surface	m
$g$	Accélération de pesanteur	m/s <sup>2</sup>
$U$	Vitesse d'impact de la goutte	m/s
$U_{CL}$	Vitesse de la ligne de contact	m/s
$t^*$	Temps adimensionnel	sans
$t_{\det}$	Temps de détachement de l'onde de choc	s
$t_{\text{evap}}$	Temps caractéristique de l'évaporation	s
$t_i$	Temps caractéristique inertiel de l'impact	s
$t_{\text{imp}}$	Temps à avant impact	s
$t_{pc}$	Temps caractéristique physico-chimique de l'impact	s
$t_{\max}$	Temps pour atteindre l'étalement maximum	
		Variable
$\alpha$	coefficient d'ajustement	°
$\beta_c$	Angle critique de détachement de l'onde de choc	sans
$\beta_{\max}$	Etalement maximum	N/m
$\sigma$ (ou $\sigma_{LG}$ )	Tension de surface à l'interface liquide / gaz	N/m
$\sigma_{SL}$	Tension de surface à l'interface solide / liquide	N/m
$\sigma_{SG}$	Tension de surface à l'interface solide / gaz	Pa.s
$\mu$	Viscosité du liquide	°
$\theta_{av}$	Angle de contact d'avancée	°
$\theta_{\text{dyn}}$	Angle de contact moyen durant la phase d'étalement	°
$\theta_d$	Angle de contact dynamique	°
$\theta_{\text{éq}}$	Angle de contact d'équilibre	°
$\theta_r$	Angle de contact de reculée	°
$\rho$	Masse volumique	kg/m <sup>3</sup>
$\tau$	Temps de dissipation visqueuse	s
$Bd$	Nombre de Bond	Sans
$Ca$	Nombre capillaire	Sans
$Fr$	Nombre de Froude	Sans
$Mc$	Nombre de Mach	Sans
$Re$	Nombre de Reynolds	Sans
$We$	Nombre de Weber	Sans

# Table des matières

<b>Notations</b>	<b>4</b>
<b>Introduction</b>	<b>7</b>
<b>Chapitre I: L'instabilité hydrodynamique liée à l'impact d'une goutte</b>	<b>11</b>
<b>A. Impact d'une goutte sur une surface solide</b>	<b>11</b>
<b>B. Nombres sans dimension du problème</b>	<b>18</b>
<b>C. Mouillage et démouillage</b>	<b>25</b>
1. Mouillabilité : état d'équilibre	26
2. Effet de la vitesse d'impact	27
<b>D. Modélisation</b>	<b>43</b>
1. Méthode variationnelle	43
2. Méthode d'intégrales de frontière	47
<b>E. Conclusion</b>	<b>52</b>
<b>Chapitre II: Expérimental</b>	<b>54</b>
<b>A. Surfaces, fluides et caractérisation</b>	<b>55</b>
1. Surfaces et fluides	55
2. Appareil de caractérisation	60
<b>B. Dispositif d'éjection et de visualisation</b>	<b>64</b>
1. Dispositif d'éjection	65
2. Electronique de pilotage	66
3. Caméras, illumination et observations	68
<b>C. Traitement d'image</b>	<b>87</b>
1. Mesure et traitement d'image : algorithme de base	87
2. Mesures	90
<b>Chapitre III: Impact sur surfaces homogènes</b>	<b>102</b>
<b>A. Vitesse d'impact faible : cas du dépôt</b>	<b>102</b>
<b>B. Les différents types d'étalement</b>	<b>104</b>
<b>C. Phase cinématique</b>	<b>106</b>
1. Effet de la vitesse	108
2. Mouillabilité et tension de surface	109
3. Effet de la viscosité	110
<b>D. Phase d'étalement</b>	<b>111</b>
1. Effet de la vitesse	112
2. Effet de la viscosité	115
3. Effet de la mouillabilité	119
4. Influence du diamètre initial : cas des microgouttes	122
<b>E. Phase intermédiaire</b>	<b>125</b>
1. Cas $\beta_{\max} < d_a$	125
2. Cas $\beta_{\max} > d_r$	128
3. Oscillations de la hauteur	131
<b>F. Régime capillaire et régime de relaxation</b>	<b>134</b>

1. Mouillabilité forte.....	136
2. Mouillabilité partielle .....	138
3. Régime de relaxation.....	139
<b>G. Angle de contact dynamique.....</b>	<b>141</b>
1. Comportement global .....	141
2. Les différentes phases.....	143
3. Prédiction de l'étalement.....	159
<b>Chapitre IV: Substrats Hétérogènes.....</b>	<b>179</b>
<b>A. Hétérogénéités chimiques.....</b>	<b>179</b>
1. Confinement de fluide par variation de mouillabilité.....	180
2. Déplacement radial d'une goutte par gradient de mouillabilité.....	193
<b>B. Hétérogénéités topographiques.....</b>	<b>207</b>
1. Modèle de Cassie Baxter et de Wenzel .....	207
2. Modèle d'Extrand.....	208
3. Cas de l'impact sur une surface rugueuse super hydrophobe.....	211
<b>Chapitre V: Applications.....</b>	<b>217</b>
<b>A. Application au jet d'encre.....</b>	<b>217</b>
1. Dispositifs expérimentaux .....	219
2. Coalescence axisymétrique.....	224
3. Coalescence non axisymétrique.....	254
<b>B. Application à la synthèse in situ d'ADN.....</b>	<b>267</b>
1. Principe de la synthèse .....	267
2. Robot pour la phase de protection .....	270
3. Réalisation des biopuces.....	272
4. Formation du film protecteur.....	274
5. Résultat de synthèse.....	285
<b>Conclusions et perspectives.....</b>	<b>287</b>
<b>Conclusions.....</b>	<b>287</b>
<b>Limites et perspectives.....</b>	<b>294</b>
<b>Annexes.....</b>	<b>296</b>
<b>A. Planches expérimentales:.....</b>	<b>297</b>
<b>B. Impact de gouttes contenant du tensioactif.....</b>	<b>310</b>
<b>C. Evolution de microgoutte .....</b>	<b>311</b>
<b>Bibliographie.....</b>	<b>312</b>

## Introduction

Le problème de l'impact de goutte de liquide sur une surface est un problème largement présent dans la nature, mais également dans l'industrie. Que ce soit dans le domaine agricole, lors de la pulvérisation de pesticide ou d'engrais, dans l'aéronautique avec l'agrégation de la glace sur les ailes d'avion ou encore dans le domaine de l'impression par jet d'encre, le mécanisme de l'impact de la goutte est un problème central. Pour l'agriculture, l'objectif est d'obtenir un étalement aussi fort que possible pour maximiser la couverture des plantes par les produits pulvérisés. En revanche, dans le jet d'encre, le but principal est d'avoir un impact parfaitement circulaire et de taille contrôlée pour des raisons évidentes de qualité d'impression. Les phénomènes d'éclaboussures ou de rebonds sont à bannir, seul le cas de l'impact d'une goutte suivi de son étalement est intéressant.

Pour chacune des applications, la goutte évolue dans un milieu (généralement l'air) puis entre en interaction avec une surface solide qui peut être mouillée ou sèche, poreuse ou non, rugueuse ou non, inclinée ou horizontale, mouillante ou non, voire présenter des hétérogénéités de mouillabilité. Dans ce dernier cas, il est évident que la nature inhomogène de la surface modifie singulièrement le comportement de la goutte avec notamment une perte d'axisymétrie à l'équilibre. La tension de surface et la viscosité du liquide sont également des paramètres de contrôle des mécanismes et leur effet est non linéaire sur l'impact de la goutte. Par ailleurs, l'impact et l'étalement mettent en présence trois interfaces (solide / liquide, solide / gaz et liquide / gaz), dont une surface libre particulièrement déformable. Notons que ces déformations sont importantes sur les temps courts de l'étalement, à savoir quelques millisecondes pour les gouttes de quelques millimètres, et quelques dizaines de microsecondes pour les gouttes micrométriques. C'est également sur ces intervalles de temps que l'essentiel de l'étalement intervient et avec des vitesses pour la ligne de contact (intersection des trois phases en présence) de l'ordre de plusieurs mètres par seconde.

Par ailleurs, dans la plupart des applications, la goutte n'est pas isolée. Par exemple, pour le cas de l'impression numérique, plusieurs milliers de gouttes sont nécessaires. Les gouttes éjectées vont nécessairement interagir avec les gouttes déjà présentes sur la surface, leur coalescence et leur juxtaposition permettant alors de former l'ensemble plus grand final qu'est l'image. Cet aspect fait intervenir de nouvelles problématiques, notamment en lien avec les différences de caractéristiques physico-chimiques des encres (dans le cas de gouttes de fluides différents ou d'encre éjectée à une certaine température).

Pour se convaincre définitivement de la richesse et de la diversité de ce sujet d'étude (si tel n'est pas encore le cas), il est utile de préciser que des travaux antérieurs ([Rioboo, 2003]) ont mis en évidence six configurations particulières d'impact. Pour les nommer, il y a l'éclaboussure initiale, l'éclaboussure en couronne, la cassure par rétraction, le rebond partiel, le rebond total et l'impact suivi de dépôt. Pour les deux premières configurations, l'étalement est très prononcé et le liquide à la périphérie se brise ou éjecte de petites gouttelettes sous l'effet de la tension de surface. Dans le troisième cas, les rugosités de la surface jouent le rôle de point d'accroche et retiennent du liquide lors du démouillage de la goutte. Pour les quatrième et cinquième configurations, et comme leurs noms l'indiquent, la goutte rebondit sur la surface, soit complètement soit partiellement (la goutte se brise avant la fin du rebond et une partie du liquide reste sur la surface). Enfin, il y a l'impact suivi de dépôt, qui se découpe en quatre phases distinctes ([Rioboo et al, 2002]), et où la goutte arrive à un état d'équilibre sous la forme d'une calotte sphérique. C'est à la fois la nature du liquide, la nature de la surface et les conditions expérimentales qui en sont à l'origine. En particulier, l'effet de la mouillabilité de la surface, l'effet du diamètre initial (quelques dizaines de micromètres ou quelques millimètres) sont des paramètres qui n'ont pas clairement été mis en évidence et des mécanismes tels que la vitesse de déplacement de la ligne de contact ou l'évolution dynamique de l'angle de contact sont encore à étudier.

Les paramètres physiques qui entrent en jeu dans le phénomène d'impact sont nombreux et variés. Par ailleurs, l'écoulement a un caractère instationnaire, et plusieurs échelles de temps et d'espace coexistent. Pour ces différentes raisons, ce travail est uniquement focalisé sur l'étude du cas de l'impact suivi de dépôt.

A la vue de ces différents éléments, la résolution et la simulation du problème d'impact sont difficiles, en raison de la diversité et de la complexité des phénomènes physiques. La résolution de ce problème est également fortement pluridisciplinaire puisqu'elle fait intervenir des domaines tels que la mécanique des fluides, la rhéologie et la physico-chimie des interfaces. Dans ce manuscrit, nous n'avons pas la prétention d'apporter les réponses aux questions encore en suspens mais plutôt de participer à l'accumulation de connaissances nécessaires à cette résolution, pourvu qu'elle soit possible. En conséquence, ce mémoire s'articule autour de cinq parties.

Le premier chapitre constitue une revue bibliographique des principaux résultats de la littérature sur le vaste problème de l'impact d'une goutte sur une surface solide. Il s'étend des premières observations ([Worthington, 1876]) jusqu'à la dernière revue de synthèse de 2006 ([Yarin, 2006]). L'objectif est de montrer l'importance des travaux déjà réalisés, la très

grande diversité des mécanismes physiques et de poser les bases de la réflexion. En particulier, nous introduisons les nombres sans dimensions caractéristiques du problème, les échelles de temps des mécanismes et les différentes phases par lesquelles passe la goutte durant l'impact. Ce chapitre permet également de mettre en avant une partie des points qui restent à étudier et qui seront abordés dans ce mémoire.

Le second chapitre constitue un « catalogue » de l'ensemble des appareillages de mesures utilisés, mais également des dispositifs conçus et réalisés pour cette étude. Dans cette partie, nous présentons les caractéristiques principales des liquides et des surfaces utilisés avec un accent particulier sur la mesure systématique de leur mouillabilité. Nous présentons également les diverses techniques expérimentales mises en oeuvre (cinématographie rapide, pseudo-cinématographie à déphasage contrôlé, multi-exposition) avec notamment une méthode d'illumination ultra courte combinée à une caméra rapide pour obtenir des interfaces aussi nettes que possible. Une partie est spécifiquement dédiée à la formation et au contrôle des microgouttes à partir de différents éjecteurs piézoélectriques. Enfin, ce chapitre regroupe les algorithmes de suivi d'interfaces qui permettent la mesure automatique du diamètre de contact de la goutte avec son support, de sa hauteur ainsi que son angle de contact dynamique. Dans le troisième chapitre, nous présentons une étude expérimentale détaillée du mécanisme de l'impact sur surface homogène, avec notamment l'observation des déformations transitoires de la surface libre. Nous étudions de manière systématique, sur chacune des quatre phases par lesquelles passe la goutte lors de l'impact, l'influence des paramètres de tension de surface et de viscosité du liquide, et de la vitesse d'impact sur l'évolution du diamètre de contact, de la ligne de contact et de l'angle de contact dynamique. De plus, et pour la première fois, l'influence du diamètre initial (diamètre millimétrique ou micrométrique) mais également celle de la mouillabilité de la surface sont étudiées en détail. Enfin, deux méthodes de simulation, la méthode variationnelle et la méthode d'intégrales de frontière, sont utilisées et comparées aux résultats expérimentaux. La première repose sur une géométrie préférentielle de la goutte durant l'impact (forme de sphère tronquée) et sur la conservation de l'énergie cinétique et de l'énergie potentielle entre deux instants. La seconde ne nécessite aucune hypothèse sur la géométrie lors de l'impact, les calculs sont ramenés sur l'interface qui se trouve également être une inconnue du problème.

Dans la quatrième partie, nous nous intéressons plus particulièrement au problème de l'impact sur des surfaces hétérogènes d'un point de vue chimique (présence de zones mouillantes et non mouillantes) ou d'un point de vue topographique (surface super hydrophobe). Comme précédemment, l'évolution du diamètre et celle de l'angle de contact au cours du temps sont

mesurées. Sur la surface texturée d'un point de vue chimique et topographique, la relation entre son caractère super hydrophobe (caractérisé à partir de critères de la littérature ([Extrand, 2002 ; Extrand, 2004])) et la vitesse d'impact est étudiée. Enfin, sur les surfaces à mouillabilité variable, nous présentons le comportement statique et dynamique d'une goutte en présence d'un gradient de mouillabilité sur la surface.

La cinquième et dernière partie présente deux applications particulières de l'impact de goutte : l'impression numérique et la synthèse in situ d'ADN. Pour la première de ces applications, nous nous intéressons au phénomène de coalescence de deux gouttes de fluide dans les deux configurations précises de coalescence axisymétrique (la seconde goutte atterrit au sommet de la goutte au repos sur la surface) et de coalescence non axisymétrique (la goutte incidente impacte à côté de la goutte au repos sur la surface, puis entre en contact avec elle durant son étalement). Dans cette dernière configuration, les deux gouttes peuvent présenter un gradient de viscosité et / ou de mouillabilité. La seconde application traite d'une partie d'un procédé de synthèse in situ d'ADN et a pour objectif de réaliser une protection efficace d'un site fonctionnalisé (cuvette) pour cette synthèse. Nous montrerons comment, à partir du contrôle de la mouillabilité des sites et de microgouttes d'un mélange de polymère et de solvant, il est possible de former un film de polymère protecteur.

Enfin, nous concluons en présentant un résumé de nos principaux résultats, mais également et surtout les principales limites de notre travail. Dans cette toute dernière partie, nous ferons quelques suggestions sur les poursuites éventuelles à donner à ce travail, ou les pistes à suivre, en vue de pallier ces manquements.

## Chapitre I

### **L'instabilité hydrodynamique liée à l'impact d'une goutte**

Cette partie est consacrée à la revue bibliographique du problème de l'impact orthogonal de gouttes de fluide sur des surfaces solides et non poreuses. Sur ces surfaces, les gouttes peuvent s'étaler de différentes manières. Elles peuvent éjecter à leur périphérie un film de liquide ou des gouttelettes, elles peuvent également rebondir complètement ou partiellement. Le cas que nous étudions en détail dans ce travail est la dernière configuration, à savoir lorsque la goutte s'étale en conservant une forme de calotte sphérique. Dans cette revue bibliographique, nous présentons tout d'abord les articles clés (revue succincte) pour rappeler les principaux éléments connus. Dans un second temps, nous présenterons les nombres sans dimension et les échelles du problème (vitesse, longueur et temps). Ensuite, nous présenterons l'effet d'une vitesse d'impact sur l'évolution de la goutte (présentation des différentes phases de l'impact). Enfin, une courte conclusion résumera les problèmes à résoudre et nos principaux apports dans ce domaine.

#### ***Impact d'une goutte sur une surface solide***

Nous présentons ici une revue rapide des premiers résultats obtenus dans l'étude de notre problème. Le but n'est pas de faire un historique précis et complet mais de poser les premiers jalons. Ainsi, l'impact d'une goutte est un sujet étudié depuis la fin du 19<sup>ème</sup> siècle. Malgré l'absence de moyens technologiques adéquats pour visualiser et enregistrer les profils de la goutte sur les temps courts, Worthington, en 1876, met au point un système astucieux pour pallier ce problème et observer l'impact de gouttes de lait et de mercure sur des surfaces recouvertes de cire. Un système de flash et de retardateur se déclenche après l'impact de la goutte. La pièce est plongée dans l'obscurité et l'illumination projette le profil de la goutte. L'acquisition étant impossible, le résultat doit être dessiné. La répétition des expériences en décalant le retardement permet la reconstitution du film de l'évolution de la goutte [Worthington, 1876 ; Worthington, 1877]. La figure I.1 présente une image tirée de [Worthington, 1877]. Il faut souligner le côté astucieux de cette méthode. Ce dispositif de « pseudo-cinématographie à déphasage contrôlé » permet d'observer des étapes clés du processus d'impact tel que la forme de crêpe à l'étalement maximum, la présence du bourrelet, le phénomène de démouillage et même des cassures. Pour le mercure, il note la formation de filaments, plutôt uniformément répartis sur le pourtour de la goutte et qui

peuvent se briser en gouttelettes. Il semble également que leur formation se fasse dans les premiers instants de l'impact. Il note enfin que l'augmentation de la vitesse d'impact augmente la quantité de ces filaments. Il met ainsi en évidence les différences de comportement entre le lait et le mercure, et par suite, l'importance des propriétés du fluide étudié. Bien qu'aucun résultat quantitatif ne puisse être possible à partir de ces deux articles, ils permettent néanmoins de mettre en avant la complexité du phénomène ainsi que la diversité des résultats de l'impact d'une goutte.



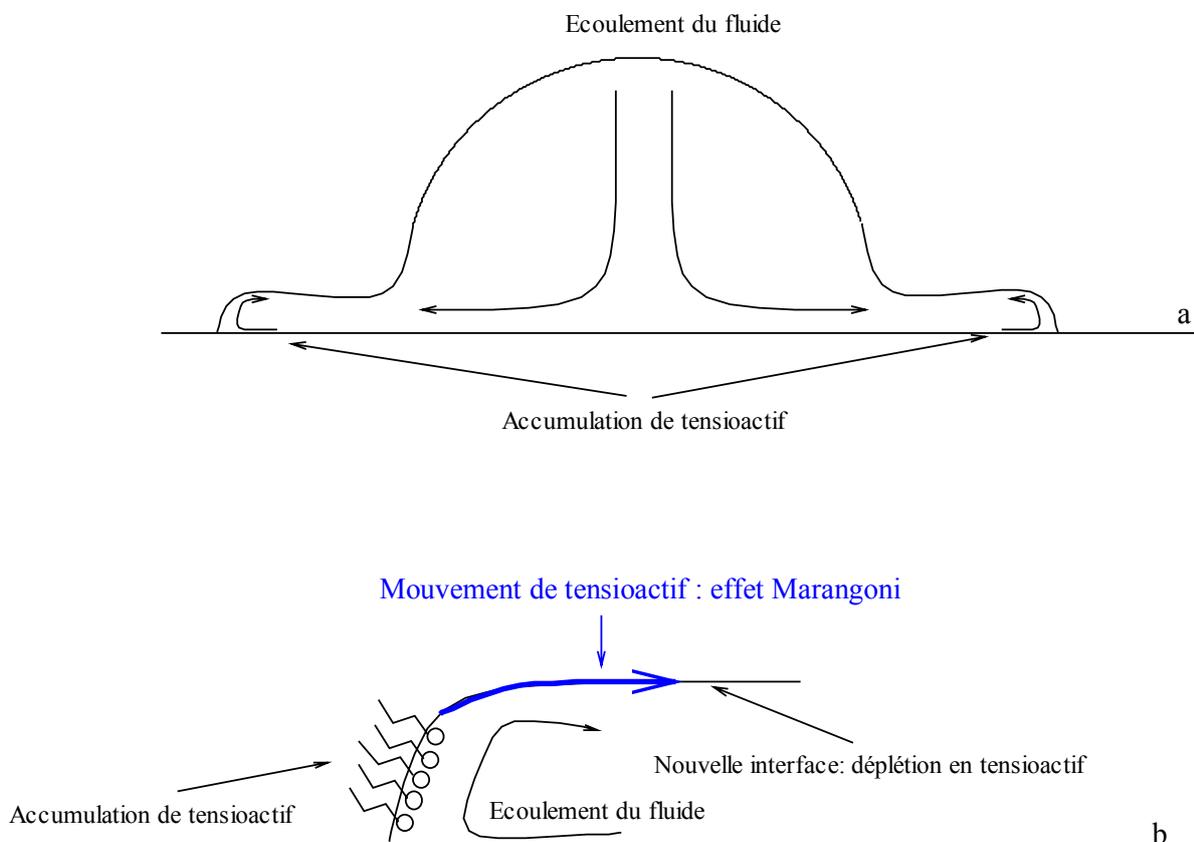
Figure I.1 : Instabilités sur la circonférence de lamelles lors de son étalement (tiré de [Worthington, 1877]).

Il faudra attendre 1955 et les travaux d'Olive Engel ([Engel, 1955]) pour donner une suite aux travaux de Worthington. Cette fois, les techniques de visualisation employées sont de la photographie rapide combinée à de l'optique précise. Dans les cas de vitesses suffisantes (dans l'étude, la hauteur de chute est supérieure à 6m, soit une vitesse d'impact supérieure à 10m/s), on observe l'apparition d'une couronne. Ces travaux confirmeront les observations de Worthington, notamment sur la présence des filaments et des perturbations verticales seront également notées. [Engel, 1955] pose le problème de la compression du fluide au niveau du point d'impact ainsi que la propagation de l'onde de choc dans le fluide, à la vitesse du son. Elle propose d'estimer la pression maximale due à l'impact à l'aide du « coup de bélier ». Elle en déduit alors une vitesse pour l'écoulement, différente de celle de la ligne de contact, égale à  $\alpha cU$  avec  $\alpha$  un coefficient d'ajustement (égal à 0.4 dans ses travaux),  $c$  la vitesse du son dans le fluide et  $U$  la vitesse d'impact. Enfin, à partir d'un bilan d'énergie, elle proposera une évolution du diamètre de contact transitoire en fonction du diamètre maximum, du temps auquel ce diamètre est atteint et d'un coefficient d'ajustement arbitraire.

En 1993, [Rein, 1993] publie une revue complète des travaux déjà réalisés dans le cas de l'impact d'une goutte de fluide sur un substrat sec ou sur une surface fluide. Il définit le rebond, l'étalement ou la coalescence (dans le cas d'une surface fluide) et l'éclatement comme les trois résultats possibles de l'impact. Un nombre de Weber critique, correspondant au seuil d'éclatement de la goutte lorsqu'elle impacte sur une surface fluide et uniquement fonction du nombre d'Ohnesorge, est proposé. [Rein, 1993] précise également que même dans les premiers instants, la compressibilité du fluide ne peut pas être occultée, et que la viscosité et la présence de surfactant dans le fluide jouent un rôle important sur des temps plus longs. Cet article reprend l'intégralité des configurations (fluide sur surface sèche, goutte sur surface fluide constituée d'un même fluide ou différent etc...), montre la richesse et la complexité du phénomène et pose les problèmes encore non résolus.

A partir de la revue de [Rein, 1993], le nombre d'études portant sur l'impact de goutte a connu un accroissement considérable (en reprenant la revue de [Yarin, 2006], nous dénombrons 95 références, ce qui traduit l'intérêt porté à ce sujet). Les différentes études s'attachent à montrer les variétés des phénomènes qui apparaissent lors de l'impact. Ils mettent en avant l'influence des différents paramètres physiques des liquides et des conditions expérimentales. Ainsi, l'influence de la viscosité ([Rioboo et al, 2002]), de la tension de surface ([Sikalo et al, 2002]) et de la mouillabilité de la surface sont étudiées en détail ([Rioboo et al, 2002]). Ce dernier paramètre est compliqué à étudier et n'a pas encore été mis en avant de manière claire. Il demeure toujours un problème ouvert ([Rioboo, 2003]). Les différentes études sur ce point procèdent en modifiant la tension de surface du fluide. Pour cela, le fluide peut faire varier d'une expérience à l'autre. Il peut également être conservé et modifié la tension de surface en y ajoutant du tensioactif à différentes concentrations. Le changement de fluide modifie effectivement l'angle à l'équilibre mais sans conserver le nombre de Weber (donc le rapport force d'inertie sur force de tension de surface). Il faut dans ce cas ajuster la valeur de la vitesse d'impact. Dans la seconde configuration, la nature et la concentration du tensioactif interviennent sur le comportement dynamique. [Morougou-Candoni et al., 1997] réalise une étude précise sur l'effet de la présence de tensioactif, sur sa nature et sur sa concentration, dans le cas d'une goutte impactant sur une seule surface de verre traitée chimiquement pour être hydrophobe. Bien que la qualité des images obtenues ne permettent pas de tirer toutes les conclusions sur le phénomène d'impact, nous constatons néanmoins qu'à des concentrations en surfactant inférieures à la concentration micellaire critique (CMC), l'expansion de la goutte sur le support est limitée. Les auteurs précisent que cet effet est également observable dès lors que la concentration en micelle dans le volume

passer sous la CMC, c'est à dire dans des cas d'adsorption forte. Les déformations de la surface se traduisent par la création de zones de l'interface vierges et tensioactif et la circulation du fluide dans la goutte crée une accumulation de surfactant à la périphérie de celle-ci (figure I.2.a). Le surfactant, qui ne peut pas saturer l'interface (concentration inférieure à la CMC), s'adsorbe près de la ligne de contact et remonte vers le sommet de la goutte en suivant la surface libre sous l'action d'un effet de type Marangoni chimique (les surfactants se déplacent des zones de forte population vers les zones de concentration moindre) (figure I.2.b). Cela crée une pression interfaciale qui, en s'ajoutant à l'effet de la tension de surface du fluide, s'oppose à l'étalement.



**Figure I.2 : Effet Marangoni chimique lors de l'impact d'une goutte dans le cas d'une concentration en tensioactif inférieure à la Concentration Micellaire Critique.**

L'effet de la mouillabilité peut également être étudié en modifiant la surface d'impact. La paraffine (matériau non mouillant), la cire, le PolyChlorure de Vynil (PVC) ou encore le verre ou l'acier, sont généralement utilisés ([Morougou-Candoni et al, 1997 ; Rozhkov et al, 2002 ; Sikalo et al, 2003 ; Roux & Cooper, 2004]). Toutefois, si la mouillabilité de ces surfaces est

différente de l'une à l'autre, la caractérisation de leur état de surface n'est jamais pris en compte, ou seulement en utilisant des valeurs moyennes. [Riobbo et al, 2001-2] montre comment la présence de rugosité et la mouillabilité de la surface, influence l'évolution de la goutte. Les auteurs dénombrent exactement 6 cas possibles. Les phases de l'impact présentées ici seront reprises et développées dans la partie consacrée au cas particulier de l'impact suivi de dépôt.

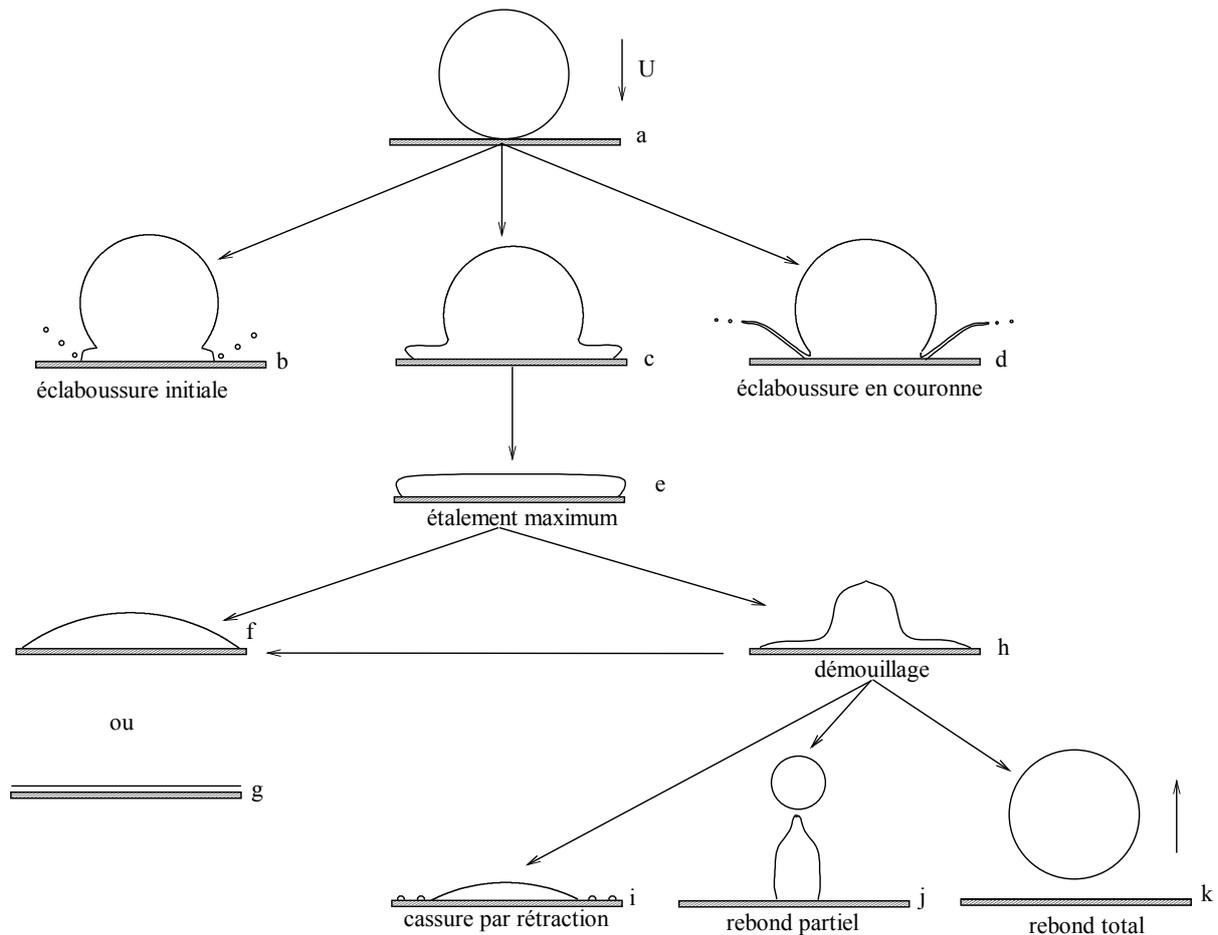


Figure I.3 : Représentation schématique des comportements de la goutte pendant l'impact.

Nous représentons schématiquement sur la figure I.3 l'ensemble des configurations détaillées ci-dessous. A l'instant de l'impact, la goutte est supposée sphérique. Dans les premiers instants qui suivent, elle prend la forme de sphère tronquée (figure I.3.a) puis s'étale (figure I.3.c) jusqu'à atteindre son extension maximum sous la forme d'une crête (figure I.3.e). C'est dans la phase d'étalement que les premières différences apparaissent. La goutte peut éjecter à sa base, au niveau de la ligne triple, de toutes petites gouttes (figure I.3.b) ou un film de fluide qui se brisera ultérieurement en gouttelettes de petites tailles (figure I.3.d). La goutte éclate respectivement en « éclaboussure initiale » et « éclaboussure en couronne » ([Riobbo et al,

2001-2]). Les éclaboussures initiales sont principalement dues aux hétérogénéités de la surface, et particulièrement la rugosité, qui vont déstabiliser le film de fluide qui s'étend sur la surface pour créer les gouttelettes. Pour les éclaboussures en couronne, le film de fluide est éjecté de la surface. Le caractère instable de ce film provoque sa brisure en des gouttes plus petites. Une fois le diamètre maximum atteint, c'est l'interaction avec la surface qui va contrôler le phénomène. Si l'étalement maximum correspond à l'étalement final, la goutte sera sous la forme d'une sphère tronquée et son diamètre n'évoluera plus (figure I.3.f). Si l'inertie de l'impact est insuffisante, le diamètre maximum est inférieur au diamètre final. La goutte continuera son étalement sous l'action de la force non compensée de Young jusqu'à atteindre un diamètre d'équilibre (figure I.3.f) ou jusqu'à former une couche monomoléculaire dans le cas d'un support complètement mouillant (figure I.3.g). Ces trois configurations correspondent au cas du dépôt. Enfin, si l'étalement maximum est supérieur à l'étalement final, la goutte va se rétracter (figure I.3.h). Quatre possibilités sont alors envisageables :

- La surface n'a pas un angle de contact très important avec le fluide et la vitesse de rétraction est faible, le diamètre diminuera jusqu'à atteindre le diamètre d'équilibre final. Nous sommes également dans le cas d'un dépôt (figure I.3.f)
- Dans la même configuration et si la vitesse de rétraction est importante, la goutte peut laisser des gouttelettes sur la surface. Il s'agit d'une cassure par rétraction (figure I.3.i).
- L'angle d'équilibre entre le fluide et le substrat est fort, la goutte va se rétracter et la hauteur au centre de la goutte va remonter rapidement et de façon importante. L'écoulement prend alors une forme cylindrique, la goutte reste en contact avec la surface et se brise en son centre sous l'effet de la tension de surface. [Rioboo, 2003] précise que pour que ce cas se produise, l'angle dynamique que forme le fluide avec la surface doit être proche ou inférieur à  $90^\circ$ . Il s'agit du rebond partiel présenté sur la figure I.3.j.
- Dans la même configuration mais avec un angle dynamique supérieur lors de la rétraction, la ligne de contact se détache du support avant l'apparition de la brisure. Le rebond est complet (figure I.3.k), on se trouve dans le cas d'une surface super hydrophobe.

Lors des deux derniers cas présentés (rebond partiel et rebond total), les phases de mouillage-démouillage pourront se répéter jusqu'à ce que la goutte atteigne son état d'équilibre. De plus, dans le cas où la goutte se brise lors de la remontée du fluide (rebond partiel), la goutte

satellite obtenue retombera sur celle restée sur le support. Elle pourra soit coalescer avec la première soit rebondir dessus (pour des raisons énergétiques). Le cas de la coalescence axisymétrique sera abordé ultérieurement. La figure I.4 montre des exemples expérimentaux pour chacun des cas explicités ci-dessus.

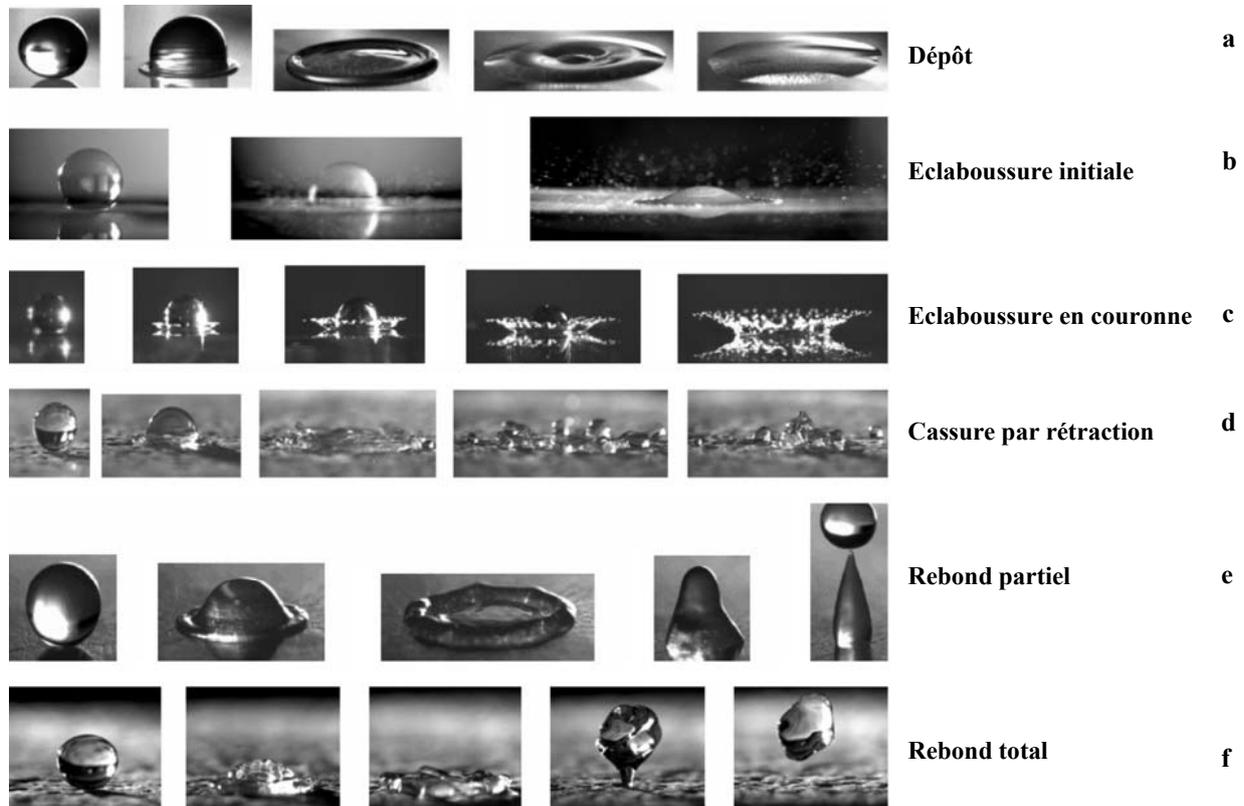


Figure I.4: Les 6 comportements possibles lors de l'impact d'une goutte, planche tirée de [Rioboo et al, 2001-2].

Le travail présenté dans ce mémoire ne considère pas l'ensemble des cas d'impacts possibles. Seuls les cas du dépôt et de l'impact total (respectivement figure I.4.a et I.3.f) seront abordés. Le cas de rebond partiel a été observé dans le cas d'une surface très peu mouillante mais aucune étude n'a été conduite dans ce cas précis.

L'année suivante, [Rioboo et al, 2002] montrent de manière claire l'influence de la viscosité dans la phase d'étalement, c'est-à-dire jusqu'à l'étalement maximum. Ils précisent que l'effet lié au nombre de Reynolds est à la fois non linéaire et non monotone. Nous montrerons dans la suite que la viscosité influence également la phase cinématique (phase préalable à la phase d'étalement). Dans cette phase d'étalement, les auteurs affirment que le nombre de Weber n'a que peu d'influence (le diamètre maximum augmente de 20% pour un facteur 3.7 en  $We$ ).

Cependant, la vitesse d'impact étant fixée, ce sont les liquides utilisés qui changent d'une expérience à l'autre pour assurer la conservation du nombre de Weber (la tension de surface  $\sigma$  varie de 73 à 21 mN/m), ce qui modifie également l'angle d'équilibre. L'étude particulière de ce nombre impose dans ce cas de changer les surfaces (mais elles doivent rester proches en terme de rugosité) pour assurer la conservation de l'angle d'équilibre lorsque la tension de surface est modifiée. Toujours dans cette même étude (la plus complète), les auteurs montrent également que l'angle d'équilibre final liquide / solide a un impact sur la phase d'étalement et notamment la valeur de l'étalement maximum. Ils précisent que cette influence est faible et n'observent pas de différence pour le cas d'une goutte d'eau distillée impactant sur des surfaces d'angles de contact respectivement de  $6^\circ$  et  $86^\circ$ . Des différences sont observées uniquement pour des angles de contact très importants ( $154^\circ$  dans leur étude). Ce résultat est surprenant et contradictoire avec nos observations. De plus, cette étude ne considère qu'une seule vitesse pour quantifier l'effet de ce paramètre, ce qui n'est pas suffisant. Nous avons fait réaliser un certain nombre de traitements chimiques sur des plaques de silicium pour obtenir une large gamme d'angle de contact. L'intérêt est notamment que le paramètre de mouillabilité varie fortement alors que la rugosité reste fixe et très faible. C'est la première fois dans la littérature qu'une telle étude est menée. Nous verrons par la suite, à partir d'essais sur ces supports, qu'une diminution suffisante de l'angle d'équilibre conduit à augmenter le diamètre à l'étalement maximum dans les mêmes proportions que celles observées par [Rioboo et al, 2002] pour une variation du nombre de Weber.

Enfin, Yarin ([Yarin, 2006]), de la même manière que Rein ([Rein, 1993] avant lui, propose une revue des derniers travaux. Fortement basé sur les différents articles publiés par Rioboo, Marengo, Roisman et Tropea ([Roisman & Tropea, 2001 ; Rioboo et al, 2001-1; Rioboo et al, 2001-2; Roisman et al, 2001 ; Rioboo et al, 2002) pour l'impact sur surface sèche, cet article permet de mettre en évidence les dernières avancées expérimentales et les derniers modèles. Il montre la diversité des types d'étalements ainsi que les paramètres qui influent. Les différents résultats d'impact et les paramètres qui en sont la cause sont présentés dans le paragraphe qui suit.

### ***Nombres sans dimension du problème***

Le phénomène d'impact d'une goutte sur une surface solide est un problème complexe du fait de la présence de la surface libre, des phénomènes transitoires rapides et du nombre de forces qui s'appliquent sur la goutte. Nous pouvons citer les propriétés physico-chimiques des

fluides (i.e. la tension de surface  $\sigma$ , la viscosité  $\mu$  et la masse volumique  $\rho$ ), les conditions expérimentales (vitesse d'impact  $U$ , diamètre initial en vol  $D_0$ ) et l'interaction entre le fluide et la surface (rugosité de la surface  $R_a$ , angle avançant  $\theta_a$  et angle reculant  $\theta_r$  et angle d'équilibre  $\theta_{\text{eq}}$ ). Il ne faut pas occulter la gravité «  $g$  » et la vitesse du son «  $c$  » dans le fluide. Enfin, ce problème est dynamique et le temps «  $t$  » y joue un rôle important. Tous ces paramètres ne sont certainement pas les seuls et d'autres peuvent intervenir comme les aspects de formes des rugosités par exemple, ou leur répartition.

Dans notre étude, nous cherchons à quantifier l'influence des différents paramètres qui interviennent dans le mécanisme d'impact. En reprenant les équations de Navier & Stokes (équation I.1) et l'équation de continuité (équation I.2) dans le cas d'un fluide incompressible nous avons :

$$\rho \frac{Dv}{Dt} = -\nabla P + \mu \nabla^2 v + \rho g \quad (\text{I.1})$$

$$\nabla \cdot v = 0 \quad (\text{I.2})$$

où  $\frac{D}{Dt}$  est la dérivée particulaire,  $v$  le champ de vitesse de l'écoulement,  $p$  la pression en

Pascal,  $\rho$  la masse volumique en  $\text{kg/m}^3$  et  $g$  l'accélération de pesanteur en  $\text{m/s}^2$ . Le problème de l'impact, au moins dans les premiers instants, est axisymétrique et les équations I.1 et I.2 en coordonnées cylindriques sont :

Suivant la composante  $r$  :

$$\rho \left( \frac{\partial u_r}{\partial t} + u_r \frac{\partial u_r}{\partial r} + u_z \frac{\partial u_r}{\partial z} \right) = -\frac{\partial p}{\partial r} + \mu \left\{ \frac{\partial}{\partial r} \left[ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r u_r) \right] + \frac{\partial^2 u_r}{\partial z^2} \right\} \quad (\text{I.3})$$

Suivant le composante  $z$  (avec l'accélération de pesanteur orientée suivant  $-z$ )

$$\rho \left( \frac{\partial u_z}{\partial t} + u_r \frac{\partial u_z}{\partial r} + u_z \frac{\partial u_z}{\partial z} \right) = -\frac{\partial p}{\partial z} + \mu \left\{ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial u_z}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} \right\} - \rho g \quad (\text{I.4})$$

Pour l'équation de continuité

$$\frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r u_r) = 0 \quad (\text{I.5})$$

Les échelles caractéristiques du problème sont le diamètre initial  $D_0$  pour la longueur, la vitesse d'impact  $U$  pour la vitesse (quelque soit la direction),  $\frac{\sigma}{D_0}$  pour la pression et  $\frac{D_0}{U}$  pour le temps. Cette échelle temporelle est basée sur les grandeurs liées à l'inertie du problème,

plutôt que sur les grandeurs physico-chimiques. Nous verrons dans la suite que ce choix d'échelle est particulièrement bien adapté au problème. Chacun des termes des équations I.3, I.4 et I.5, sous leur forme sans dimension (noté par un étoile « \* »), sont donnés dans le système I.6 :

$$\left\{ \begin{array}{l} u_r = U u_r^*; u_z = U u_z^*; \\ r = D_0 r^*; z = D_0 z^*; t = \frac{D_0}{U} t^* \\ \frac{\partial u_r}{\partial t} = \frac{U^2}{D_0} \frac{\partial u_r^*}{\partial t^*}; \frac{\partial u_z}{\partial t} = \frac{U^2}{D_0} \frac{\partial u_z^*}{\partial t^*} \\ \frac{\partial u_r}{\partial r} = \frac{U}{D_0} \frac{\partial u_r^*}{\partial r^*}; \frac{\partial u_r}{\partial z} = \frac{U}{D_0} \frac{\partial u_r^*}{\partial z^*}; \frac{\partial p}{\partial r} = \frac{\sigma}{D_0^2} \frac{\partial p^*}{\partial r^*}; \frac{\partial p}{\partial z} = \frac{\sigma}{D_0^2} \frac{\partial p^*}{\partial z^*} \\ \frac{\partial u_z}{\partial r} = \frac{U}{D_0} \frac{\partial u_z^*}{\partial r^*}; \frac{\partial u_z}{\partial z} = \frac{U}{D_0} \frac{\partial u_z^*}{\partial z^*} \\ \frac{\partial^2 u_r}{\partial z^2} = \frac{U}{D_0^2} \frac{\partial^2 u_r^*}{\partial z^{*2}}; \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} = \frac{U}{D_0^2} \frac{\partial^2 u_z^*}{\partial z^{*2}} \end{array} \right. \quad (I.6)$$

En remplaçant dans les équations I.3, I.4 et I.5, nous obtenons :

Suivant la composante r :

$$\frac{\partial u_r^*}{\partial t^*} + u_r^* \frac{\partial u_r^*}{\partial r^*} + u_z^* \frac{\partial u_r^*}{\partial z^*} = -\frac{1}{We} \frac{\partial p^*}{\partial r^*} + \frac{1}{Re} \left\{ \frac{\partial}{\partial r^*} \left[ \frac{1}{r^*} \frac{\partial}{\partial r^*} (r^* u_r^*) \right] + \frac{\partial^2 u_r^*}{\partial z^{*2}} \right\} \quad (I.7)$$

Suivant le composante z

$$\frac{\partial u_z^*}{\partial t^*} + u_r^* \frac{\partial u_z^*}{\partial r^*} + u_z^* \frac{\partial u_z^*}{\partial z^*} = -\frac{1}{We} \frac{\partial p^*}{\partial z^*} + \frac{1}{Re} \left\{ \frac{1}{r^*} \frac{\partial}{\partial r^*} \left( r^* \frac{\partial u_z^*}{\partial r^*} \right) + \frac{\partial^2 u_z^*}{\partial z^{*2}} \right\} - \frac{1}{Fr} \quad (I.8)$$

Pour l'équation de continuité

$$\frac{\partial^2 u_z^*}{\partial z^{*2}} + \frac{1}{r^*} \frac{\partial}{\partial r^*} (r^* u_r^*) = 0 \quad (I.9)$$

Les nombres sans dimensions de Weber, de Reynolds, de Bond et de Froude apparaissent. De plus, il faut également tenir compte du nombre de Mach (rapport de la vitesse caractéristique de l'écoulement sur la vitesse du son dans le milieu) pour savoir si l'acoustique intervient dans le problème. Ces nombres sont définis par :

$$We = \frac{\rho D_0 U^2}{\sigma}, \quad Re = \frac{\rho D_0 U}{\mu}, \quad Mc = \frac{U}{c}, \quad Fr = \frac{U^2}{g D_0} \quad (I.10)$$

Le tableau ci-dessous présente les nombres sans dimension dans le cas d'une macrogoutte et d'une microgoutte.

	We	Re	$M_c$	$F_r$
$D_0 = 2\text{mm}$ , $U = 0.5\text{m/s}$ , $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ , $\mu = 1\text{ mPa.s}$ $\sigma = 73\text{mN/m}$	6.8	1000	$3.3 \cdot 10^{-4}$	12.7
$D_0 = 50\mu\text{m}$ , $U = 5\text{m/s}$ , $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ , $\mu = 10\text{ mPa.s}$ $\sigma = 30\text{mN/m}$	41	25	$3.3 \cdot 10^{-4}$	$5.1 \cdot 10^4$

**Tableau I.1 : Nombres sans dimensions du problème dans le cas d'une macrogoutte et d'une microgoutte.**

Dans tous les cas, le nombre de Froude est important, ce qui traduit que l'inertie est prépondérante devant l'effet gravitationnel. Par conséquent, ce nombre sera négligé par la suite. De la même manière, le nombre de Mach est très faible ce qui signifie que les effets acoustiques ne sont pas à prendre en compte. Seuls les nombres de Weber et de Reynolds seront conservés comme paramètres du problème. Les angles de contact sont des paramètres sans dimensions et ne seront pas modifiés.

Revenons sur le choix de l'échelle de temps qui est un des éléments les plus importants. Deux échelles de temps peuvent être construites à partir des paramètres du problème. Une échelle basée sur les grandeurs physico-chimique du fluide ( $\sigma$ ,  $\rho$  et  $D_0$ ) et une échelle basée sur les paramètres inertiels ( $D_0$  et  $U$ ). Les temps caractéristiques physico-chimique et inertiel ont respectivement pour forme :

$$t_{pc} = \sqrt{\frac{\rho D_0^3}{\sigma}} \quad (\text{I.11})$$

$$t_i = \frac{D_0}{U} \quad (\text{I.12})$$

La principale différence entre ces deux échelles de temps est liée à la prise en compte de l'effet de vitesse d'impact. Cette vitesse, et la phase de l'étalement qui lui est associée, conditionnent l'évolution globale de l'étalement. Les figures I.5.a et I.5.b présentent la superposition de l'impact à 0.35m/s et 1m/s d'une goutte d'eau distillée sur une surface d'angle d'équilibre  $35^\circ$ , avec en abscisse, le temps adimensionné par respectivement le temps inertiel et le temps physico-chimique, et représenté en échelle logarithmique. La figure I.5.a montre la superposition parfaite dans l'ensemble du régime inertiel alors que la

représentation avec l'échelle physico-chimique ne permet pas d'observer une tendance maîtresse. Le temps caractéristique de la phase d'étalement est  $t_c = \frac{D_0}{U}$  ([Rioboo et al, 2002 ; Roisman et al, 2002 ; Sikalo et al, 2002 ; Park et al, 2002 ; Allaman et al, 2003]). En 2004, une étude portant sur l'impact de gouttes de fluide de faible viscosité (eau distillée et mercure) sur des surfaces super hydrophobes ([Clanet et al, 2004]) montre expérimentalement que le diamètre maximal en fin de régime inertiel est proportionnel à  $We^{1/4}$ . Les auteurs obtiennent l'accélération caractéristique  $U^2/D_0$  à partir des grandeurs inertielles. En injectant cette accélération dans la longueur capillaire et en utilisant une conservation du volume, ils obtiennent la formule attendue. Les liquides plus visqueux et les surfaces moins mouillantes ne sont pas explorés, cette approche confirme théoriquement le choix de  $D_0/U$  comme échelle de temps.

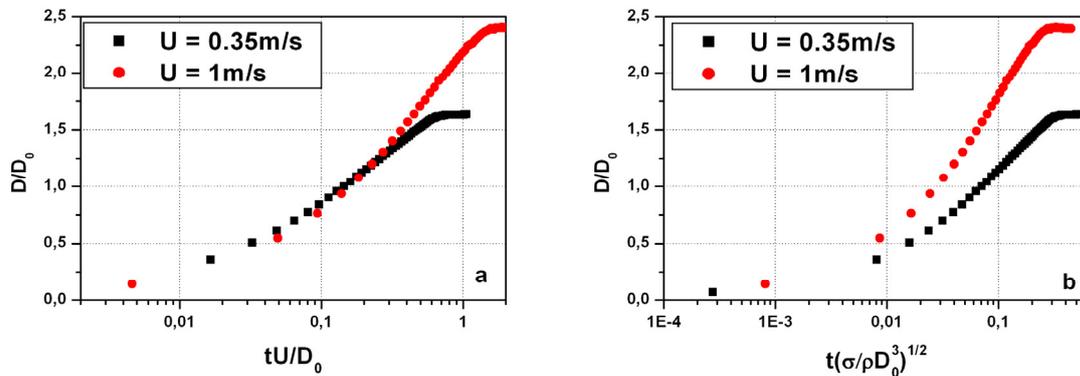


Figure I.5 : Choix de l'échelle de temps caractéristique (a) échelle inertielle et (b) échelle physico-chimique.

Dans [Holman et al, 2002 ; Heilmann, 2001 ; Starov et al, 2002], les auteurs, qui n'avaient pas noté la présence de plusieurs phases dans le phénomène d'étalement, utilisaient une échelle de temps caractéristique pour l'impact, basée sur les grandeurs physico-chimiques du liquide dans le but de caractériser l'étalement capillaire. Bien que dans ce régime, cette échelle semble plus adaptée (seules la tension de surface et la viscosité interviennent) la goutte garde la mémoire des étapes précédentes par lesquelles elle est passée. En conséquence, l'inertie ne peut pas être occultée et l'échelle temporelle reste le temps caractéristique inertiel.

Malgré l'analyse dimensionnelle, le nombre de paramètres reste important. En 1997, Schiaffino et Sonin ([Schiaffino & Sonin, 1997]) publient une étude sur l'impact de gouttes sur des surfaces sèches en minimisant tour à tour l'influence de chaque paramètre. Ils proposent notamment un diagramme de classification du type d'impact prédisant les forces

prépondérantes et les échelles de temps (figure I.6). Tous les cas d'impact ne peuvent pas être considérés de la même manière. Ce diagramme se présente en fonction du nombre de Weber et du nombre d'Ohnesorge et est composé de 4 régions (figure I.6). Le nombre d'Ohnesorge est le rapport des forces visqueuses sur les forces de tension superficielle et il est défini par

$$Oh = \frac{\mu}{\sqrt{\rho D_0 \sigma}} = \frac{\sqrt{We}}{Re}$$

Le nombre de Weber représente les forces qui contrôlent l'étalement alors que le nombre d'Ohnesorge représente celles qui s'y opposent. Les auteurs précisent qu'à nombre de Weber important, l'écoulement radial de la goutte sur la surface est induit par la pression due à l'impact et l'inertie alors qu'à nombre de Weber faible, c'est la force non compensée de Young au niveau de la ligne de contact qui contrôle l'étalement. Dans le même ordre d'idée, pour les nombres d'Ohnesorge importants c'est la viscosité qui s'oppose à l'étalement et pour les valeurs du nombre d'Ohnesorge faibles, c'est l'inertie qui joue ce rôle.

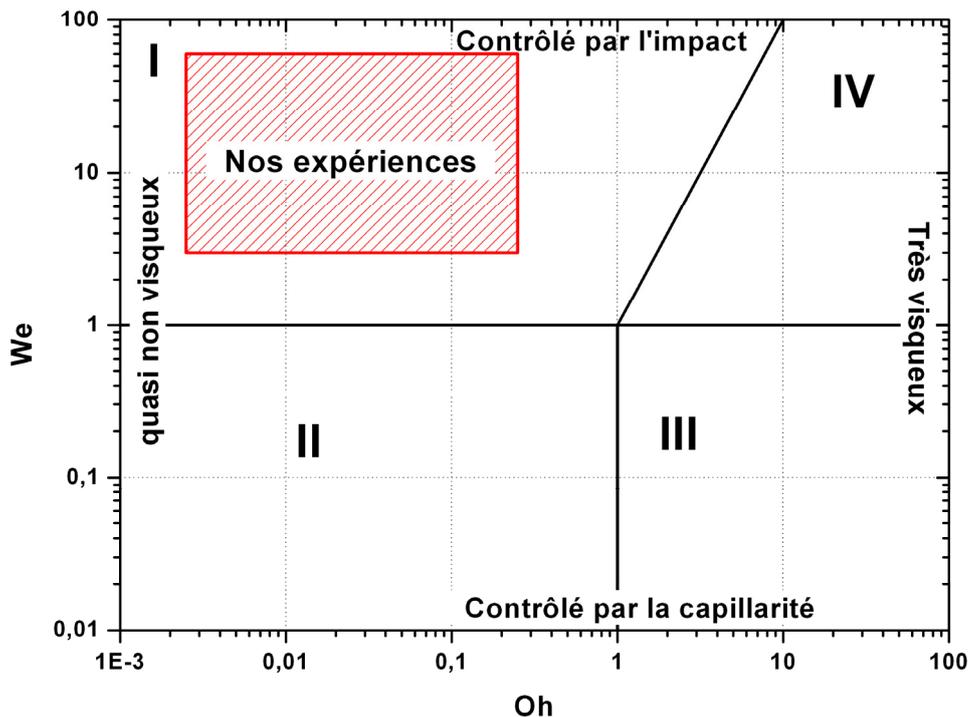


Figure I.6 : Classification du type d'impact dans le plan Ohnesorge-Weber (reproduit à partir de [Schiaffino et Sonin, 1997]).

Dans la région I, l'écoulement est contrôlé par la pression due à l'impact et c'est l'inertie qui s'oppose à l'étalement. L'échelle caractéristique de vitesse est la vitesse d'impact  $U$  et

l'échelle de temps est  $D_0/U$ . Les auteurs précisent que la viscosité n'intervient que pour atténuer l'amplitude des oscillations de la goutte et/ou à la fin de l'étalement. Cela correspond à des temps supérieurs à  $D_0/U$  et donc à la phase d'étalement. Dans la région II, l'effet de la vitesse d'impact est négligeable. Les forces capillaires non compensées contrôlent l'étalement et l'inertie est toujours le terme qui s'oppose à l'écoulement. L'échelle de temps est  $\sqrt{\frac{\rho D_0^3}{\sigma}}$  et celle de vitesse est  $\sqrt{\frac{\sigma}{\rho D_0}}$ . Comme dans la région I, les effets visqueux interviennent en fin d'étalement pour ralentir l'écoulement. Dans la région III, la capillarité force l'étalement et la viscosité s'y oppose. Les effets de la vitesse d'impact sont négligeables. Nous nous trouvons dans le cas du dépôt d'une goutte de fluide très visqueuse sur un substrat solide et avec pour échelle de temps  $\mu D_0/\sigma$  et pour échelle de vitesse  $\sigma/\mu$ . Enfin, dans la région IV, l'inertie conduit l'écoulement et la viscosité s'y oppose. Les échelles caractéristiques sont  $\frac{\mu}{\rho U^2}$  et  $\frac{\rho D_0 U^2}{\mu}$  pour respectivement le temps et la vitesse. Toutes ces échelles sont regroupées dans le tableau suivant.

Région	Echelle de temps (s)	Echelle de vitesse (m/s)	Force de contrôle	Force de résistance
I	$\frac{D_0}{U}$	U	Pression due à l'impact	Inertie
II	$\sqrt{\frac{\rho D_0^3}{\sigma}}$	$\sqrt{\frac{\sigma}{\rho D_0}}$	Capillarité	Inertie
III	$\frac{\mu D_0}{\sigma}$	$\frac{\sigma}{\mu}$	Capillarité	viscosité
IV	$\frac{\mu}{\sigma U^2}$	$\frac{\rho D_0 U^2}{\mu}$	Pression due à l'impact	viscosité

Tableau I.2 : Echelles de temps et de vitesse pour les différentes zones du diagramme Ohnesorge-Weber.

Dans la phase d'étalement, et pour l'ensemble de nos expériences, l'inertie de la goutte contrôle l'étalement et le couple tension de surface / viscosité s'y oppose. La conservation d'une expérience à l'autre des nombres de Weber et de Reynolds nous assure la

reproductibilité des résultats. L'étude de chacun des paramètres indépendamment pose un problème expérimental. En pratique, il est très difficile d'obtenir exactement les mêmes couples ( $We$  ;  $Re$ ) pour deux expériences différentes, à plus forte raison lorsque l'un des deux paramètres doit être conservé. Il faut alors se « contenter » de nombres sans dimension proches. Le mélange d'eau distillée et de glycérol permet de faire varier la viscosité de 1 à 100mPa.s en diminuant la tension de surface de 73 à 68mN/m. Pour des vitesses d'impact de 0.35 et 1m/s, les nombres de Weber sont respectivement de 4 ( $\pm 7.5\%$ ) et 35 ( $\pm 5\%$ ). La figure I.7 présente les résultats d'impact obtenus à partir de ce mélange à différentes concentrations.

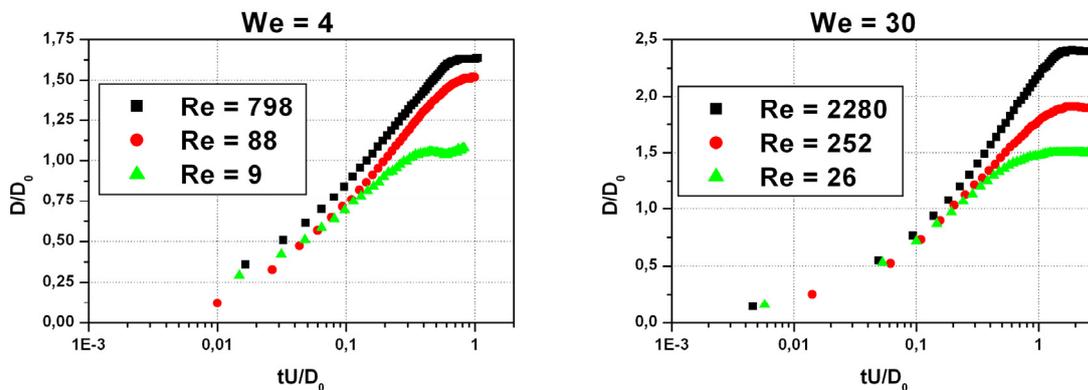


Figure I.7 : Effet du nombre de Reynolds sur l'évolution du diamètre de contact.

Plus la vitesse est importante (plus  $Re$  est fort) et plus les courbes se séparent tard ( $t/t_i = 0.2$  à  $U = 0.35\text{m/s}$  et  $t/t_i = 0.4$  à  $U = 1\text{m/s}$ ). L'étalement maximum est également atteint plus tard pour les  $Re$  supérieurs. Cela confirme l'influence de la viscosité sur les temps courts de l'étalement. Malgré la qualité du travail réalisé dans l'étude de Schiaffino et Sonin, les temps auxquels les effets visqueux interviennent n'ont pas été correctement estimés au moins dans la région I. Dans cette région, où se trouve l'ensemble de nos expériences, la viscosité n'intervient pas uniquement à la fin de l'étalement mais également sur des temps de l'ordre de  $D_0/U$ . Il faut remarquer la position centrale de nos expériences dans la région I du diagramme  $We$ - $Oh$ . Il ne s'agit donc pas d'effets liés à la proximité avec les autres régions.

### Mouillage et démouillage

Comme nous l'avons précédemment évoqué, plusieurs paramètres interviennent dans le phénomène d'impact. La présence d'une vitesse à l'instant où la goutte entre en contact avec la surface influence son évolution. Pour une vitesse faible, les forces physico chimiques

domineront mais pour des vitesses plus importantes, l'inertie doit être prise en compte. La mouillabilité de la surface joue également un rôle important. Elle traduit l'aptitude d'un fluide à s'étaler sur une surface, elle est représentée par l'angle à l'équilibre et caractérise l'interaction fluide / substrat. L'état d'équilibre et le comportement dynamique de l'étalement ne peuvent pas être séparés. Pour que la goutte arrive à son état d'équilibre, elle doit passer par un certain nombre d'états transitoires qui sont contrôlés par l'interaction liquide / solide. De la même façon, son état statique est prédéterminé et inévitable. Quelles que soient les conditions expérimentales, les états intermédiaires conduisent systématiquement au même état final.

### Mouillabilité : état d'équilibre

Lorsqu'une goutte de fluide est déposée (ou impacte) sur une surface solide, elle va plus ou moins s'y étaler. Dans le cas de mouillage total, la goutte s'étale continuellement jusqu'à obtenir une couche de fluide monomoléculaire (pourvu que la surface soit suffisamment grande, [Adler, 2003]).

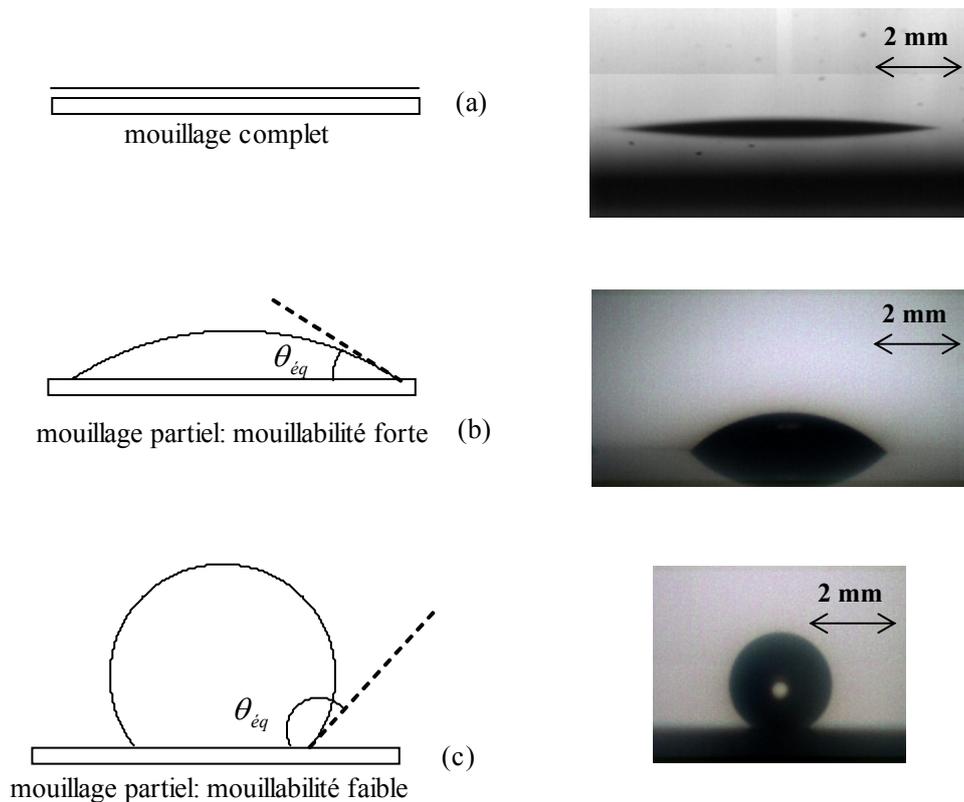


Figure I.8: 3 Cas de mouillabilité : (a) mouillage parfait ( $\theta_{eq} = 0^\circ$ ), (b) mouillage partiel fort ( $\theta_{eq} < 90^\circ$ ) et (c) mouillage partiel faible ( $\theta_{eq} > 90^\circ$ ).

A l'inverse, si l'étalement n'est que partiel, la goutte prendra la forme d'une calotte sphérique (figure I.8). Dans ce système, trois phases sont en présence, la phase solide, la phase gazeuse et la phase liquide. La coexistence de ces trois phases forme « la ligne de contact » à partir de laquelle l'interface liquide / gaz forme avec le substrat un angle de contact  $\theta_{eq}$ . Cet angle de contact caractérise la mouillabilité du système. A partir d'un équilibre des forces de tension superficielle de chacune des interfaces, Young établit l'équation statique suivante :

$$\sigma_{SG} - \sigma_{SL} = \sigma_{LG} \cos \theta_{eq} \quad (I.13)$$

où  $\sigma_{SG}$  est la tension superficielle à l'interface solide / gaz,  $\sigma_{SL}$  à l'interface solide / liquide et  $\sigma_{LG}$  à l'interface liquide / gaz (aussi appelée tension superficielle du fluide et noté simplement  $\sigma$ ). Cette équation n'est vraie qu'à l'état final et ne traduit donc qu'une partie du problème. Cependant, ce sont les seules indications disponibles simplement. Par ailleurs, il faut remarquer que cette équation ne prédit l'existence que d'une solution unique pour un système liquide / gaz / solide donné. Expérimentalement, un hystérésis de l'angle de contact d'équilibre est observable qui est généralement attribué à l'état de surface (rugosités ou hétérogénéités chimiques). La valeur inférieure de cette plage d'angle d'équilibre est appelée angle de recul, noté  $\theta_r$  et correspond à l'angle à partir duquel le fluide va démoillir la surface. De la même manière, la valeur supérieure de cette plage d'angle d'équilibre est appelée angle d'avancée, noté  $\theta_a$ , et correspond à l'angle à partir duquel le fluide va mouiller la surface. L'hystérésis est donc la différence entre  $\theta_a$  et  $\theta_r$ .

### **Effet de la vitesse d'impact**

Dès lors que l'on s'intéresse aux états de la goutte avant d'arriver à l'équilibre, il faut tenir compte des conditions expérimentales. En particulier, la valeur de la vitesse d'impact (très faible ou non) est un des éléments qui a une très grande importance. La figure I.9 présente le cas du dépôt d'une goutte d'eau distillée de 2.28mm sur une surface de silicium traitée chimiquement pour obtenir un angle d'équilibre de 50°. Les déformations sont relativement faibles, la goutte conserve une forme de sphère tronquée et l'étalement est contrôlé par la physico-chimie du problème (figure I.9). Sur les premières images (du dépôt à 1.2ms), nous observons qu'à partir du contact avec la surface, la goutte commence son étalement et sa forme schématisée est celle d'un champignon. Le mouillage de la surface fait apparaître une onde qui se propage et remonte le long de la surface libre. A partir de 2.2ms (image numéro 7), le diamètre de contact est supérieur au diamètre initial de la goutte et sa forme générale

s'approche de celle d'un cylindre vertical. Notons également la présence des ondulations dues à l'onde de choc au sommet de la goutte. Le liquide continue de mouiller la surface et la goutte s'affine sur sa partie supérieure (image 10, 3.7ms). A 5.2ms, la goutte prend grossièrement la forme d'une pyramide de révolution et sa partie haute à descendre vers la surface. A 7ms, la goutte a la forme d'une sphère tronquée et à 11ms elle a atteint son diamètre d'équilibre final. Quelques oscillations au sommet de la goutte sont visibles et sont amorties au cours du temps par la viscosité du liquide. A 500ms, la goutte est dans son état d'équilibre.

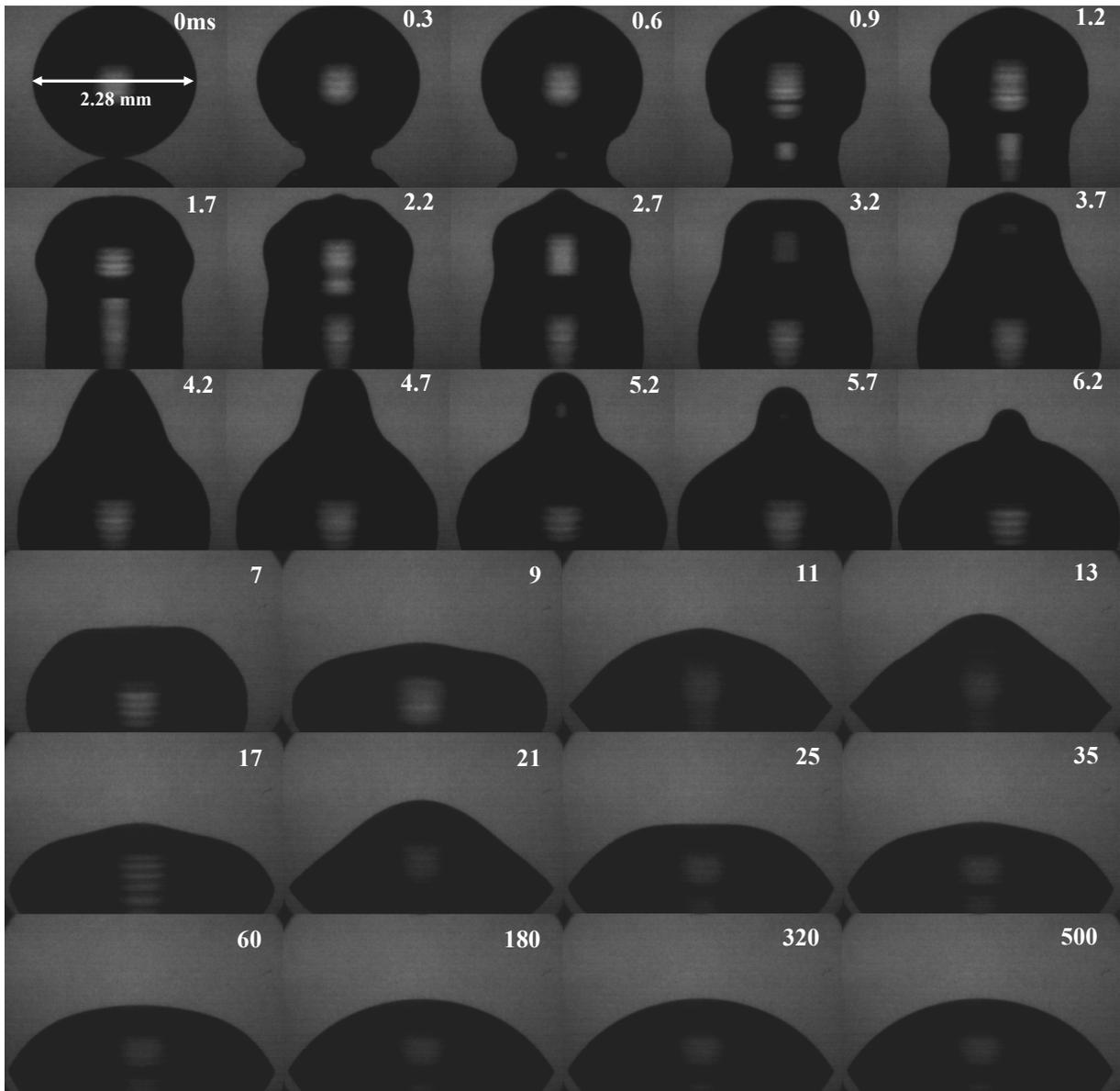


Figure I.9 : Camera NAC et intensificateur de lumière Hamamatsu, temps d'obturation = 200ns, Eau distillée,  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ , dépôt,  $\theta_{\text{eq}} = 55^\circ$ .

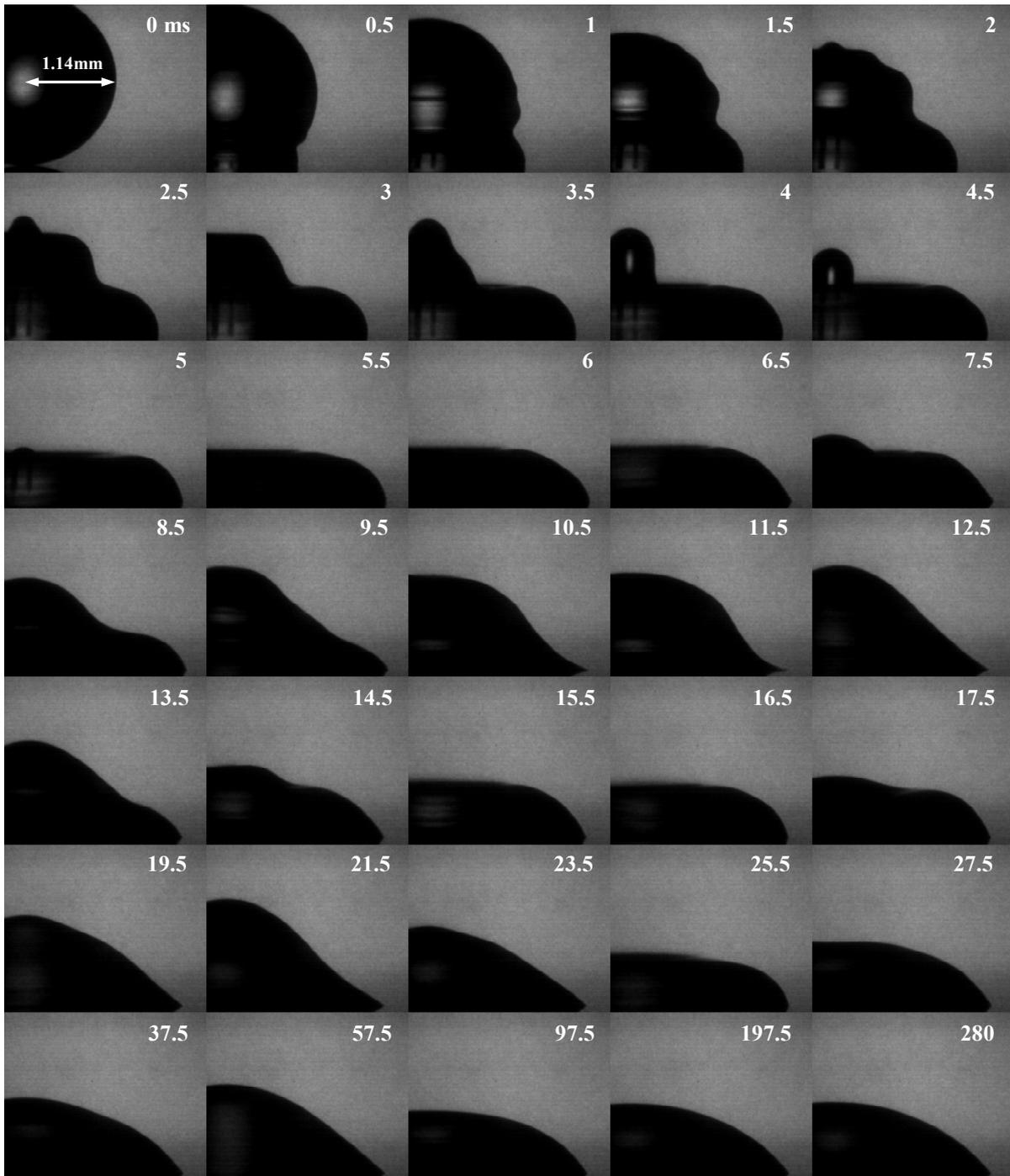


Figure I.10 : Camera NAC et intensificateur de lumière Hamamatsu, temps d'obturation = 200ns, Eau distillée,  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 72\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $U = 0.3\text{m/s}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 50^\circ$ .

En comparaison, la présence d'une vitesse supérieure fait apparaître des déformations plus importantes au niveau de la surface libre et l'inertie de la goutte force le mouillage de la surface (figure I.10). Dans ce cas là aussi, la présence d'un pied à la base de la goutte est noté (image numéro 2 ; [Roux & Cooper, 2004]). A 1ms, le diamètre de contact a excédé le

diamètre initial et la goutte est sous la forme d'une sphère tronquée surmontant un cylindre. Notons également la présence de l'onde due au choc qui remonte vers le haut de la goutte. Des déformations beaucoup plus importantes que dans le cas du dépôt sont observables et le diamètre de contact augmente beaucoup plus rapidement. A partir de 5ms, la goutte prend la forme d'un cylindre écrasé et garde cette forme jusqu'à 7.5ms où il est possible de voir apparaître une partie du fluide qui remonte. A cet instant, la goutte a atteint son diamètre maximum et ne s'étalera plus pendant plusieurs millisecondes. La remontée du fluide au centre de la goutte entraîne l'apparition d'un angle de contact très faible à 11.5ms ainsi qu'un léger démoillage car cet angle est inférieur à l'angle de reculée (selon les expériences, ce démoillage peut être plus important). La contraction à la base de la goutte et la diminution de la hauteur au centre conduisent à un angle supérieur à l'angle d'avancée ; la goutte va s'étaler de nouveau. Les oscillations vont se poursuivre, de même que l'étalement, pour conduire la goutte jusqu'à son état final à 280ms environ (soit deux fois plus tôt que dans le cas du dépôt).

### **Cas du dépôt (Vitesse faible)**

La variation du diamètre, de la hauteur et de l'angle de contact au cours du temps rendent le problème étudié complexe. Les paramètres qui influencent les mouvements de la ligne de contact sont nombreux et leurs effets n'ont pas été quantifiés avec précision. Citons, par exemple, le caractère de mouillabilité complet ou partiel de la surface. A ces considérations s'ajoute le problème de la mesure de l'angle de contact. De nombreux auteurs s'accordent à dire que l'angle mesuré habituellement correspond à l'angle observé à quelques dizaines voire quelques centaines de  $\mu\text{m}$  du substrat ([Shikhmurzaev, 1993]). Il s'agit dans ce cas d'un angle macroscopique. Il ne représente pas la réelle interaction liquide / solide. Pour cela, il faudrait mesurer l'angle au niveau du film précurseur soit à quelques dizaines ou centaines de nanomètres. Les mécanismes au niveau de la ligne triple restent toujours ouverts et sujets à discussions. Enfin, le problème de cet angle dans le cas particulier de l'étalement d'une goutte avec une vitesse d'impact a été peu ou pas abordé dans la littérature. Les études et les modèles concernés s'attachent uniquement au cas du dépôt d'une goutte ou au déplacement lent d'un liquide dans un capillaire. De nombreux modèles existent dans la littérature ([Hoffman, 1975 ; Tanner, 1979 ; Sciffer, 2000]) et nous présentons ici quelques uns des modèles les plus connus.

Une des représentations la plus souvent citée en référence pour l'évolution de l'angle de contact en fonction du mouvement de la ligne triple est celle due à Hoffman ([Hoffman,

1975]). Il publia des travaux complets au terme desquels il proposa une loi d'évolution pour cet angle. Il effectua des mesures d'angle de contact sur un liquide avançant dans un capillaire en verre mais sans faire intervenir l'équilibre entre la tension de surface et la viscosité. Cette loi s'écrit :

$$\theta = f_{Hoff} [Ca + f_{Hof}^{-1}(\theta_0)] \quad (I.14)$$

où  $\theta_0$  est l'angle de contact à l'équilibre,  $Ca$  est le nombre capillaire lié au déplacement de la ligne triple et défini par  $\mu U_{LT}/\sigma$  et  $f_{Hoff}^{-1}$  est la fonction inverse de la fonction d'Hoffman définie par l'équation suivante.

$$f_{Hoff}(x) = ar \cos \left\{ 1 - 2 \tanh \left[ 5.16 \left( \frac{x}{1 + 1.31x^{0.99}} \right)^{0.706} \right] \right\} \quad (I.15)$$

La corrélation avec les mesures expérimentales est très bonne ([Hoffman, 1975, Sciffer, 2000]) cependant, on remarquera que le problème de l'impact est radicalement différent. Les mesures ont été effectuées dans un état quasi statique, c'est à dire à des vitesses de déplacement très faibles, donc à des nombres capillaires faibles ( $Ca \ll 1$ ). Ceci est contradictoire avec la phénoménologie de l'impact. En effet, aux premiers instants de l'impact, les mesures de vitesses de la ligne de contact conduisent à des nombres capillaires de l'ordre de 10, ce qui exclut l'utilisation de cette loi dans les modèles ou pour représenter l'angle dynamique. Par ailleurs, dans le cas de l'avancée d'un liquide dans un tube, la surface ne subit que peu de déformation. Plus généralement la forme de l'écoulement est différente, soit longitudinale dans [Hoffman, 1975] et radiale dans le cas du dépôt ou de l'impact.

Dans un ouvrage, Middleman ([Middleman, 1995]) reprend les principaux résultats de la littérature concernant l'évolution de la ligne de triple au cours du temps dans la configuration de dépôt. Il rappelle notamment que la vitesse de la ligne de contact et l'angle de contact sont reliés par la formule de la loi de Tanner ([Tanner, 1979]) suivante :

$$\theta_d = \alpha Ca^{\frac{1}{3}} \quad (I.16)$$

où  $Ca$  est le nombre capillaire défini comme précédemment et  $\alpha$  un coefficient d'ajustement donné à 3.4. Remarquons que cette loi ne tient aucun compte de l'angle d'équilibre et qu'elle n'est pas limitée pour les nombres capillaires importants de sorte à ne pas excéder  $180^\circ$ . En utilisant une équation fonction de l'angle de contact comme approximation du volume de la goutte et en remplaçant la vitesse de la ligne de contact par  $\frac{dR}{dt}$ , nous établissons une

équation différentielle sur le rayon de contact. L'intégration de cette équation est possible et conduit à :

$$R(t) = 0.94 \left( \frac{\sigma V^3 t}{\mu} \right)^{\frac{1}{10}} \quad (\text{I.17})$$

où  $V$  est le volume initial de la goutte. Ce résultat est en adéquation avec les mesures expérimentales et nous montrerons que, dans le régime capillaire (définition dans la partie suivante) pour le cas de l'impact d'une goutte sur une surface quasi parfaitement mouillante, cette formule reste vraie. Cependant, il faut préciser que le cas partiellement mouillant n'est pas considéré dans ces travaux. [De Ruijter et al, 1999] mettent théoriquement en évidence la présence de plusieurs régimes toujours dans le cas du dépôt mais dans une configuration de mouillage partiel. Dans les cas où l'angle d'équilibre est inférieur à  $90^\circ$  et où l'angle dynamique est suffisamment faible, un développement de Taylor du second ordre est acceptable et conduit à une équation avec deux composantes. Si, quand la seconde composante domine (c'est à dire sur les temps plus longs), nous obtenons un comportement asymptotique identique à celui donné par l'équation I.11, la tendance est différente lorsque la première composante prévaut. Dans ce cas, les auteurs proposent une solution sous la forme d'une loi de puissance  $1/7$  pour le rayon de contact et  $-3/7$  pour l'angle de contact. Les relations sont respectivement données par l'équations I.18 et I.19 :

$$R(t) \approx \left( \frac{2V}{\pi} \right)^{\frac{2}{7}} \left( \frac{14\sigma t}{\mu} \right)^{\frac{1}{7}} \quad (\text{I.18})$$

$$\theta_d \approx 2 \left( \frac{2V}{\pi} \right)^{\frac{2}{7}} \left( \frac{14\sigma t}{\mu} \right)^{-\frac{3}{7}} \quad (\text{I.19})$$

Enfin, un troisième régime, dit de relaxation, est identifié et est fonction de l'angle de contact d'équilibre. Les auteurs précisent que ce régime fait le raccordement avec l'état d'équilibre final. Le rayon de contact s'exprime comme suit :

$$R(t) = R_{\text{éq}} - \delta R(t) \quad (\text{I.20})$$

avec  $\delta R(t) = \exp\left(-\frac{t}{T}\right)$  et  $T = \frac{\mu R_{\text{éq}}}{3\sigma\theta_{\text{éq}}} \left[ \delta + \frac{8 \ln\left(\frac{3V}{\pi a^3 \theta_{\text{éq}}}\right)}{3\theta_{\text{éq}}} \right]$  et où  $a$  et  $\delta$  sont des coefficients

d'ajustements variables en fonction de l'approche (hydrodynamique ou moléculaire). Toutefois, les résultats expérimentaux présentés dans ces travaux se limitent à des

mouillabilités fortes avec  $\theta_{\text{éq}} = 0.1^\circ$ . Nous pouvons cependant supposer que ce modèle reste valable pour des mouillabilités moindres (mais avec  $\theta_{\text{éq}} < 90^\circ$  pour vérifier les hypothèses du modèle). De plus, les auteurs donnent des équations pour déterminer les différents temps qui définissent les différents régimes mais ils ne précisent pas clairement de différence entre  $\theta_d$  et  $\theta_{\text{éq}}$  à partir de laquelle le régime de relaxation doit être considéré ( $\theta_d$  est l'angle de contact au cours du temps (ou dynamique) et  $\theta_{\text{éq}}$  est l'angle à l'équilibre). Ils se limitent uniquement à préciser que cette différence doit être suffisamment faible.

Une approche plus récente ([Sciffer, 2000]), reprend les hypothèses de [Shikmurzaev, 1993] selon lesquelles la tension de surface à l'interface varie avec la densité interfaciale. Par suite, l'écoulement dans le volume provoque des contraintes de cisaillement interfaciales ([Blake, 1988]) et ce sont les transferts de masse du volume vers l'interface qui rétablissent l'équilibre de la densité interfaciale loin de la ligne de contact. [Sciffer, 2000] propose une relation linéaire entre la contrainte de cisaillement et la tension interfaciale pour traduire ces contraintes de cisaillement :

$$\sigma = \sigma_0 + \beta\tau \tag{I.21}$$

ou  $\sigma_0$  est la tension de surface sans contrainte,  $\tau$  correspond à la contrainte de cisaillement et  $\beta$  est une constante.

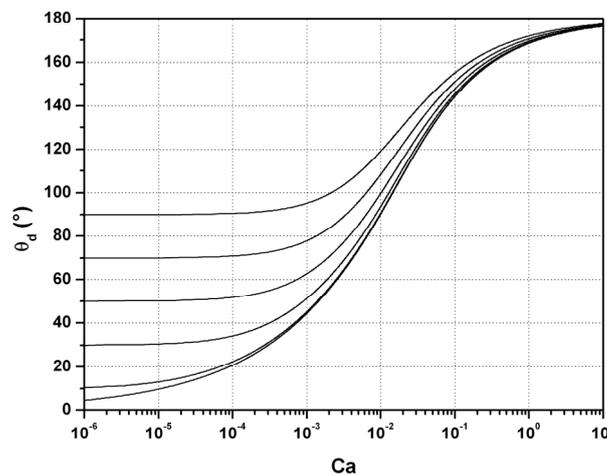


Figure I.11 : Modèle de [Sciffer, 2000] pour différents angles d'équilibre.

En reprenant des travaux antérieurs combinés à l'hypothèse selon laquelle la tension de surface à l'interface solide/gaz est négligeable ([Shikmurzaev, 1993]), on obtient finalement :

$$\cos\theta_d - \cos\theta_{\text{eq}} = \frac{4\beta}{r_c} \frac{\sin^2\theta_d}{\sin 2\theta_d - 2\theta_d} \quad (\text{I.22})$$

avec  $r_c$  l'échelle de longueur de la ligne de contact. Ce modèle présente une très bonne adéquation avec les mesures de [Shikmurzaev, 1993] et [Hoffman, 1975]. Par ailleurs, l'angle d'équilibre intervient dans le modèle et les prévisions théoriques n'excèdent jamais la valeur de  $180^\circ$  (figure I.11). Nous verrons dans la suite que ce modèle est le plus adapté au cas de l'impact sur une surface fortement mouillante et pour des vitesses positives de la ligne de contact.

### Cas de l'impact (Vitesse non nulle)

De nombreuses limitations existent pour utiliser les lois présentées au paragraphe précédent dans le cas de l'impact. La plus évidente est la présence d'une vitesse initiale, qui force l'écoulement le long de la surface et qui n'est pas prise en compte dans ces modèles. Cela change le problème puisque le mouvement de la ligne triple n'est plus uniquement dû aux aspects de mouillabilité de la surface, notamment au début de l'impact.

Pendant longtemps, le phénomène d'impact a été découpé en deux phases. La première est dite inertielle (dissipation de l'inertie due à la chute par frottement et action des forces capillaires) et le diamètre évolue comme une fonction puissance 0.2 du temps. La seconde est une phase dite capillaire (étalement sous l'action de la tension de surface) et est identifiée au cas du dépôt d'une goutte sur des substrats totalement mouillants ([Heilmann et al, 2002 ; Holman, 2001 ; Starov et al, 2002]).

Cependant, des études expérimentales légèrement antérieures à [Heilmann et al, 2002 ; Holman, 2001 ; Starov et al, 2002] montrent l'existence d'un nombre supérieur de phases avec notamment l'existence d'une phase d'étalement inertiel dans les premiers instants de l'impact préalablement à la phase capillaire. [Mourougou-Candoni et al, 1997] ont réalisé une étude sur l'impact de gouttes composées d'eau distillée et de surfactant. La tension de surface du fluide a dès lors un comportement dynamique. Cependant, les courbes obtenues font apparaître de manière indiscutable un comportement radicalement différent de ce qui est observable dans [Heilmann et al, 2002 ; Holman, 2001 ; Starov et al, 2002]. Le diamètre de contact varie toujours comme une fonction puissance du temps mais dont la valeur est très différente. A partir des points expérimentaux donnés dans cet article, nous avons pu mesurer une puissance de l'ordre de 0.45. L'année suivante, [Range & Feuillebois, 1998] montrent un phénomène particulier pouvant survenir dans la phase d'étalement. Ils étudient l'impact de

gouttes d'un mélange d'eau distillée et glycérol sur divers substrats rugueux et déterminent expérimentalement le nombre de Weber critique à partir duquel la goutte éclate (phénomène de splashing) lors de son étalement. Ils montrent expérimentalement les perturbations que provoque la présence de rugosité sur la surface. Ils mettent également en avant que la viscosité du fluide n'intervient pas dans ce phénomène et qu'à partir de la conservation de la masse et de la quantité de mouvement, il est possible de prévoir le nombre de perturbations sur la surface. Cette étude est intéressante car elle se focalise en particulier dans la phase d'étalement de la goutte (c'est l'une des premières). Toutefois, ils ne tiennent pas compte du caractère mouillant ou non de la surface et la possibilité de rebond de la goutte n'est pas envisagée. De la même manière, dans les cas où l'éclatement n'apparaît pas, ils n'ont malheureusement pas suivi l'évolution du diamètre au cours du temps. D'un point de vue théorique, [Pasandideh-Fard et al, 1996], et plus récemment [Kim et al, 2000], proposent un évolution, dans les premiers instants pour le diamètre de contact, sous la forme  $D \approx t^n$  avec  $n = \frac{1}{2}$ , à partir de considérations géométriques.

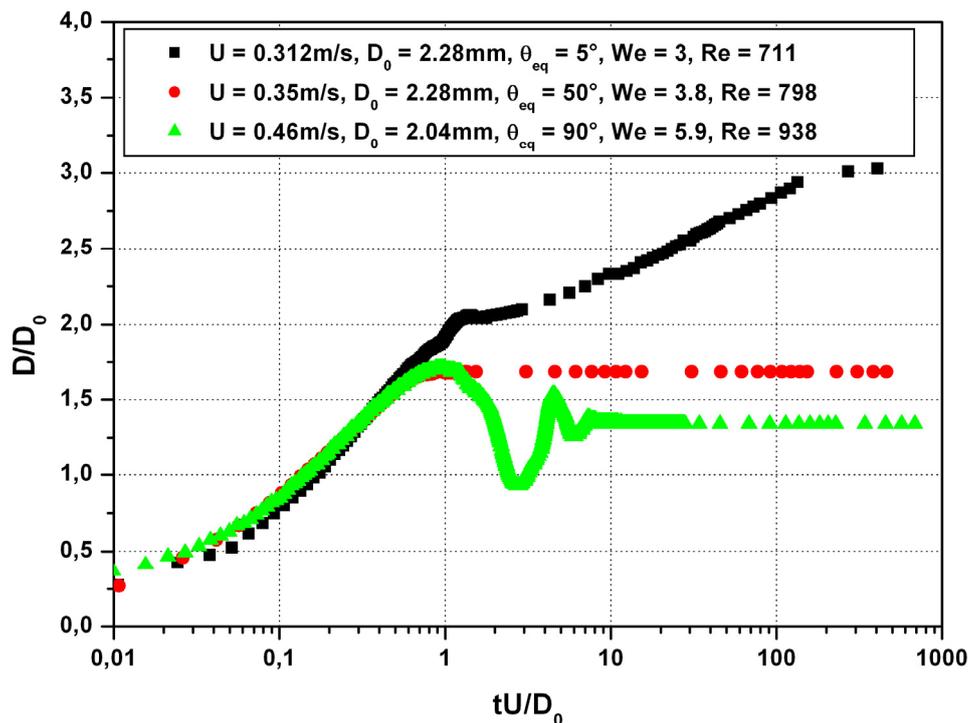


Figure I.12 : Trois types d'étalement possibles.

Il faut attendre 2002 et l'étude [Rioboo et al, 2002] pour avoir une cartographie précise de l'ensemble du phénomène d'impact. Les auteurs publient une étude complète sur l'impact de

nombreux liquides sur des surfaces différentes et où ils scindent l'impact en quatre parties parfaitement identifiables. [Roux & Cooper, 2004] présentent des travaux similaires sur l'impact d'une goutte d'eau distillée sur une plaque de verre et obtiennent des comportements identiques. Pour se convaincre de l'existence de ces quatre phases, observons l'évolution du diamètre de contact lors du processus d'impact et ce pour différentes mouillabilités (figure I.12). Sur cette figure, nous notons deux pentes significatives aux premiers instants et des différences importantes sur les temps longs (pas de modification, oscillations ou non évolution puis étalement) due essentiellement à la mouillabilité du système.

La première phase, dite cinématique (« kinetic » par référence aux travaux de [Rioboo et al, 2002]), se situe aux premiers instants après l'impact i.e. à  $t/t_i < 0.1$  ; où  $t_i$  est le temps caractéristique de l'impact. Durant l'ensemble de cette phase, la goutte ne subit que très peu de déformations et sa forme reste très proche de celle d'une sphère tronquée. Les forces de tension de surface et de viscosité sont négligées (nous nuancerons par la suite) devant les forces d'inertie qui contrôlent alors l'ensemble du processus. Suite à l'impact, une excroissance, appelée « lamelle », s'étend rapidement le long de la surface ([Rioboo, 2003 ; Roux & Cooper, 2004]). La présence de cette lamelle, ainsi que ses caractéristiques d'épaisseur et vitesse de déplacement, sont directement reliées à la tension de surface et la viscosité du liquide ainsi qu'à la mouillabilité de la surface. Dans certains cas extrêmes (forte viscosité), elle est difficilement observable mais la phénoménologie reste identique. A partir de ces observations, il est possible de construire un modèle géométrique simple en considérant l'expansion du diamètre comme l'intersection de la goutte avec le plan que forme la surface. Dans ce modèle, nous faisons l'hypothèse que la goutte traverse cette surface sans être influencée par la présence du substrat. Un développement limité au premier ordre de la formule obtenue prédit que le diamètre augmentera avec la racine carré du temps ( $D = 2\alpha t^{1/2}$ ) et un coefficient d'ajustement  $\alpha$  est utilisé pour s'assurer de la conservation de la masse (prise en compte du volume de liquide compressé et constitutif de la lamelle).

Dans un second temps, la goutte entre dans la phase dite d'étalement où la lamelle se développe complètement le long de la surface. Dès cet instant, la tension de surface et la viscosité vont intervenir pour contenir l'étalement et arrêter complètement la ligne triple. La goutte va alors atteindre une valeur limite, appelée étalement maximum et notée  $\beta_{\max}$ . Elle correspond au diamètre d'expansion maximum rapporté au diamètre initial de la goutte en vol. Plusieurs types de formules permettent la prédiction de l'évolution du diamètre jusqu'à cet étalement maximum. Citons en exemple [Pasandideh-Fard et al, 1996] qui représente la

goutte sous la forme d'une sphère tronquée surmontant un cylindre. Cette hypothèse conduit à l'équation suivante :

$$D(t) = D_{\max} \sqrt{\frac{3Ut}{8D_0}} \quad (I.23)$$

[Rioboo et al, 2002] montrent, à partir de mesures expérimentales, que l'évolution du diamètre de contact sous la forme loi  $D = 2\alpha t^{1/2}$  est valable en choisissant  $\alpha = 1.4$ .

Dans tous les cas, la connaissance de l'étalement maximum est nécessaire et sa comparaison avec le diamètre à l'équilibre final permet de caractériser le type d'étalement. De ce fait, de nombreux modèles ont été développés dans le but de le prédire.

Nous allons nous arrêter ici pour présenter trois modèles différents de par leur approche. [Asai et al, 1993] proposent un modèle semi-empirique basé sur un équilibre des énergies avant et après l'impact. Ils proposent une forme de solution à l'équation ainsi établie. Une régression à partir de résultats expérimentaux conduit à déterminer les 4 coefficients.

$$\frac{D_{\max}}{D_0} = 1 + 0,48We^{0,5} \exp(-1,48We^{0,22} Re^{-0,21}) \quad (I.24)$$

Les auteurs ne tiennent compte que des nombres adimensionnels de Reynolds et de Weber ; seule la tension de surface permet de traduire en partie l'interaction liquide/solide. Cette formule permet néanmoins d'obtenir simplement une valeur quantitativement proche de l'expérience et dans les cas à faible nombre de Reynolds, c'est à dire à viscosité forte ou dans le cas des microgouttes, elle donne de bons résultats (erreur inférieure à 10%).

Le modèle de [Pasandideh-Fard et al, 1996] est construit à partir de la conservation de l'énergie entre l'instant de l'impact (la goutte à la forme d'une sphère tronquée pénétrant dans un cylindre) et celui de l'étalement maximum (la goutte a la forme d'un cylindre). Nous développons ce modèle ici car nous utiliserons et modifierons par la suite un modèle dérivé direct, le modèle de [Ukiwe et Kwok, 2005]. L'équation d'équilibre énergétique est la suivante :

$$KE_1 + SE_1 = KE_2 + SE_2 + W \quad (I.25)$$

où  $KE_{1,2}$  et  $SE_{1,2}$  sont respectivement les énergies cinétiques et de surfaces de la goutte au début (1) et à la fin (2) de l'impact et  $W$  est le travail des forces de frottements. L'estimation des énergies à l'état initial est simple. A l'étalement maximum, la ligne triple ne se déplace plus ( $KE_2=0$ ) et la goutte à la forme d'une crêpe, ainsi  $SE_2$  est estimée par :

$$SE_2 = \frac{\pi}{4} D_{\max}^2 \sigma (1 - \cos \theta_a) + 2\pi h D_{\max} \sigma \quad (I.26)$$

où  $\theta_a$  est un angle avançant pendant la phase d'étalement. Dans cet article, cet angle d'avancée est donné constant à  $110^\circ$  mais aucune mesure précise, pour différents fluides sur différentes surfaces, n'a été effectuée. Il est également possible de discuter la validité de l'hypothèse d'état d'équilibre à l'étalement maximum et par suite de l'utilisation d'un angle différent de l'angle d'équilibre. En réalité (et les images expérimentales le prouvent), l'étalement maximum est un état transitoire durant lequel la goutte a une forme particulière sur un temps plus ou moins long (quelques dizaines à quelques centaines de microsecondes dans le cas des macrogouttes). Il est alors impossible de parler d'état statique, ce qui justifie la remarque des auteurs concernant le choix d'un angle « dynamique à l'étalement maximum » plutôt que l'angle d'équilibre.

Le travail des forces de frottement est estimé en utilisant une simplification judicieuse de l'équation complète et est réduit à :

$$W \approx \Phi \Omega t_d \quad (I.27)$$

où  $t_d$  est le temps total sur lequel la dissipation s'effectue,  $\Phi$  la valeur moyenne de dissipation par rapport au temps et à l'espace, et  $\Omega$  le volume de la goutte qui contribue à cette dissipation. En utilisant une distance moyenne  $L$  sur laquelle la dissipation s'effectue et en l'évaluant par l'épaisseur de la couche limite visqueuse, on obtient :

$$\begin{aligned} \Phi &= \mu \frac{U^2}{L} \\ \delta &= 2 \frac{D_0}{\sqrt{Re}} \\ \Omega &= \frac{\pi}{4} D_{\max}^2 \delta \end{aligned} \quad (I.28)$$

Il reste à estimer  $t_d$  et pour ce faire, un modèle géométrique est utilisé. Celui ci considère que la goutte a la forme d'une sphère tronquée surmontant un cylindre et que le flux de fluide passant au travers du disque de diamètre  $d$  à la vitesse  $U$  est équivalent à celui du bord de la lamelle dont l'épaisseur est  $h$  et la vitesse  $V_r$  (figure I.13).

Par suite :

$$\frac{\pi}{4} d^2 U = \pi D h V_r \Rightarrow \frac{dD}{dt} = 2 V_r = \frac{U d^2}{2 h D} \quad (I.29)$$

Ici,  $D$  est le diamètre de contact entre la goutte et le substrat à l'instant  $t$ ,  $h$  est l'épaisseur de la lamelle supposée constante et définie par  $h = \frac{2D_0^3}{3D_{\max}^2}$  (goutte supposée cylindrique à

l'étalement maximum) et  $d$ , le diamètre de contact entre la partie sphère tronquée et le cylindre qui varie entre 0 et  $D_0$ , est moyenné à  $D_0/2$ . Nous obtenons alors :

$$\frac{D}{D_{\max}} = \sqrt{\frac{3Ut}{8D_0}} \quad (\text{I.30})$$

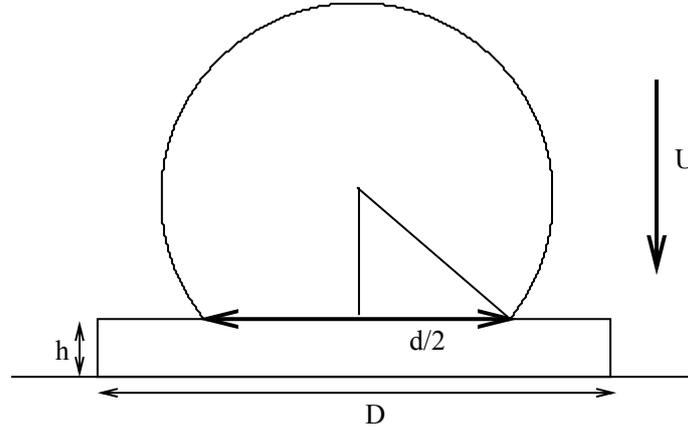


Figure I.13 : Géométrie de la goutte lors de l'impact dans le modèle de [Pasandideh-Fard et al,1996].

Finalement, l'équation à résoudre est :

$$(We+12)\frac{D_{\max}}{D_0} = 8 + \left(\frac{D_{\max}}{D_0}\right)^3 \left[ 3(1 - \cos\theta_a) + 4\frac{We}{\sqrt{Re}} \right] \quad (\text{I.31})$$

En négligeant l'énergie de surface liée aux faces latérales de la goutte à l'étalement maximum, l'étalement maximum s'obtient comme suit :

$$\frac{D_{\max}}{D_0} = \sqrt{\frac{We+12}{3(1 - \cos\theta_a) + 4\frac{We}{\sqrt{Re}}}} \quad (\text{I.32})$$

En 2001, [Roisman et al, 2001] proposent un modèle certainement parmi les plus aboutis. Il se distingue par une approche basée sur la conservation de la masse et de la quantité de mouvement entre la goutte et la lamelle. L'estimation du diamètre maximum s'effectue à  $t_i = 1$ . Une approche simplifiée de ce modèle est définie, dans le cas  $Re \gg We$  et en grandeur sans dimension, par :

$$R_m = \frac{D}{4} + \frac{\sqrt{6}AD^2}{8} \sqrt{\frac{(1 - \cos\langle\theta\rangle)}{We}} + \frac{\sqrt{6}}{48A} \sqrt{\frac{We}{(1 - \cos\langle\theta\rangle)}} \quad (\text{I.33})$$

$$\text{avec } A = \frac{1}{4\sqrt{6}} \left[ \frac{1}{12} + \frac{1}{We} - Re^{-1} \left( \frac{1}{20h^3} + \frac{3}{5h} \right) - \frac{D_1^2}{4We} (1 - \cos\langle\theta\rangle) - \frac{Dh}{We} \right]^{-\frac{1}{2}} \quad (\text{I.34})$$

et où  $h$  est la solution de l'équation  $3We + 5[1 - \cos\langle\theta\rangle]Reh = 10ReWeh^3$  et  $D = \sqrt{\frac{2}{3h}}$ .

Dans ce modèle, c'est l'angle obtenu à partir de la loi [Hoffman, 1975] qui est utilisé. Malheureusement, comme nous l'avons vu précédemment, cette approche ne convient pas de part les hypothèses fondamentales de sa construction. C'est sur ce point que se situe l'erreur de ce modèle et ce, bien que [Roisman et al, 2001] précisent que c'est l'angle dynamique à  $t_i = 1$  qu'il convient d'utiliser. Il ne fait cependant pas de doute, comme pour d'autres méthodes (voir partie modélisation), que l'utilisation d'une loi complète de variation de l'angle de contact en fonction du temps et des différents paramètres du problème conduirait à améliorer sensiblement les résultats, déjà très bons, de ce modèle.

Dans une étude récente, non exhaustive mais très aboutie, [Ukiwe et Kwok, 2005] reprennent les principaux modèles et les discutent. Les auteurs s'arrêtent sur le modèle de [Pasandideh-Fard et al, 1996]. Ils discutent notamment la pertinence du choix de l'angle de contact et ne négligent pas la contribution à l'énergie de surface des faces latérales de la goutte sous sa forme de crêpe. A partir de leurs expériences et de résultats de la littérature, ils montrent que l'utilisation de l'angle d'avancée du liquide sur la surface conduit à de meilleurs résultats que l'utilisation de l'angle d'équilibre final.

Cet angle de contact dynamique est utilisé dans les modèles de [Pasandideh-Fard et al, 1996] et [Roisman et al, 2001] pour prédire l'étalement maximum. Notons que les différentes approches pour choisir la valeur de cet angle sont discutables. Malgré ce problème « récurrent », aucune étude poussée n'a été menée pour permettre d'avaliser une approche plutôt qu'une autre et déterminer l'influence des conditions expérimentales sur ce paramètre. Le problème se résume actuellement, pour l'ensemble des modèles, à choisir entre l'angle à l'équilibre ou l'angle d'avancée. Les deux considérations peuvent se défendre et même s'il paraît plus naturel de choisir la valeur observée expérimentalement (ce qui n'a jamais été fait jusqu'à présent), l'argument de stabilité énergétique associé à l'angle d'avancée est un argument de poids.

Dès que la goutte a atteint son étalement maximum, elle se trouve sous la forme d'une crêpe (ou un trapèze dans le cas des mouillabilités très faibles). Deux comportements distincts sont observables en fonction des conditions expérimentales. Dans la mesure où l'étalement

maximum excède la valeur d'équilibre du diamètre, une rétraction du diamètre est observée. [Morougou-Candoni et al, 1999] précisent que le démouillage sur une surface à fort angle de contact se fait à vitesse constante. Dans sa thèse de doctorat, Rioboo présente un résultat similaire et montre que cette vitesse dépend des conditions expérimentales ([Rioboo, 2003]). Il met ainsi en avant la dépendance de cette vitesse aux conditions expérimentales, et notamment de la vitesse d'impact. Dans [Park et al, 2002], des tendances similaires sont observables bien que dans chacun des cas, les pentes ne soient pas mesurées et le nombre de points expérimentaux utilisés soit restreint. En 2005, [Bartolo et al, 2005] réalisent une étude sur la rétraction d'une goutte à base d'eau distillée impactant sur une surface de paraffine. Ils montrent notamment, en rapportant le diamètre au cours du temps au diamètre à l'étalement maximum, que la vitesse de rétraction est influencée par la viscosité mais pas par la vitesse d'impact pour des nombres de Weber et Reynolds supérieurs à 10. Ce deuxième point est en opposition avec les résultats de [Rioboo, 2003]. Bartolo précise également que cette vitesse de rétraction n'est pas une constante du temps (ce qui est en accord avec nos observations expérimentales) et ils proposent un modèle prédisant la valeur maximale de cette vitesse de rétraction. Dans le cas des liquides de faibles viscosités, la formule est :

$$\frac{U_{ret}}{R_{max}} = 0.6 \sqrt{\frac{3\sigma}{4\pi\rho R_0}} \sqrt{\pi(1 - \cos\theta_r)} \quad (I.35)$$

où  $R_0$  est le rayon initial. Le coefficient constant de valeur 0.6 pour l'eau distillée est obtenu en comparant ce modèle aux expériences sur de la paraffine. A titre d'illustration, le modèle de [Bartolo et al, 2005] est comparé aux observations de [Rioboo, 2003] dans le cas d'une goutte d'eau distillée de 3.17mm de diamètre, impactant à 3.6m/s sur une surface de cire ( $\theta_r = 95^\circ$ ). La vitesse maximum de rétraction théorique est de 0.96m/s contre 1.02 mesuré expérimentalement par [Rioboo, 2003].

Une deuxième configuration est observable dans ce régime de transition. Si la vitesse d'impact ne permet pas d'excéder le diamètre d'équilibre, le diamètre de contact n'évoluera pas pendant un temps alors que le sommet de la goutte va remonter fortement et osciller sous l'action de la tension de surface. La fréquence de ces oscillations n'a pas été étudiée en détail expérimentalement mais [Fukai et al, 1993], à partir d'un article antérieur de 1978, propose de s'appuyer sur la fréquence d'oscillation d'une goutte de fluide dans l'air (équation I.36).

$$f = \frac{4}{\pi} \sqrt{\frac{\sigma}{\rho D_0^3}} \quad (I.36)$$

où  $f$  est la fréquence d'oscillation en Hz,  $\sigma$  la tension de surface en mN/m,  $\rho$  la masse volumique en kg/m<sup>3</sup> et  $D_0$  le diamètre initial en vol en millimètre. Cette formule permet de prédire correctement l'ordre de grandeur de la fréquence d'oscillation pour une goutte d'une taille donnée mais l'interaction fluide/substrat n'est incluse nulle part. Il paraît étonnant que ce dernier paramètre, si influant sur l'ensemble du phénomène d'impact, ne joue ici aucun rôle. Dans le cas d'une goutte d'eau oscillant dans l'air, une seule interface est à considérer alors que dans notre problème trois phases sont en présences. Aucune étude, à notre connaissance, ne porte sur ce sujet spécifique et n'a permis de conclure sur ce problème. L'influence de la nature du support n'a pas été mise en évidence et aucune loi théorique ni mesure expérimentale ne permette de conclure sur la validité de l'équation proposée.

Le dernier régime est dit capillaire. La configuration est celle du dépôt mais avec un diamètre de contact entre la goutte et la surface. L'étalement reprend sous l'action de la tension de surface et est ralenti par la viscosité. Plusieurs études traitent de la présence de ce régime dans le cas de l'impact sans pour autant établir les lois de comportement du diamètre de contact au cours du temps et aucune comparaison n'est faite avec le cas du dépôt. Dans [Holman, 2002], les auteurs comparent l'étalement d'une goutte d'encre à base d'eau sur des poudres d'aluminium avec des tailles de particules différentes. Ils choisissent de représenter le diamètre comme une fonction puissance du temps et obtiennent une valeur de 0.176. Dans cette corrélation, ils ne considèrent aucunement la présence d'un régime inertiel et utilisent l'ensemble de leurs points pour obtenir les coefficients d'ajustement de leur loi. La valeur de 0.176 n'est pas en accord avec la littérature si l'on compare avec les lois de références de De Gennes en 1/10 ([De Genne, 1985]) et de De Coninck en puissance 1/7 ([Ruijet et al, 1999]) concernant l'étalement capillaire d'une goutte. En retirant les points expérimentaux dont les valeurs sont comprises dans la phase d'étalement (soit environ  $3 t_i$  [Parsandideh-Fard et al, 1996]), cette puissance devient environ 0.125. Outre le fait que cette valeur est alors cohérente avec les résultats de la littérature, cet article montre indirectement, dès lors que l'erreur initiale est corrigée, que l'étalement, dans la phase capillaire dans le cas de l'impact d'une microgoutte, suit les lois classiques d'étalement. Cela sous entend également que la phase d'étalement, et donc la présence d'une vitesse initiale, n'influence pas à priori la phase capillaire. Notons tout de même que dans [Holman et al, 2002], la configuration est à la fois celle d'un étalement maximum faible et d'une mouillabilité forte. En 2002, Park [Park et al, 2002] montrent un comportement de type d'une loi de puissance pour le régime capillaire sans pour autant en mesurer les pentes. Une étude de 2003 [Allaman et al, 2003], portant sur l'impact de gouttes de fluide de taille millimétrique et micrométrique (quelques dizaines de

microns), montre que le comportement de l'étalement sur les temps très longs et sur des substrats très mouillants ( $\theta_{\text{eq}} < 10^\circ$ ) est identique aux tendances observées dans le cas du dépôt. Les auteurs précisent également que le coefficient d'ajustement dépend de l'interaction fluide/substrat. Toutefois, très peu de résultats sont disponibles dans ce régime et particulièrement dès que l'angle de contact est supérieur à  $10^\circ$ . Dans ce cas, les hypothèses des modèles théoriques précédents ne sont plus vérifiées.

## **Modélisation**

La prédiction du comportement de la goutte lors de l'impact est également un point étudié dans la littérature. Les méthodes récentes de calcul permettent de résoudre numériquement les équations de Navier & Stokes. Citons les méthodes de « Volume of Fluid » ou encore des méthodes plus récentes type ALE (« Arbitrary Lagrangian Eulerian »). Toutefois ces méthodes sont très coûteuses en temps de calcul alors qu'une économie peut être réalisée en ne résolvant le problème que sur la surface libre par une méthode d'Intégrales de Frontière. Ces méthodes permettent d'obtenir les profils de la goutte au cours du temps. Un modèle moins élaboré de variation d'énergie (Méthode Variationnelle) basé sur la conservation de l'énergie ([Bechtel et al, 1981 ; Kim & Chun, 2001]) permet également d'obtenir des résultats intéressants en diminuant drastiquement le temps de calcul. Dans ce modèle, la goutte a toutefois une géométrie fixe de sphère tronquée. Nous n'avons alors accès qu'à l'évolution du diamètre et la hauteur de contact et aucune information sur les profils transitoires de la goutte n'est disponible. Nous présentons rapidement ici ces deux approches dont les résultats seront comparés avec l'expérience.

## **Méthode variationnelle**

Les observations expérimentales ont montré que lors des différentes phases du phénomène d'impact (inertielle, transitoire et capillaire), la goutte prend une géométrie particulière : la sphère tronquée. En effet, dans les premiers instants de l'impact, on peut considérer que les déformations sont très faibles et que la goutte conserve bien cette géométrie préférentielle [Rioboo et al, 2002]. De la même manière, à la fin du régime inertiel, la goutte passe d'une forme de crêpe à celle de sphère tronquée, forme qu'elle conservera jusqu'à la fin de son étalement (figure I.9 et I.10).

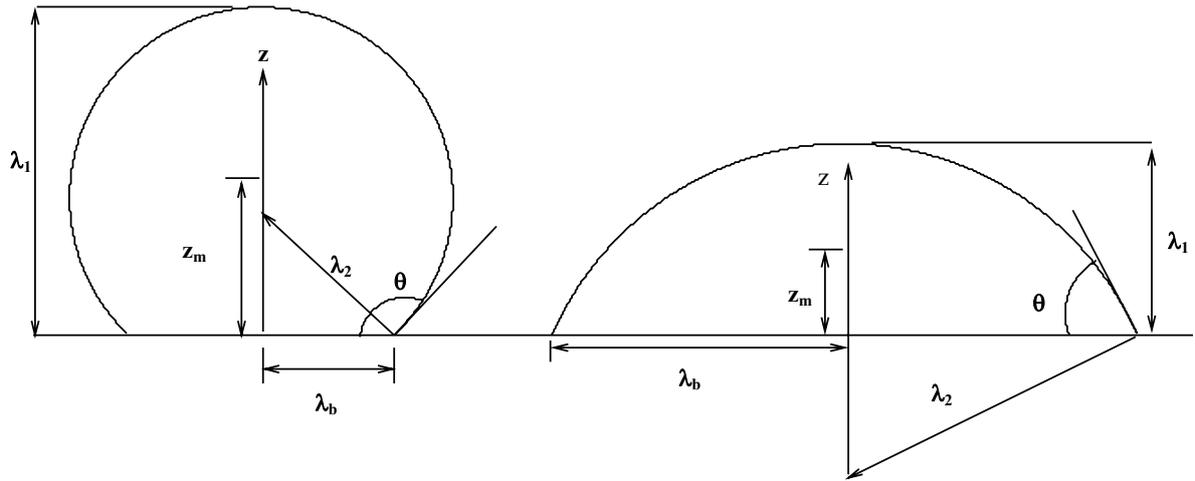


Figure I.14 : Géométrie de la sphère tronquée pour la Méthode Variationnelle.

Les différents éléments de la figure I.14 sont définis ci-dessous :

- $\lambda_2$  est le rayon de la calotte sphérique
- $\lambda_b$  est le rayon de contact entre la sphère tronquée et la surface
- $\lambda_1$  est la hauteur de la calotte sphérique au centre
- $\theta$  est l'angle de contact
- $z_m$  est le centre de masse de la sphère tronquée

Cette géométrie particulière est définissable par un certain nombre de grandeurs géométriques telles que la hauteur de la goutte en son centre, le diamètre de contact ou encore l'angle de contact (figure I.14). Le fluide étant supposé incompressible, tous les coefficients géométriques peuvent être définis à partir de l'un d'entre eux. Enfin, la connaissance du champ de vitesse dans la goutte lors de l'impact permet de faire les calculs d'énergie potentielle et cinétique liés à la goutte. Dans ces conditions, il est possible de mettre en œuvre une méthode dite « Méthode Variationnelle » basée sur une géométrie de sphère tronquée et sur la conservation du volume et des variations d'énergie ([Bechtel et al, 1981 ; Kim & Chun, 2001]). Nous noterons cette méthode MV dans la suite. Elle s'exprime par l'équation intégrale suivante :

$$\int_{t_1}^{t_2} [\delta E_c - \delta E_p + \delta W_f] dt = 0 \quad (I.37)$$

«  $E_c$  » représente l'énergie cinétique de la goutte, «  $E_p$  » l'énergie potentielle et  $t$  le temps. Le travail lié aux forces de frottement est pris en compte par le terme «  $\delta W_f$  ». Ce dernier

s'exprime sous la forme  $\delta W_f = -F \delta y$  où « F » représente les forces de frottements et « y » le déplacement de la ligne de contact sur le substrat. En faisant l'hypothèse que les forces de frottements seraient dues à des contraintes de cisaillement, on fait intervenir « T » qui est le tenseur des contraintes à la base de la goutte. Le terme de viscosité est pris en compte grâce à la contrainte tangentielle  $\tau$  s'écrivant sous la forme  $\tau = F_d \frac{v_r}{\sqrt{Oh}}$  où « F<sub>d</sub> » est le facteur de

dissipation [Kim & Chun, 2001], Oh le nombre de Ohnesorge qui est égal à  $\frac{\mu}{\sqrt{\rho \sigma D_0}}$  et  $v_r$  la

composante de la vitesse radiale avec une expression similaire à ce qui est proposée dans [Bechtel et al, 1981] et qui respecte l'hypothèse d'incompressibilité. Le coefficient de dissipation  $F_d$  permet d'optimiser la correspondance entre prédictions et valeurs expérimentales.

Les paramètres géométriques sont définis par rapport à la hauteur au centre de la goutte et adimensionnalisés par rapport au diamètre en vol  $D_0$ . On a les relations suivantes :

$$x = \frac{\lambda_1}{D_0}, \quad \frac{\lambda_2}{D_0} = x \frac{2 + \frac{1}{x^3}}{6}, \quad \frac{\lambda_b}{D_0} = \left[ \frac{\frac{1}{x} + x^2}{3} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (I.38)$$

Le centre de masse de la goutte est noté  $z_m$  et est défini comme suit, sous l'hypothèse d'un fluide incompressible :

$$z_m = \frac{\int_C z du dv dz}{\int_C du dv dz} \quad \text{avec } C = \{(u, v, z), 0 \leq z \leq \lambda_1, u^2 + v^2 + (z - \alpha)^2 \leq \lambda_2^2\} \quad (I.39)$$

où  $C$  définit le volume de la calotte sphérique,  $\alpha$  est la coordonnée du centre de la goutte suivant l'axe vertical et est défini comme suit :

$$\begin{cases} \alpha^2 = \lambda_2^2 - \lambda_b^2 \\ \alpha = \lambda_1 - \lambda_2 \end{cases} \quad (I.40)$$

Nous avons alors  $\frac{z_m}{D_0} = \frac{(2x + x^4)}{6} = M(x)$

Ensuite, il est nécessaire de quantifier les différentes valeurs des énergies. L'énergie de surface est définie par le produit de la surface de la géométrie considérée par la tension superficielle à l'interface.

$$E_p = \sigma D_0 \frac{\pi}{3} \left( 2x^2 + \frac{1}{x} + \frac{\sigma_b}{\sigma} \left( \frac{1}{x} - x^2 \right) \right) \quad (\text{I.41})$$

avec  $\sigma_b$  la tension de surface entre le substrat et le fluide.

Pour le calcul de l'énergie cinétique, on utilise le champ de vitesse à l'intérieur de la goutte et on intègre sur le volume C de la calotte sphérique. Un champ de vitesse satisfaisant les hypothèses du problème est

$$\begin{aligned} U_r &= -\frac{1}{2} \frac{M'(x)}{M(x)} \frac{dx}{dt} r \\ U_z &= \frac{dz_m}{dt} + \frac{M'(x)}{M(x)} \frac{dx}{dt} (z - z_m) \end{aligned} \quad (\text{I.42})$$

où  $M'(x)$  est la dérivée de la position du centre de masse par rapport à  $x$ .

Nous obtenons alors ([Bechtel et al, 1981])

$$E_c = \rho V D_0^2 A(x) \left( \frac{dx}{dt} \right)^2 \quad \text{avec} \quad A(x) = \left( \frac{M'(x)}{M(x)} \right)^2 \left( \frac{13x^5}{180} + \frac{11x^2}{144} + \frac{1}{72x} \right) \quad (\text{I.43})$$

Il est commode d'adimensionaliser le temps  $t^*$  et les paramètres de viscosité dynamique  $VIS$  et de tension surfacique  $ST$  comme suit:

$$t^* = t / \left( \frac{\rho D_0^3}{\sigma} \right)^{1/2}, \quad ST = \frac{\sigma_b}{\sigma} = -\cos \theta_e \quad \text{et} \quad VIS = \frac{D_0 C}{12} \frac{\sqrt{We}}{Re} \quad \text{où } Re \text{ est le nombre de}$$

Reynolds défini par  $\frac{\rho D_0 U}{\mu}$ ,  $We$  est le nombre de Weber défini par  $\frac{\rho D_0 U^2}{\sigma}$  et  $\theta_e$  est l'angle de Young.

En remplaçant dans l'équation intégrale de la méthode variationnelle, on obtient une équation différentielle linéaire du second ordre à coefficients non constants que l'on peut réduire à un système d'équations différentielles du premier ordre. Tous les coefficients sont calculés en fonction de  $x=h/D_0$ , la hauteur sans dimension de la calotte sphérique.

$$\begin{aligned} \frac{dx}{dt^*} &= y \\ \frac{dy}{dt^*} &= -\frac{1}{2A(x)} [A'(x)y^2 + VIS * B(x)y + 2L'(x)] \end{aligned} \quad (\text{I.44})$$

où  $A(x)$  est le coefficient représentatif de l'énergie cinétique,  $B(x)$  est un coefficient lié au calcul de la surface de contact entre le fluide et le substrat et  $L'(x)$  est le coefficient représentatif de la dérivée par rapport à  $x$  de l'énergie potentielle où est introduit le coefficient de dissipation  $F_d$ .

La résolution du système nécessite deux conditions initiales [Bechtel et al, 1981]:

$$\begin{aligned} x(0) &= 1 \\ \left. \frac{dx}{dt} \right|_{r=0} &= -\sqrt{We} \end{aligned} \quad (I.45)$$

Remarque : Cette méthode ne permet pas de prédire les profils transitoires précis et ne rend donc pas compte des déformations de la surface libre au cours de l'impact. Cependant, la MV est peu coûteuse en temps de calcul et permet de représenter correctement l'évolution des grandeurs habituellement mesurées sur les profils expérimentaux, i.e. le diamètre de contact et la hauteur au centre.

De plus, il est important de noter que l'angle de contact d'équilibre et les paramètres de vitesse d'impact, de viscosité et de tension de surface influent fortement sur le modèle. Plus particulièrement, cette méthode ne permet pas de prédire l'étalement maximum  $\beta_{\max} = \frac{D_{\max}}{D_0}$ .

Néanmoins, nous proposerons dans la suite (chapitre III) des équations permettant de la déterminer.

## Méthode d'intégrales de frontière

Les atouts principaux de la méthode d'intégrales de frontière (MIF) sont un temps de calcul raisonnable (plusieurs minutes) et l'obtention des profils transitoires de la goutte durant l'impact. En effet, la MIF ramène tous les calculs sur la frontière du domaine qui est elle-même une inconnue du problème. En faisant cela, il y a économie du temps de calcul par rapport aux méthodes qui maillent l'ensemble du domaine (différences finies, éléments finis, volumes finis etc...). La MIF est une combinaison de résolutions analytique et numérique. L'utilisation de la formule de Green permet de transformer l'équation de Laplace en équations intégrales. La discrétisation des équations donne un système linéaire à résoudre pour l'obtention des inconnues du problème.

La méthode des intégrales de frontière s'appuie sur quatre hypothèses importantes qui sont listées ci-dessous par ordre d'importance.

- a) L'écoulement est supposé irrotationnel ; on suppose que les aspects visqueux sont confinés dans les couches limites aux parois et que la vorticit   n'a pas le temps de « contaminer » tout l'  coulement en raison du caract  re transitoire relativement rapide du ph  nom  ne consid  r  .
- b) Le fluide consid  r   est suppos   incompressible.
- c) L'  coulement ne donne pas lieu    des transferts de masse    l'interface gaz/liquide.
- d) L'  coulement se fait    temp  rature constante.

Le champ de vitesses  $V$  d  rive d'un potentiel scalaire des vitesses  $\varphi$  tel que  $\vec{V} = \vec{\nabla}\varphi$ . En utilisant l'hypoth  se d'incompressibilit   dans l'  quation de continuit  , nous obtenons alors l'  quation de Laplace :

$$\Delta\varphi = 0 \quad (\text{I.46})$$

La r  solution de cette   quation, traitant la cin  matique seule, ne fait pas intervenir le temps. Le caract  re dynamique du ph  nom  ne est pris en compte par l'  quation de quantit   de mouvement   crite    l'interface gaz / liquide. Cela conduit alors    l'  quation de Bernoulli transitoire o   l'  volution du potentiel est d  crite sous forme Lagrangienne :

$$\frac{\delta p}{\rho} + g.z + \frac{u^2}{\rho} + \frac{D\varphi}{Dt} = cste \quad (\text{I.47})$$

o    $\delta p$  est une diff  rence de pression et « *cste* » une constante dans tout l'espace fluide.

La r  solution du probl  me utilise la lin  arit   de l'  quation de Laplace. Cela permet d'engendrer des solutions   l  mentaires    l'aide de distributions surfaciques de sources et de doublets. L'application de la formule de Green au potentiel scalaire harmonique  $\varphi$ , apr  s int  gration, conduit    transformer le probl  me diff  rentiel en une formulation int  grale sur le contour du domaine de calcul.

$$\frac{\varphi(r)}{2} = \int_{r' \in \Gamma} \left[ \frac{\partial \varphi}{\partial n'} G(r, r') - \varphi \cdot \frac{\partial G}{\partial n}(r, r') \right] dr' \quad \text{et } r \in \Gamma \quad (\text{I.48})$$

o    $\Gamma$  est la fronti  re du domaine de calcul,  $r$  la position du point de contr  le (point de calcul), et  $r'$  la position du point d'int  gration.

Nous travaillons en 3-dimensions axisym  trique  $(r, z, \theta)$ , le noyau de Green, int  gr   le long des coordonn  es azimutales, est alors:  $G(r, r') = \frac{1}{4\pi} \cdot \left( \frac{1}{|r - r'|} \right)$  (I.49)

Dans notre problème, la frontière se scinde en deux parties distinctes. La première,  $\Gamma_p$ , correspond à la paroi. On applique sur cette partie une condition limite de type Neumann à savoir une condition de non pénétration du fluide dans le substrat (le substrat est considéré

$$\text{non poreux) : } \frac{\partial \varphi}{\partial n} = 0 \quad (\text{I.50})$$

La deuxième partie considère la frontière libre  $\Gamma_{sl}$ . Une condition limite de type Dirichlet est imposé au potentiel  $\varphi$  à  $t = 0$  tel que  $\varphi = -z \cdot U_{\text{impact}}$ . Par la suite, l'équation de Bernoulli permet de modifier le potentiel, par la connaissance de  $\left. \frac{\partial \varphi}{\partial t} \right|_t$ , aux instants suivants en écrivant :

$$\varphi^t = \varphi^{t-\Delta t} + \left. \frac{D \varphi}{Dt} \right|_t \quad (\text{I.51})$$

On obtient ainsi l'équation suivante à résoudre:

$$\frac{\varphi(r)}{2} + \int_{\Gamma_p} \varphi \frac{\partial G}{\partial n'}(r, r') dr' - \int_{\Gamma_{sl}} \frac{\partial \varphi}{\partial n'} G(r, r') dr' = \int_{\Gamma_p} \frac{\partial \varphi}{\partial n'} G(r, r') dr' - \int_{\Gamma_{sl}} \varphi \frac{\partial G}{\partial n'}(r, r') dr' \quad (\text{I.52})$$

Après avoir présenté le modèle générique tel qu'il a été utilisé pour résoudre d'autres problèmes, nous indiquons ci-dessous les modifications apportées pour l'adapter à notre cas.

L'introduction de l'angle de contact dynamique n'est pas nécessaire à la résolution du problème du fait de l'utilisation d'une discrétisation continue (ordre 3) qui a largement été utilisée par le passé ([Brebba et al, 1984; Machane, 1997; Machane & Canot, 1997; El Hammoumi et al, 2003]). Toutefois, son utilisation présente l'avantage de mieux rendre le comportement dynamique de la ligne triple en limitant l'expansion de la lamelle. Nous choisissons donc de dégrader la discrétisation du système en l'abaissant à l'ordre 1 (discrétisation linéaire). Au point triple T, le potentiel et la vitesse de glissement sont inconnus conduisant à un système sous déterminé. Nous introduisons alors une loi d'angle de mouillage à partir des mesures expérimentales effectuées. Le caractère complexe du problème de mouillage dynamique et l'inadéquation des lois classiques citées dans [Shikhmurzaev, 1997] rend le choix de la loi compliqué. Nous utilisons une loi approximative permettant de tenir compte de la complexité des phénomènes dans la zone proche du point triple :

$$U_{CL} = k(\theta_d - \theta_{\text{éq}})^n \quad (\text{I.53})$$

où  $\theta_d$  est l'angle dynamique,  $U_{CL}$  la vitesse de la ligne de contact,  $n = 3$  ([Shikhmurzaev, 1997]),  $k$  et  $\theta_{\text{éq}}$  sont des paramètres à adapter (on vérifie la cohérence de ce dernier avec les données expérimentales).

L'utilisation de la loi d'angle de mouillage adaptée sur les expériences présente l'intérêt de se rapprocher de la physique du problème et donne accès à une vitesse de glissement ( $\frac{\partial \varphi}{\partial n}$ ) du côté de l'interface au point triple. Elle introduit une contrainte extérieure, corrigeant en partie les problèmes liés au confinement du cisaillement dans les couches limites et la dissipation de l'énergie cinétique n'est plus uniquement liée à la viscosité seule du fluide mais aussi à la contrainte provenant de l'angle de contact.

Par ailleurs, lorsque la goutte atteint son diamètre maximal, l'interface fluide/gaz s'approche de l'interface fluide/solide en chassant le fluide de cette zone. Afin de tenir compte du travail nécessaire à cette opération, on introduit un modèle de drainage (figure I.15). Pour le calculer, on considère un nombre de Reynolds local (basé sur l'épaisseur du film) donc les forces d'inerties sont négligeables. Le profil des vitesses dans l'écoulement est supposé de type Poiseuille à savoir de forme parabolique. Sur la paroi solide, la vitesse est considérée nulle (condition d'adhérence) et l'on impose une contrainte libre à l'interface ( $\frac{\partial u}{\partial z} = 0$  car la viscosité du gaz est négligée).

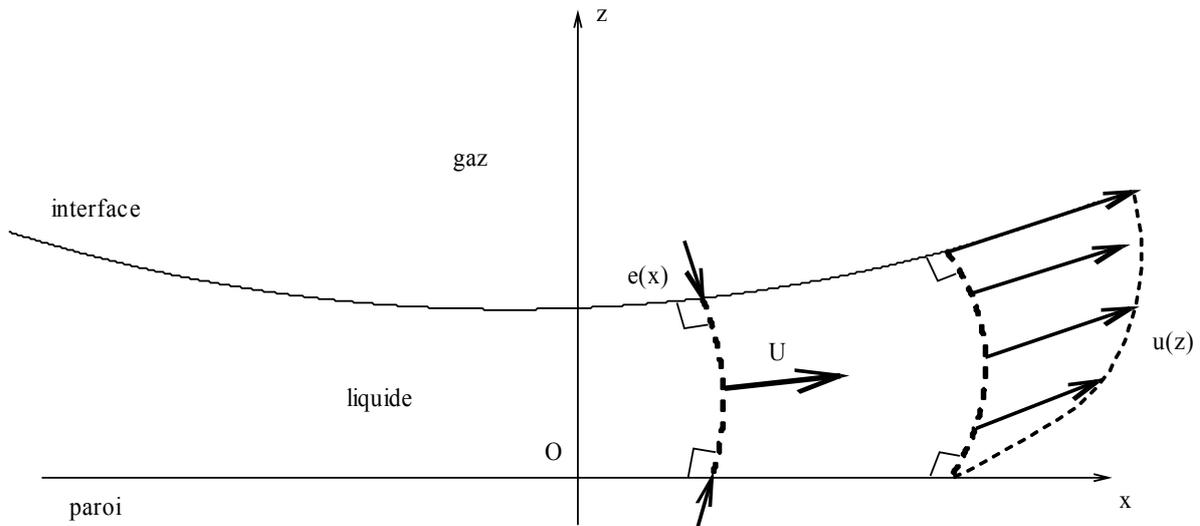


Figure I.15 : Représentation du drainage apparaissant lors de l'impact d'une goutte sur un support.

Une loi de Poiseuille relie alors le gradient de pression suivant l'axe d'étalement à la vitesse débitante  $\bar{U}$ . Afin de faire intervenir ce terme de correction, on modifie l'équation de Bernoulli qui devient alors :

$$\frac{D\varphi}{Dt} = -\frac{1}{Fr}z + \frac{1}{We}\kappa + \frac{2}{Re}\frac{\partial^2 \varphi}{\partial s^2} + p_{drainage}(s) + \frac{1}{2}u^2 \quad (I.54)$$

$$\text{où } Fr = \frac{U_{imp}^2}{gD_0} \quad (I.55)$$

Le terme de pression de drainage se calcule de la manière suivante. Nous considérons les équations de Navier-Stokes dans un repère cylindrique  $(r, \theta, z)$  et en adimensionnel :

$$\frac{\partial p}{\partial r} = \mu \left( \frac{\partial^2 V_r}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 V_r}{\partial z^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial V_r}{\partial r} - \frac{V_r}{r^2} \right) \quad (I.56)$$

Le terme  $\frac{\partial^2 V_r}{\partial z^2}$  est calculé analytiquement à partir du profil parabolique du champ de vitesse :

$$V_r(r, z) = -\frac{3}{2} \frac{\bar{U}(r)}{e^2(r)} z(z + 2e(r)) \text{ et on obtient que } \frac{\partial^2 V_r}{\partial z^2} = -3 \frac{\bar{U}(r)}{e^2(r)}. \text{ Ensuite, on calcule les}$$

autres dérivées partielles en  $z = -e(r)$  puisque l'on veut intégrer la pression le long de l'interface.

$$\frac{\partial V_r}{\partial r} = \frac{3}{2} \frac{\partial \bar{U}(r)}{\partial r} \text{ et } \frac{\partial^2 V_r}{\partial r^2} = \frac{3}{2} \frac{\partial^2 \bar{U}(r)}{\partial r^2} \quad (I.57)$$

## **Conclusion**

L'essentiel de notre travail est consacré à l'étude de l'impact d'une goutte sur une surface solide se terminant par un cas de dépôt ou de rebond total. D'un point de vue global du mécanisme d'impact, l'effet de la mouillabilité n'a jamais été, à notre connaissance, étudié séparément et les rugosités des surfaces utilisées n'ont jamais été fixées dans le problème. Au mieux, dans le cas d'impact, un effet de moyenne sur la répartition et l'amplitude de ces rugosités est effectué. De la même manière, le paramètre de tension de surface a été modifié (changement de fluide ou ajout de surfactant) pour modifier la mouillabilité mais sans prendre soin de conserver les nombres sans dimensions d'une expérience à l'autre ([Rioboo et al, 2002 ; Rioboo, 2003]). L'utilisation de plaques de silicium dont on a modifié la mouillabilité par traitement chimique constitue donc une première dans la littérature déjà conséquente mais qui curieusement n'a jamais abordé de façon satisfaisante le problème d'impact de gouttes sur des surfaces de mouillabilités diverses jusqu'à récemment ([Bayer & Mégaridis, 2006]). Leur utilisation permet d'observer avec précision l'effet de cette mouillabilité en conservant le même fluide tout au long de nos expériences et en supprimant le problème de rugosité variable. Ces plaques pourraient également être utilisées pour l'étude des mêmes paramètres dans le cas de l'évaporation ou de la solidification du fait de la conservation des coefficients de transfert thermique.

Les études portant sur le dépôt précédé d'un impact sont focalisées sur la première partie de l'impact. Le régime intermédiaire et les oscillations qui y apparaissent n'ont pas été étudiés en détail. De même, le cas du dépôt d'un fluide sur une surface partiellement mouillante a peu été étudié dans la littérature. Il n'a jamais été montré avec certitude que dans la phase capillaire de l'impact, l'étalement s'effectue identiquement au cas du dépôt.

Enfin, la dernière limitation importante concerne l'angle de contact dynamique. Les lois proposées par la littérature ne permettent pas de décrire correctement son évolution au cours du temps dans le cas de l'impact. Seuls [Sikalo et al, 2005 ; Bayer & Mégaridis, 2006] ont mesuré effectivement son évolution expérimentale mais seulement dans le cas de fluides très visqueux (l'effet de la mouillabilité et la viscosité n'est pas démontré). En dernier lieu, aucune mesure n'a été effectuée pour déterminer quel angle doit être utilisé dans les modèles d'étalement maximum.

Toutes ces limitations montrent clairement que le problème est encore à l'étude et que nombre de travaux complémentaires sont nécessaires. Dans ce travail, nous espérons pouvoir apporter

quelques éléments susceptibles de faire avancer ce sujet, ou du moins d'apporter des pistes de réflexions.

## Chapitre II

### Expérimental

Le travail présenté ici est en très forte corrélation avec le domaine du jet d'encre où la dynamique d'étalement constitue un problème central puisque c'est elle qui détermine en partie la qualité d'impression. Notre étude se focalise particulièrement sur l'étude de l'effet de la mouillabilité de la surface lors de la phase d'étalement d'une goutte. Par conséquent, le contrôle du couple liquide / substrat est impératif. Des silanes (chaînes carbonées terminées par un groupement chimique) différentes ont été fixées, par étapes chimiques successives, sur des plaques de silicium par le Laboratoire d'Electronique de Technologie de l'Information (LETI) du CEA de Grenoble. La mouillabilité varie de  $5^\circ$  à  $180^\circ$  avec de l'eau distillée et toutes les surfaces ont une rugosité identique et quasiment nulle. C'est la première fois dans la littérature qu'une telle gamme de mouillabilité est abordée et en conservant l'ensemble des autres paramètres d'un support à l'autre. Les gouttes utilisées ici ont un diamètre de quelques millimètres (macrogouttes) et impactent à des vitesses de l'ordre de quelques mètres par seconde. Dans ce cas, le temps caractéristique est de l'ordre de quelques millisecondes ce qui rend l'observation possible. En effet, le principe de similarité (conservation des nombres sans dimensions) permet d'extrapoler les résultats des macrogouttes aux gouttes utilisées dans l'impression numérique. Ces dernières mesurent quelques dizaines de micromètres de diamètre (microgouttes), ce qui correspond à des temps caractéristiques pour le phénomène d'impact de l'ordre de la dizaine de microsecondes. Leur observation durant l'impact est difficile et sujet à de très fortes incertitudes.

Dans ce chapitre, nous présentons les surfaces utilisées et l'ensemble des dispositifs expérimentaux conçus et réalisés pour les besoins de notre étude. Nous aborderons les différents systèmes d'éjections disponibles, les différentes caméras utilisées et les techniques associées pour chaque cas. A chaque technique expérimentale sont associées des incertitudes que nous quantifierons pour chaque grandeur mesurée ou calculée.

## Surfaces, fluides et caractérisation

### Surfaces et fluides

La synthèse du silane hydrophobe sur les plaques de silicium passe par de nombreuses étapes successives de greffage et d'addition de groupement chimique. A chacune des étapes de synthèse, une molécule chimique particulière, dépendante des étapes précédentes, est ainsi présente sur la surface, la rendant plus ou moins mouillante (figure II.1) (étapes de synthèse en annexe). Les étapes chimiques de préparation des substrats ont été réalisées au LETI (CEA Grenoble).

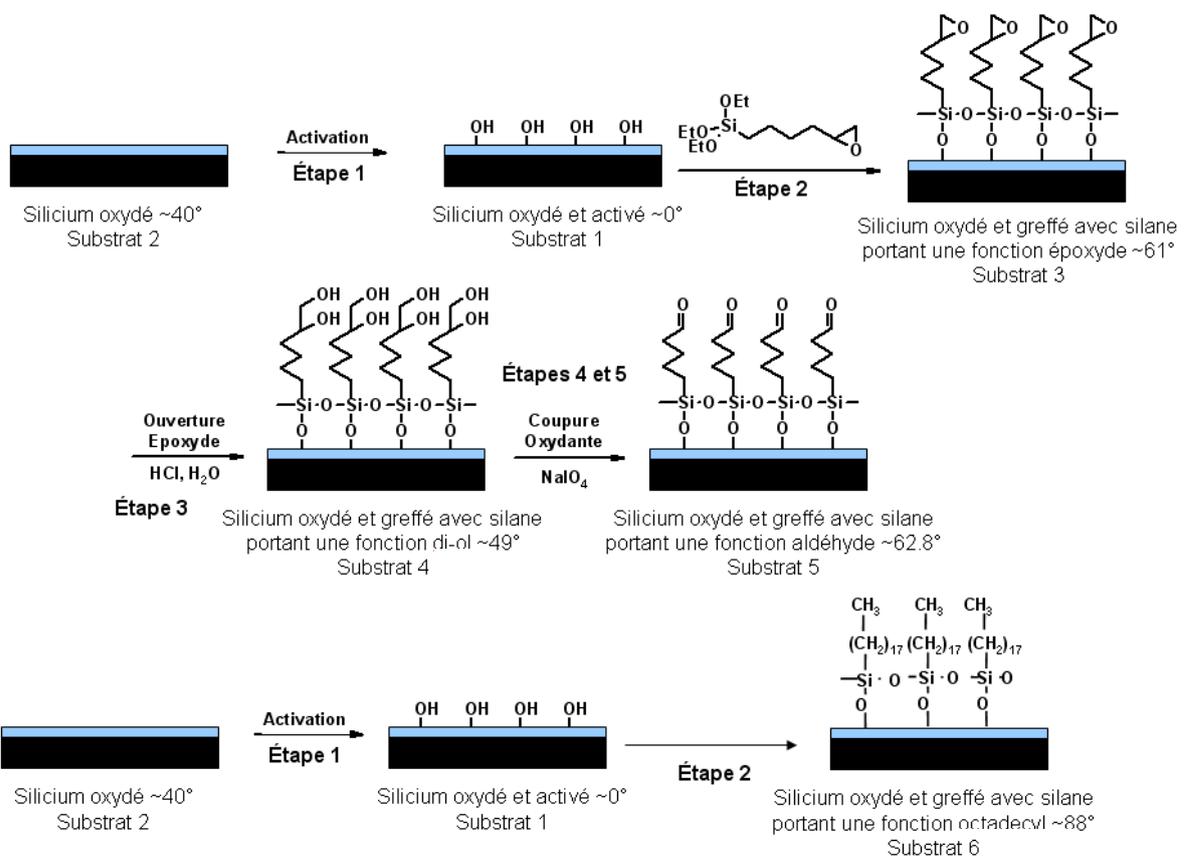


Figure II.1 : Groupements chimiques sur les substrats modèles, les angles notés dans chaque cas correspondent à une goutte d'eau distillée.

Plusieurs fonctions chimiques différentes peuvent ainsi être greffées sur les plaques de silicium pour en modifier la mouillabilité. Nous avons ainsi constitué une série de plaques parfaitement identiques en terme de rugosité, conductivité thermique etc...(figure II.2) mais toutes différentes au niveau de l'énergie de surface.

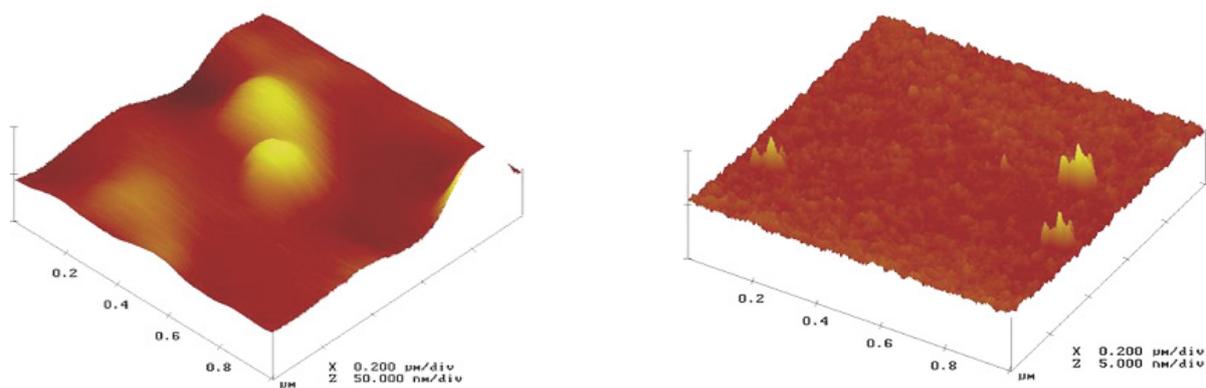


Figure II.2 : Mesure microscopie à force atomique (AFM) d'une plaque de silicium chimiquement traitée, (à gauche) fonction 3 et (à droite) fonction 7.

Nous couvrons alors une très large gamme de mouillabilité allant de 5° et 110° (tableau II.1) avec de l'eau distillée.

Numéro de la fonction	Groupe chimique	Angle de contact	Stabilité
Fonction 1	Nettoyage Brown	5°	Instable, modification au bout de quelques minutes
Fonction 2	Silicium oxydé naturellement	25°	Instable, limite à 50° (plusieurs semaines)
Fonction 3	Silicium oxydé (contrôle de l'épaisseur d'oxyde)	35°	Stable
Fonction 4	CEA2 diol	49°	Stable
Fonction 5	CEA2 époxyde	61°	Stable
Fonction 6	CEA2 aldéhyde	62°	Stable
Fonction 7	Silane Octadécyl	90°	Instable : limite à 80° (plusieurs semaines)
Fonction 8	Silane perfluorooctyl-trichlorosilane	108°	Instable : limite à 88° (plusieurs semaines)
Fonction 9	Silane Octadécyl + rugosités de surface	Super-Hydrophobe : >160°	Stable

Tableau II.1 : Fonctions chimiques et angle de contact de l'eau distillée avec les substrats de silicium.

Ces angles sont mesurés à l'aide d'un dispositif DIGIDROP®. Notons que la rugosité de ces supports modèles est de l'ordre de 5 Å, nous les considérerons par la suite comme parfaitement plans.

Remarque : les groupements chimiques utilisés pour réaliser ces mouillabilités ne sont pas parfaitement stables dans le temps. Aussi, il est possible que l'angle de contact à l'équilibre entre un fluide et une surface donnée change. Pour cette raison, nous avons systématiquement mesuré l'angle final en vue de parfaitement connaître tous les paramètres de l'étalement. Cette modification de la mouillabilité est très importante et rapide pour les substrats de type fonction 1 (activation de la surface donc forte réactivité chimique). Cette surface verra son angle d'équilibre avec l'eau distillée augmenter au cours du temps, au fur et à mesure que la couche d'oxyde de silicium s'épaissira. Un angle limite situé aux environs de 50° est atteint. Dans le cas des surfaces hydrophobes de type 7 et 8, les nettoyages successifs peuvent détériorer les silanes. Ces surfaces verront leurs mouillabilités augmenter et l'angle final obtenu avec l'eau distillée diminuera de plusieurs degrés (80° pour la fonction 7, 88° pour la fonction 8) (tableau II.1).

De plus, dans le cas de substrat hydrophile, l'écart entre l'angle d'avancée et l'angle de reculée induit un intervalle d'angle de contact d'équilibre possible. Si thermodynamiquement, un seul état d'équilibre existe, expérimentalement, [Roux & Cooper, 2004] plusieurs états métastables sont observables et on peut donc obtenir des écarts de quelques degrés sur la valeur mesurée. Pour cette raison, il est également important, pour chaque expérience, de mesurer l'angle d'équilibre à la fin de l'étalement.

Nous avons également réalisé des expériences d'impact de gouttes sur des substrats de type "industriel" qui sont utilisés dans le procédé d'impression par jet d'encre. Ils sont à base de polyéthylène téréphtalate (PET) ou d'aluminium et peuvent être recouverts de différents couchages (traitement de surface). Ces supports sont non poreux et des mesures par interférométrie montrent une rugosité de plusieurs ordres de grandeur supérieurs à celle des supports en silicium (tableau II.2).

<b>Substrat</b>	<b>Rugosité</b>
Silicium	5 Å
PET	5 nm
PET + V	9.36 nm
Aluminium couché 1	139.23 nm
Aluminium couché 2	95.36 nm
Verre	

**Tableau II.2: Rugosité des différents supports industriels.**

Les liquides utilisés dans ce travail se séparent en deux catégories. La première concerne ceux qui permettent la caractérisation des surfaces modèles. La deuxième est constituée par les mélanges à différentes concentrations d'eau distillée et de glycérol, et les encres industrielles. Le tableau II.3 ci-dessous regroupe l'ensemble des données sur chacun d'entre eux.

Liquide	Masse volumique (kg/m <sup>3</sup> )	Tension de surface (mN/m)	Viscosité à 25°C (mPa.s)
Diméthylsulfoxyde (DMSO)	1100	43	5
Ethylène Glycol	1100	47	1.72
Glycérol	1225	65	120
Dichlorométhane	1325	28	1.55
Diiodométhane	3320	50	2.76
Formamide	1139	58	2.5
Eau distillée	1000	73	1
Eau distillée + 59% de glycérol	1140	68.8	9.7
Eau distillée + 85% de glycérol	1210	67.8	96
Encre UV 1	1010	28	30
Encre UV 2	1010	34	30
Encre UV 3	1040	27.4	5.5
Encre UV 4	1040	30	30
Encre UV 5	1040	31.5	3.28
Encre UV 6	1040	31.5	5.62
Encre UV 7	1040	28	5.8
Encre UV 8	1040	29.5	5.8
Encre UV 9	1040	33.5	30
Encre UV 10	1040	33.9	13.8
Encre base eau	996.5	33.2	3.2

**Tableau II.3 : Grandeurs physico-chimiques des fluides.**

Le tableau II.4 regroupe les angles d'avancée et de reculée de l'eau distillée, de l'eau distillée + 59% de glycérol et de l'eau distillée + 85% de glycérol sur les surfaces modèles. La viscosité et la tension de surface de ces fluides ont été mesurées respectivement par un viscosimètre "Viscoclock" de chez Schott avec un capillaire de type micro-Ubbelohde et un tensiomètre MPT2 Lauda (gamme de mesure de 10 à 100mN/m, précision de  $\pm 0.1$ mN/m).

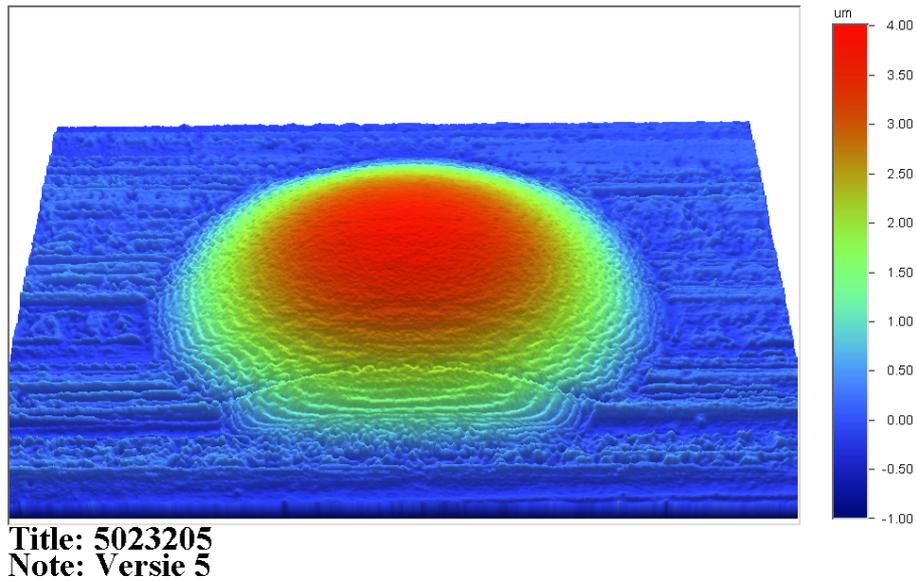
Surface	Eau distillée		Eau distillée + 59% de glycérol		Eau distillée + 85% de glycérol	
	$\theta_a$ (°)	$\theta_r$ (°)	$\theta_a$ (°)	$\theta_r$ (°)	$\theta_a$ (°)	$\theta_r$ (°)
Nettoyage Brown	10	0	27	0	25	0
Silicium oxydé naturellement	38	13	50	12	52	12
Diol	66	17	72	20	70	20
Epoxyde	72	15	72	17	75	15
Aldéhyde	67	21	70	17	62	25
Silane Octadécyl	107	77	100	72	91	75
Silane perfluorooctyl- trichlorosilane	115	70	115	57	115	90

**Tableau II.4 : Angle d'avancée et de reculée des fluides utilisés pour l'impact sur les surfaces modèles.**

### Appareil de caractérisation

Le comportement de la goutte sur le substrat lors de son impact est lié à la fois aux caractéristiques physiques du fluide considéré et à la nature de la surface. L'état de surface des surfaces « modèles » a été contrôlé par mesure de microscopie à force atomique. Pour les substrats industriels, l'état de surface de quelques échantillons a été testé avant et après impression par un dispositif d'interférométrie Veeco Wyko NT3300. La mesure avant impression permet d'obtenir l'amplitude et la forme des rugosités. La mesure après impression montre l'effet de ces rugosités sur la taille et la forme de la goutte (figure II.3). Les deux inconvénients majeurs de ce dispositif sont la faible zone de mesure (typiquement  $100\mu\text{m} \times 100\mu\text{m}$ ) et la durée d'une telle mesure.

L'énergie des surfaces est obtenue à partir de méthodes indirectes qui nécessitent la caractérisation de l'interaction liquide / solide, soit la connaissance de l'angle statique d'équilibre, de l'angle d'avancée et de l'angle de reculée. Pour cela, il faut pouvoir mettre une goutte en mouvement lent (état quasi statique) sur la surface.



**Figure II.3 : Mesure interférométrique d'une goutte d'encre UV sur un substrat industriel d'aluminium avec un couchage hydrophile.**

Deux dispositifs expérimentaux ont été réalisés à cet effet. Dans les deux cas, l'illumination et la visualisation sont respectivement réalisées par une lumière continue 50W et une caméra CCD uEye. Le premier dispositif est composé d'un système de translation trois axes micrométriques de 25mm (précision  $5\mu\text{m}$ ) de course pour le positionnement et d'une plaque qui peut être inclinée à  $360^\circ$  [Rura & Fort, 2001]. La rotation est manuelle pour les grandes variations et peut être réalisée à l'aide d'une vis micrométrique de précision pour les petites rotations sur  $\pm 0.1^\circ$ . Le substrat est placé sur cette plaque de rotation et est maintenu par une vis. Une goutte est disposée sur la plaque à caractériser et on lance l'enregistrement vidéo. La première image sert à la mesure de l'angle statique. Ensuite, la plaque tourne jusqu'à obtenir une inclinaison suffisante pour atteindre l'angle d'avancée de la goutte. Dans ce cas, la goutte n'adopte plus une forme axisymétrique. Il apparaît qu'à l'avant et à l'arrière de la goutte les angles de mouillage sont différents. La mesure s'effectue dès que la goutte se déplace sur la surface. La figure II.4.a montre le dispositif d'inclinaison et la figure II.4.b donne un exemple d'image obtenue au court de ce déplacement. Une mesure directe sur les images obtenues donne accès à l'angle d'avancée et à l'angle de reculée. Cette méthode est simple à mettre en œuvre, ne nécessite que peu de matériel et les résultats obtenus sont très cohérents avec la littérature. Toutefois, elle présente une limitation forte liée à la mise en mouvement de la goutte. Si le support est très mouillant pour le liquide ou si la surface présente des rugosités sur lesquelles la ligne de contact peut s'accrocher, une inclinaison à  $90^\circ$  ne suffit pas à observer un déplacement de la goutte (les gouttes de pluies restent accrochées sur les vitres).

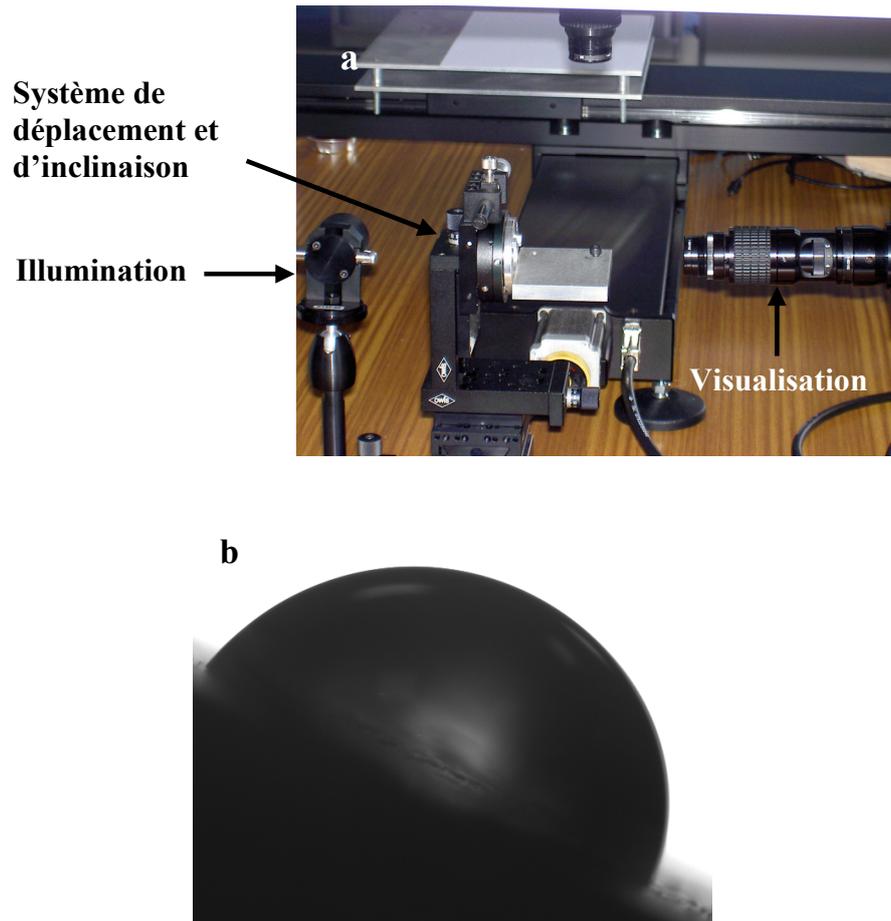
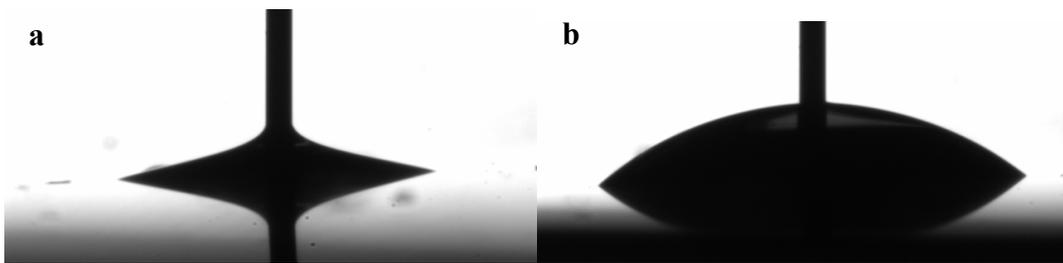


Figure II.4 : (a) Dispositif d'inclinaison et (b) exemple d'image obtenue (inclinaison à 26.5°).

En augmentant le volume, nous obtenons un déplacement du fluide mais la géométrie ne correspond plus à celle d'une sphère tronquée et ce volume critique excède très souvent le volume obtenu à partir de la longueur capillaire ([Quéré, 1998]). Cette maquette doit être équipée à terme d'une source d'excitation extérieure (haut parleur ou céramique piézoélectrique) afin d'aider la goutte à passer les barrières énergétiques et mettre le système en mouvement.

Le second dispositif se base sur une méthode qui consiste à mettre la goutte en mouvement en augmentant (mesure de l'angle d'avancée) et puis diminuant (mesure de l'angle de reculée) le volume de liquide. Pour cela, un orifice est réalisé dans les supports par lequel on passe l'aiguille. Dans ce cas, elle ne perturbe pas (ou peu) l'écoulement et l'on s'assure que l'épaisseur de la goutte reste bien inférieure à l'épaisseur capillaire ([Kwok & Neumann, 1999]). La fragilité de nos surfaces de silicium ne nous permet pas de réaliser d'orifice, néanmoins le second dispositif fonctionne sur ce principe. Il est composé d'un support plan, de la pompe pousse seringue et d'une seringue. Cette dernière est fixée sur un système de

translation verticale micrométrique au dessus de la surface à étudier. Nous déposons une goutte dans laquelle l'aiguille est introduite, au centre et aussi près que possible du substrat. Cet aspect est important lors du retrait du liquide dans le cas d'angles de reculés faibles. La pompe pousse seringue sert à augmenter et à diminuer le volume de fluide avec un débit contrôlé. Notre méthode, bien qu'intrusive, conduit à des résultats corrects. Les mesures d'angles sont réalisées comme précédemment par mesure directe à partir des images expérimentales. La figure II.5 présente les résultats obtenus dans les cas d'angle d'avancée et d'angle de reculée.



**Figure II.5 : Observation de l'angle (a) de reculée et (b) d'avancée dans le cas d'une goutte d'eau distillée sur une surface modèle d'angle d'équilibre  $\theta_{eq} = 30^\circ$ .**

Cette méthode est également simple à mettre en œuvre. Sa principale limitation est liée à l'introduction de l'aiguille dans le fluide ce qui présente deux inconvénients. Dans le cas du retrait de fluide, on peut voir qu'il mouille l'aiguille de façon importante. La surface libre n'a pas la forme d'une calotte sphérique contrairement au cas de la méthode conventionnelle. Néanmoins, il est possible de considérer que la présence de l'aiguille n'influence pas les mécanismes au niveau de la ligne triple. Enfin, il faut également s'assurer que l'aiguille reste parfaitement à la verticale et placée au centre de la goutte pour conserver le caractère axisymétrique de l'écoulement.

En comparant les résultats donnés par ses deux méthodes (tableau II.5), des écarts importants sont observés. La méthode intrusive donne des résultats très reproductibles alors que l'inclinaison de la surface modifie, de plusieurs degrés ( $>10^\circ$  dans certains cas), les angles observés. Les valeurs considérées dans la suite sont celles obtenues par la méthode intrusive et sont reportées dans le tableau II.5.

Surface	Méthode d'inclinaison		Méthode d'intrusion	
	$\theta_a$ (°)	$\theta_r$ (°)	$\theta_a$ (°)	$\theta_r$ (°)
Verre	38	13	38	30
Epoxyde	72	15	75	50
Téflon	102	80	100	75

**Tableau II.5 : Comparaison des deux méthodes de mesure des angles d'avancée et de reculée pour de l'eau distillée.**

La méthode de modification du volume de liquide est plus adaptée que la méthode d'inclinaison du substrat pour accéder aux différents angles. L'augmentation du volume de fluide, ou sa diminution, force la mise en mouvement de la goutte et la vitesse de déplacement de la ligne triple est contrôlable par le débit de fluide. Cette deuxième méthode permet de mesurer une plus large gamme de supports en s'affranchir des problèmes dus à la rugosité.

### ***Dispositif d'éjection et de visualisation***

La réalisation de l'étude présentée ici nécessite la conception et la réalisation d'un dispositif expérimental précis pour l'observation et l'acquisition des gouttes dans diverses configurations (impact, dépôt, éjection etc...). A partir des montages utilisés par ailleurs ([Mourougou-Candoni et al, 1997 ; Rozhkov et al, 2002 ; Rioboo et al, 2002 ; Rozhkov et al, 2003 ; Sikalo et al, 2002 ; Allaman et al, 2003-1 ; Roux & Cooper, 2004]), nous avons mis en œuvre un dispositif constitué d'un système de génération de gouttes, d'un système d'illumination, d'un système de synchronisation déclenchement / observation et d'un système de visualisation. La figure II.6 montre une photographie de la maquette expérimentale dans le cas des macrogouttes. Le système reste équivalent dans le cas des microgouttes en changeant le système d'éjection, la caméra et le système d'illumination.

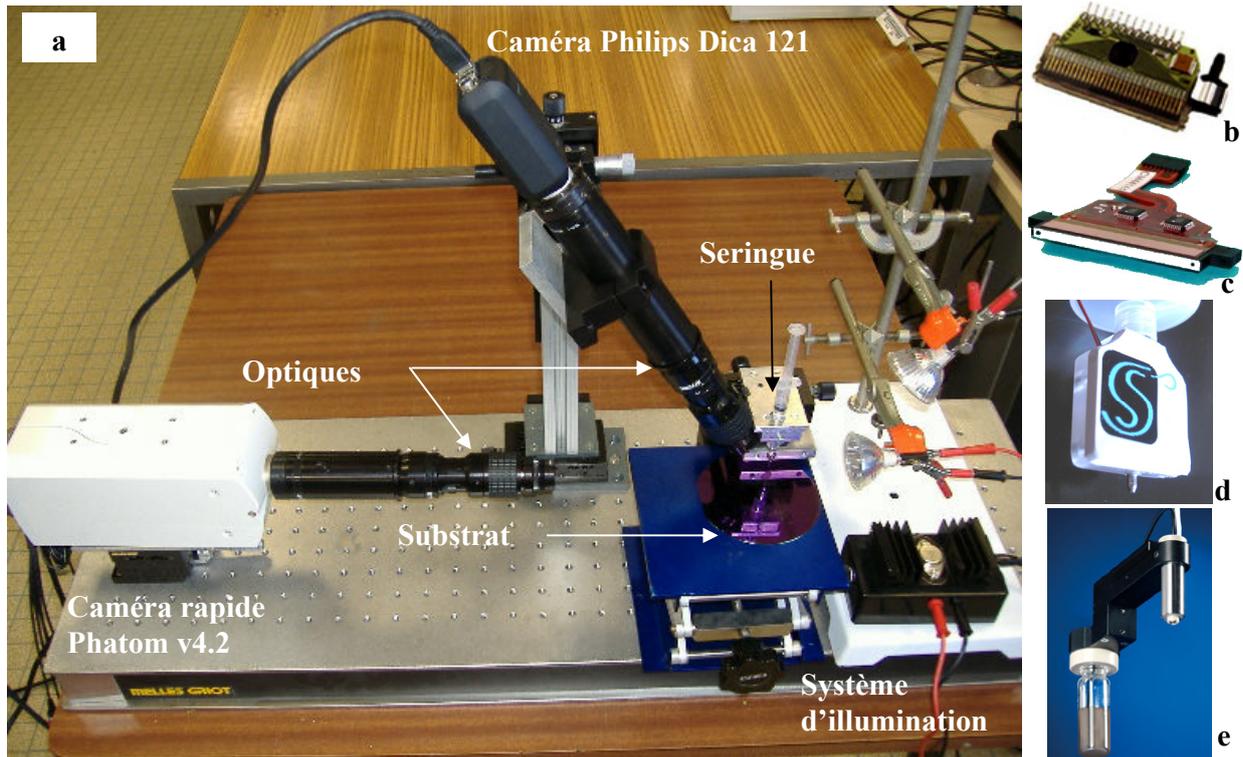


Figure II.6 : (a) Dispositif expérimental pour l'observation des macrogouttes et images de la tête d'impression (b) IJT64 IDE, (c) Spectra SL128, (d) Siliflow et (e) Microdrop MDK140.

## Dispositif d'éjection

Les systèmes d'éjection utilisés pour nos applications se composent de deux types de dispositifs distincts. La dispense des macrogouttes est assurée par une pompe pousse seringue qui présente de nombreux avantages. Outre le fait d'être programmable, elle est capable de délivrer un volume de liquide très faible avec une précision et une reproductibilité importante. La goutte est obtenue au bout d'une aiguille à seringue, parfaitement calibrée, d'un diamètre de  $150\mu\text{m}$  et fixée sur un support rigide. Ce support peut être déplacé manuellement suivant les trois directions de l'espace par des bancs micrométriques de  $25\text{mm}$  de course (précision de  $0.5\mu\text{m}$ ). La génération de la goutte se fait lentement pour assurer une reproductibilité optimale. De plus, lorsqu'un liquide présente à la fois une faible viscosité et une faible tension de surface, la goutte a tendance à remonter le long de l'aiguille pendant sa formation bien que l'aiguille soit relativement hydrophobe. Quand la masse de liquide est suffisante, la goutte redescend mais reste attachée à l'aiguille et oscille latéralement. Si le liquide est poussé trop fortement, la goutte peut se décrocher durant ces oscillations, déviant de sa position d'impact jusqu'à plusieurs millimètres. Le substrat se trouve à la verticale de l'aiguille et c'est la

différence d'altitude entre le bas de la goutte et le substrat qui fixe la vitesse d'impact de la goutte.

Les microgouttes sont générées à l'aide d'un éjecteur piézoélectrique. Plusieurs dispositifs mono buse (i.e. un seul orifice d'éjection) sont disponibles dans le commerce (MicroDrop®, Microfab®, IJT® etc...) et avec des performances et des tailles d'orifices d'éjection différents. Nous avons choisi d'équiper nos maquettes avec des éjecteurs Microfab®, Microdrop MDK140® (figure II.6.e), Microdrop ADK501® et Siliflow® (figure II.6.d). Pour rester proche des applications d'impression numérique, les encres industrielles sont déposées sur les substrats industriels par des éjecteurs multibuses de type IJT64 IDE® (figure II.6.b) et Spectra SL128® (figure II.6.c) et SE 128. L'utilisation de ces éjecteurs nous permet de former des gouttes dont le diamètre en vol est compris entre 50 $\mu$ m et 250 $\mu$ m en fonction de la taille de l'orifice choisi. Hormis dans le cas de la Microdrop ADK501® et de la tête d'éjection Siliflow où l'alimentation en fluide se fait par aspiration, chaque éjecteur est équipé d'un réservoir d'environ 20ml. L'éjection avec ces systèmes est fine ; elle nécessite une dépression de l'ordre de quelques mBar (environ une dizaine) réglée avec une précision inférieure au mBar. Cette dépression permet de maintenir le liquide au niveau de la buse, appelée ménisque, tendu vers l'intérieur du capillaire. Une dépression trop faible a pour conséquence le mouillage de la plaque à buse (ou orifice) par le fluide et perturbe l'éjection et le détachement de la goutte. Une dépression trop forte fait remonter le fluide dans la buse. Dans tous les cas, une dépression mal réglée conduit à une éjection instable, voire pas d'éjection du tout. De tels dispositifs demandent une attention et un savoir-faire particulier.

Les éjecteurs sont positionnés à la verticale du support à une distance comprise entre 500 $\mu$ m et 1mm. Ils sont fixés sur des systèmes de translations manuelles micrométriques du fait du faible champ d'observation (3 à 5 fois le diamètre initial de la goutte) et de la précision de positionnement de l'endroit d'impact. La vitesse des gouttes formées peut varier entre 1 à 12m/s. La gamme de viscosité est comprise entre 1 et 20mPa.s pour l'ensemble de ces dispositifs (voire moins pour certains) et la tension de surface varie entre 25 et 73mN/m.

## **Electronique de pilotage**

### **Déclenchement par coupure d'un faisceau optique**

Dans nos expériences, il est important de pouvoir contrôler le déclenchement précis de l'enregistrement de la/les caméras. Pour les macrogouttes, un capteur optique est placé entre

la seringue et le substrat afin de détecter le passage de la goutte. Une carte électronique ainsi qu'une interface utilisateur ont spécialement été réalisées pour déclencher la capture d'image avec un délai variable entre  $10\mu\text{s}$  et  $1\text{s}$  (le circuit électronique le permet simplement) et fixé par l'utilisateur. La précision de ce dispositif permet de contrôler la vitesse d'impact d'une expérience à l'autre via le nombre d'images entre le déclenchement et l'instant de l'impact. Pour une distance fixe entre l'aiguille et le support, le nombre d'images entre le déclenchement et l'instant de l'impact est théoriquement identique. Expérimentalement, de petits décalages sont observés mais ils n'excèdent pas  $100\mu\text{s}$ . La reproductibilité de la taille de la goutte et de la vitesse d'impact est donc très bonne (écarts inférieurs à 5%). La figure II.7 présente deux expériences successives dans des conditions identiques d'impact d'une goutte d'eau distillée. On observe la similitude des profils, notamment aux temps très courts (surface de contact initiale entre la goutte et la surface très proche d'une expérience à l'autre).

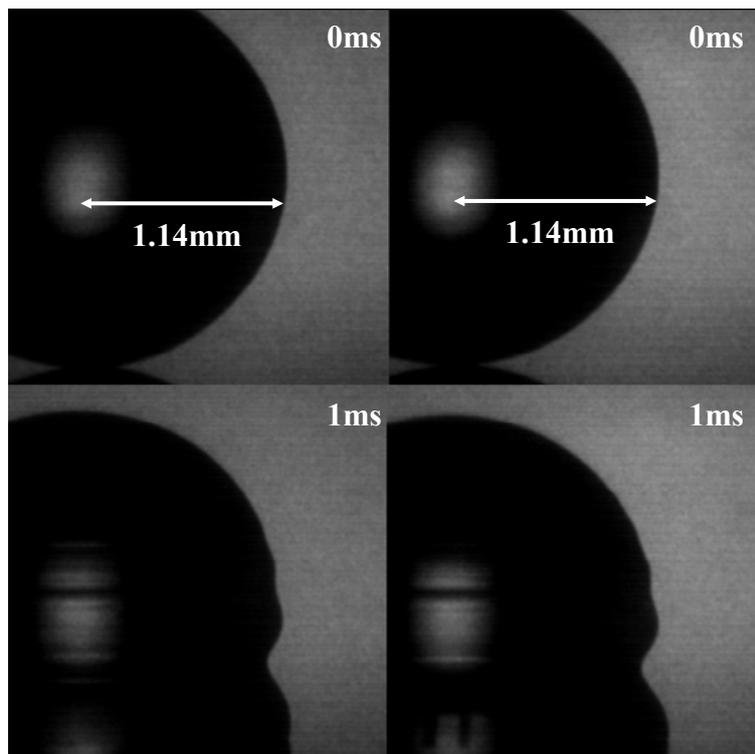


Figure II.7 : Répétitivité de la vitesse d'impact expérimentale ( $U = 0.35\text{m/s}$ ) pour deux expériences identiques.

### Déclenchement par synchronisation électronique

Le contrôle des éjecteurs piézoélectriques est plus élaboré. Un générateur basse fréquence (GBF) génère un créneau 0-5V de durée déterminée (quelques microsecondes à quelques

centaines de microsecondes). Un boîtier électronique, spécialement développé pour nos applications, amplifie le signal afin d'obtenir une tension pouvant aller jusqu'à 250V. Le temps de montée du signal électrique doit être aussi court que possible. C'est notre cas avec une montée de 70V/ $\mu$ s. L'application de cette différence de potentiel, de forme et de durée fixée est appelée forme d'onde, induit une déformation de la céramique piézoélectrique à l'origine de la formation de la goutte. Suivant les éjecteurs, les céramiques piézoélectriques fonctionnent en constriction d'un capillaire en verre (Microfab, Microdrop) ou en vibration d'une membrane (Siliflow). Il en résulte une pression dans le capillaire qui conduit à générer l'instabilité hydrodynamique à l'origine de la formation de la microgoutte. Les caractéristiques physiques du fluide ont un impact direct sur l'éjectabilité du fluide de la même façon que les gammes de tensions et de fréquences à utiliser changent d'un éjecteur à l'autre. La forme d'onde doit donc être ajustée et modifiée en fonction du couple éjecteur/fluide employé. Il faut préciser que la fréquence d'éjection modifie également le comportement de l'éjection en mode « continu ». De plus, pour minimiser la taille des gouttes et éliminer les satellites qui peuvent apparaître, le filament de fluide peut être cisailé. Pour cela, la forme d'onde doit passer rapidement à une tension négative pour ré-aspirer le fluide et faciliter ainsi sa brisure (ou « pinch-off »). Une carte de pilotage est en cours de réalisation pour obtenir des formes d'ondes de ce type. La vitesse de la goutte, et son volume dans une certaine mesure, sont contrôlés par l'amplitude et la durée du signal électrique mais seule une mesure directe à partir d'images expérimentales permet d'y accéder. Le délai pour déclencher l'acquisition et l'illumination est contrôlé par le même dispositif que celui employé pour les macrogouttes. La goutte n'est pas suffisamment importante pour couper le signal optique du capteur mais la fonction de délai est une fois encore utilisée. Ce point sera développé dans le paragraphe suivant. Enfin, un dispositif particulier a été conçu pour le positionnement précis des gouttes. Deux bancs de translation motorisés de 600mm de course et de bonne précision (10 $\mu$ m) sont fixés perpendiculairement et sous l'éjecteur. Le signal d'éjection est synchronisé avec la position de l'éjecteur dans le plan (XY) défini par ces bancs. Ce dispositif sera plus amplement décrit dans le chapitre concernant les applications.

## **Caméras, illumination et observations**

Au cours de ce travail, plusieurs caméras ont été utilisées en fonction des besoins spécifiques du type d'expérience réalisé. La liste est la suivante :

- Caméra CCD 25 images /s combinée à une illumination stroboscopique pour observation de la génération de microgouttes (méthode de pseudo cinématographie à déphasage contrôlé)
- Caméra Sensicam SVGA à court temps d'intégration avec option de multi expositions combinée à une illumination continue pour observation de la génération et de l'impact de microgouttes (méthode de pseudo cinématographie à déphasage contrôlé).
- Caméra rapide SpeedCam Visario, Phatomn V7.0 et Phantom V4.2 combinées à une illumination continue pour le suivi du diamètre et de la hauteur transitoire (cinématographie rapide). L'utilisation d'une illumination de type pulsée (pulse de quelques nanosecondes) permet d'obtenir de manière détournée des obturations encore plus courtes (durée d'illumination inférieure au temps d'obturation de la caméra).
- Caméra rapide NAC Memremcam combinée à un intensificateur de lumière Hamamatsu C9548 (obturation de 10ns à 1 $\mu$ s) pour mesure du diamètre, de la hauteur et de l'angle de contact dynamique (cinématographie rapide)

Toutes ces caméras sont équipées d'optique ultrazoom Navitar et de lentille de grossissement x0.5, x1, x2 ou x10. Selon le type de goutte (microgoutte ou macrogoutte) et les échelles de temps observées, les caméras doivent être adaptées. Dans cette partie, nous présentons les caméras que nous avons utilisées sur notre maquette expérimentale (ou sur une maquette équivalente) ainsi que les techniques de visualisation employées et les illuminations associées.

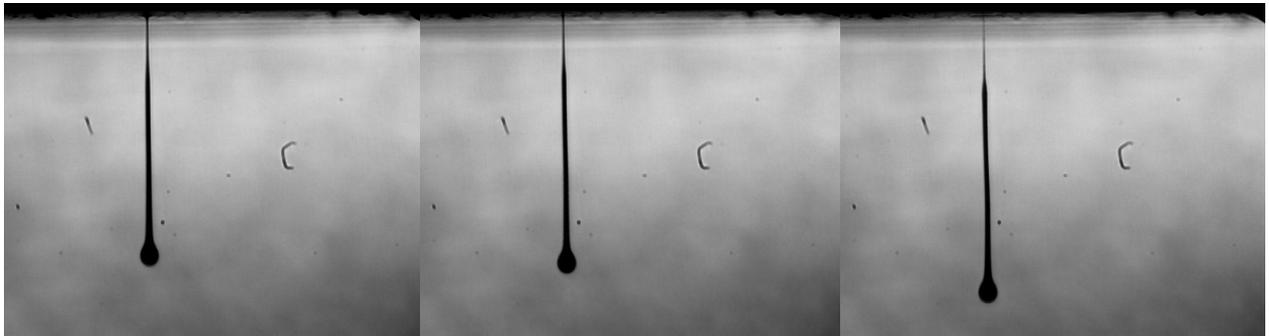
### **Pseudo cinématographie à déphasage contrôlé**

La génération des microgouttes est fortement dépendante du couple liquide/éjecteur et de la forme d'onde appliquée. Par ailleurs, il est impossible de connaître exactement la vitesse d'impact et le volume de fluide éjecté sans visualisation du phénomène. L'observation permet également de contrôler la présence ou non de satellites suivant ou précédant la goutte principale. Le suivi d'une seule goutte par expérience est impossible du fait des temps caractéristiques des phénomènes étudiés. La caméra devrait être capable d'enregistrer  $10^6$  images par seconde avec un temps d'obturation inférieur ou égal à 100ns. Pour pallier ces contraintes techniques importantes, nous avons utilisé une technique de pseudo-cinématographie à déphasage contrôlé. Elle se base sur l'hypothèse de répétabilité du phénomène d'éjection et consiste à observer plusieurs gouttes différentes à des instants

différents. Le boîtier de pilotage assure une synchronisation entre l'éjection et l'illumination dont le délai et la durée sont variables. Le décalage temporel est parfaitement connu et maîtrisé. Une succession d'images correspondant à des instants précis du phénomène étudié est obtenue, ce qui permet d'en reconstituer le « film ». Le caractère « pseudo » de cette technique est lié au fait que la goutte soit différente d'une image à l'autre.

### Lumière pulsée

Les caméras que utilisées pour mettre en œuvre cette méthode sont de deux types. Pour chacune d'elles, il convient simplement de modifier le système d'éclairage. Avec une lumière pulsée (type diode), nous utilisons une caméra CCD uEye. Elle permet l'acquisition de 20 images par seconde avec une résolution de 640x480 pixels. Le temps d'acquisition de cette caméra est très grand devant celui des phénomènes physiques, c'est donc la durée du flash qui joue le rôle d'obturateur. Pour que l'illumination du capteur soit suffisante pour l'enregistrement d'une image, plusieurs milliers de gouttes sont éjectées et éclairées avec un délai fixe. A l'écran, la goutte apparaît fixe mais correspond en réalité à la superposition de l'ensemble des gouttes générées. Quelques exemples sont donnés sur la figure II.8.



**Figure II.8 : Exemple d'éjection de fluide et d'observation par pseudo-cinématographie à déphasage contrôlé avec une caméra et illuminée par une diode.**

Les instabilités liées à l'éjection, bien qu'elles soient réduites et que la durée du flash soit d'une microseconde, engendrent un effet de flou sur le pourtour de la goutte. L'instantanéité de la prise d'image n'est pas suffisante. La goutte en vol, sous sa forme de sphère et lorsqu'elle est observée au grossissement maximum, représente environ 60 pixels avec une épaisseur sur le flou de 3 à 5 pixels. De plus, cette épaisseur évolue dans le temps et varie selon que les mesures sont effectuées dans la direction de déplacement de la goutte, ou perpendiculairement. Un grossissement moindre diminue le nombre de pixels occupé par le flou mais également par la goutte. Cela n'améliore évidemment pas la précision de la mesure.

Le meilleur compromis conduit à une incertitude sur la valeur du diamètre d'environ 10%. La vitesse est calculée à partir du déplacement de la goutte de la position  $P_1$  à  $P_2$ , repérée centre à centre, entre deux instants particuliers suivant la formule :

$$U = \frac{P_2 - P_1}{t_2 - t_1} \quad (\text{II.1})$$

La précision et le temps de réponse des électroniques de pilotage sont très inférieurs à  $1\mu\text{s}$  et ces incertitudes seront négligées. L'incertitude relative sur la vitesse d'impact est définie par l'équation II.2 :

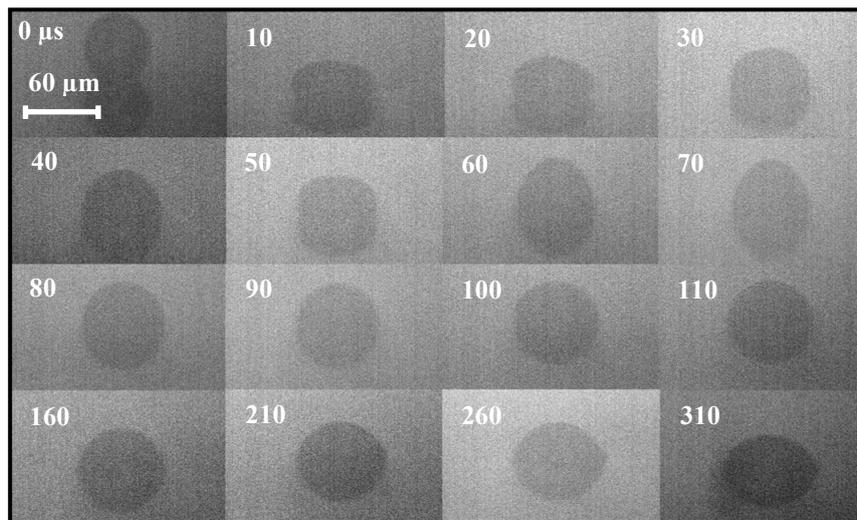
$$\frac{\Delta U}{U} = \frac{\Delta P_1}{P_1} + \frac{\Delta P_2}{P_2} \quad (\text{II.2})$$

La position du centre de la goutte est repérée par la mesure du diamètre avec et sans flou. Cette opération est répétée sur chaque image et conduit à une incertitude totale sur la vitesse également à 10% environ dans le meilleur des cas.

#### Lumière continue et caméra court temps d'acquisition

Cette technique d'illumination stroboscopique présentée ci-dessus est simple à mettre en œuvre pour suivre l'éjection mais devient compliquée dès lors que l'on considère l'impact. Il faut dans ce cas synchroniser l'éjection, l'illumination et le déplacement d'un banc de translation. Le déplacement du banc doit être parfait et systématique sur chaque pas. Il faut également s'assurer qu'aucun mouvement vertical n'apparaît (le support doit être parfaitement à l'horizontal). Cela n'est pas impossible mais difficile en pratique et la présence du substrat diminue fortement la quantité de lumière. Pour compenser cette perte, il faut augmenter la durée du flash, ce qui augmente également la zone de flou. Dans ce cas, l'épaisseur de la zone d'incertitude peut devenir comparable avec la zone à mesurer. Une incertitude de cet ordre est bien évidemment exclut. La solution consiste à utiliser une caméra beaucoup plus performante en terme de sensibilité, de taille de capteur et surtout à obturation très courte. Nous avons utilisé la caméra Sencam SVGA équipée d'un zoom Mitutoyo x10 (observation à 36mm de la goutte) couplée avec un système d'éclairage par fibre optique continue. Cette caméra est peu rapide (8 images par seconde) mais elle est capable d'acquérir une image de  $1280 \times 1024$  pixels sur 12 bit (4096 niveaux de gris) avec un temps d'obturation que l'on peut diminuer jusqu'à 100ns. Le capteur CCD est refroidi et maintenu à  $-12^\circ\text{C}$ . Cela permet de diminuer fortement le bruit inhérent au capteur et d'obtenir une image de très haute qualité. Par ailleurs, il est possible de ne sélectionner qu'une partie du capteur. Pour des

raisons de contraste et de qualité d'image, le temps d'intégration généralement utilisé est de l'ordre d'une à deux microsecondes au maximum. Une valeur inférieure à ce temps ne permet pas d'obtenir une qualité d'image suffisante pour mesurer, même manuellement, les grandeurs géométriques qui nous intéressent. Une valeur supérieure conduit à un effet de flou similaire à celui observé par l'illumination stroboscopique et dont la cause est, cette fois, le déplacement de la surface libre. La figure II.9 présente les images obtenues à partir de ce dispositif.



**Figure II.9 : Profils expérimentaux, d'une microgoutte d'encre industrielle base eau ( $\mu = 3.2\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 33.2\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 64\mu\text{m}$ ,  $U = 1.2\text{m/s}$ ,  $We = 2.8$ ,  $Re = 24$ ) impactant sur une surface de PET avec un couchage non mouillant ( $\theta_{\text{eq}} = 50^\circ$ ), obtenus avec la caméra Sensicam SVGA, obturation à  $2\mu\text{s}$ .**

Les contours et les déformations de la surface libre sont parfaitement visibles ; cependant, le temps d'intégration est trop important pour obtenir des contours parfaits. Par ailleurs, il faut remarquer que la position de l'axe de symétrie horizontal (i.e. le substrat qui fait un effet miroir) varie d'une image à l'autre. Bien que le banc de translation soit placé à l'horizontal sur une plaque de marbre, au fur et à mesure du déplacement, la surface d'impact s'élève légèrement. Cette variation verticale peut atteindre  $50\mu\text{m}$  environ entre deux positions extrêmes (début et fin de l'expérience) et perturbe fortement l'étude du phénomène d'impact de microgouttes. En effet, à une vitesse d'impact de  $1\text{m/s}$ , un déplacement de  $20\mu\text{s}$  verticalement induit que la goutte entre en contact avec la surface  $20\mu\text{s}$  plus tôt, ce qui est comparable avec le temps caractéristique de l'impact ( $t_i = 50\mu\text{s}$  dans ces conditions pour une microgoutte de  $50\mu\text{m}$  de diamètre).

Pour résoudre en partie ce problème, nous utilisons le mode particulier dit de « multishot exposure » de cette caméra. Sur la même image, elle peut superposer jusqu'à 10 images différentes de la même expérience avec des temps d'acquisitions et des écarts entre les images de l'ordre de la microseconde. Cela est relativement intéressant pour le contrôle de la vitesse des microgouttes en vol, lors de l'éjection ou avant l'impact sur le substrat ou pour l'acquisition des tout premiers instants de l'impact d'une macrogoutte. Les résultats obtenus avec cette méthode sont comparables avec ceux donnés par [Kim et al, 2003] où les auteurs utilisent un système de flash rapide (150ns) pour enregistrer une microgoutte, de différents liquides impactant à 10m/s, à différents instants mais sur une même image. Les profils enregistrés sont de très bonne qualité et montrent une forte ressemblance avec les profils observables lors de l'impact de macrogouttes.

Il est possible de mesurer avec précision la distance entre la goutte et le substrat et à partir de la mesure de la vitesse et de la distance goutte / substrat sur chacune des images, on obtient le temps nécessaire à la goutte pour atteindre la surface (équation II.3).

$$t_{imp} = \frac{L}{U} \quad (II.3)$$

où L est la distance à la surface et U la vitesse d'impact. Le temps depuis lequel la goutte est train de s'étaler est obtenu en soustrayant cette valeur  $t_{imp}$  au temps auquel est prise l'image après la deuxième exposition. L'incertitude sur ce temps est définie par :

$$\frac{\Delta t_{imp}}{t_{imp}} = \frac{\Delta L}{L} + \frac{\Delta U}{U} \quad (II.4)$$

La taille typique de la distance à la surface à la deuxième exposition est de 300µm et l'incertitude de mesure de cette distance est d'environ 4 µm (soit 5 pixels). L'incertitude relative sur le temps depuis lequel la goutte a impacté est de 4% environ. Ce contrôle permet notamment d'accéder à des temps compris dans le régime inertiel. Les résultats de ces mesures sont donnés dans le chapitre III.

La figure II.10.a montre un exemple de la génération d'une microgoutte d'encre, enregistré avec ce mode de multi expositions. Les temps sont donnés en microsecondes sur les images (en bas de chacune d'elle), la référence temporelle étant l'instant de l'envoi de la forme d'onde à l'éjecteur. Sur chacune des images, on peut voir à la fois un profil transitoire avant le décrochement ainsi que deux fois la goutte sous sa forme sphérique.

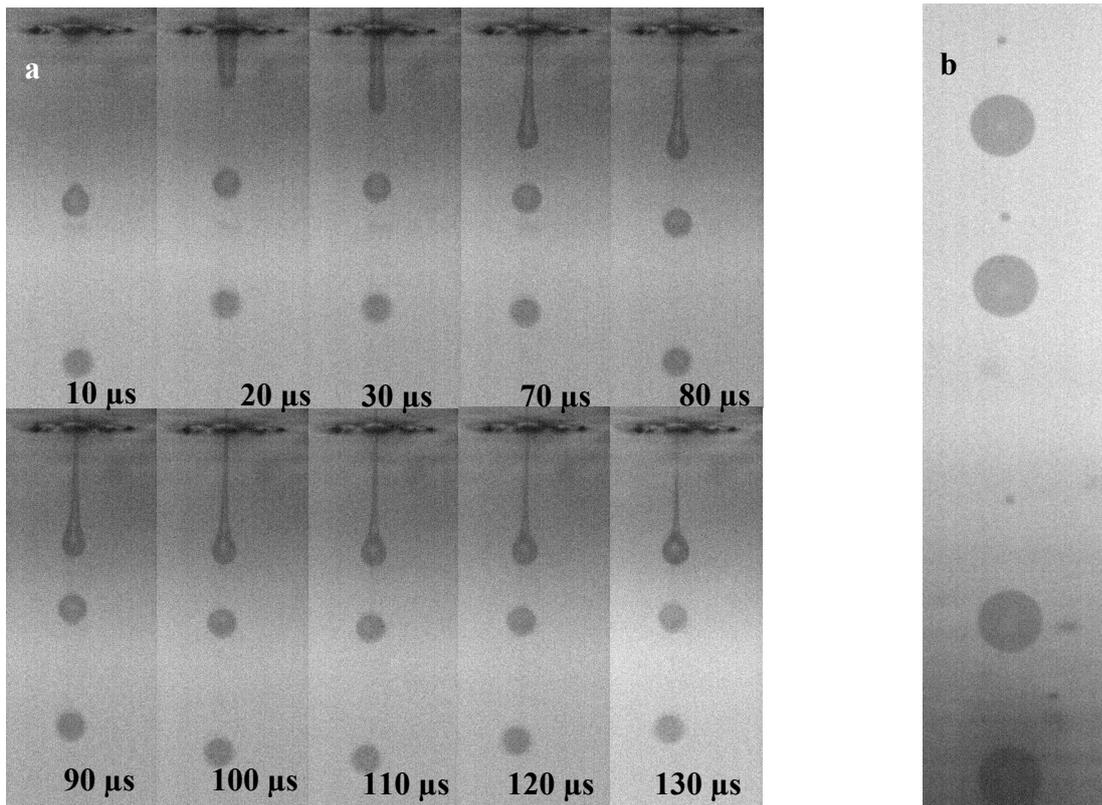


Figure II.10 : Profils expérimentaux, d'une microgoutte d'encre industrielle base eau ( $\mu = 3.2\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 33.2\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 64\mu\text{m}$ ,  $U = 1.2\text{m/s}$ ,  $We = 2.8$ ,  $Re = 24$ ) éjectée par une tête d'impression Spectra SE 128, obtenus avec la caméra Sensicam SVGA en mode multi exposition (a) lors de l'éjection et (b) avant impact.

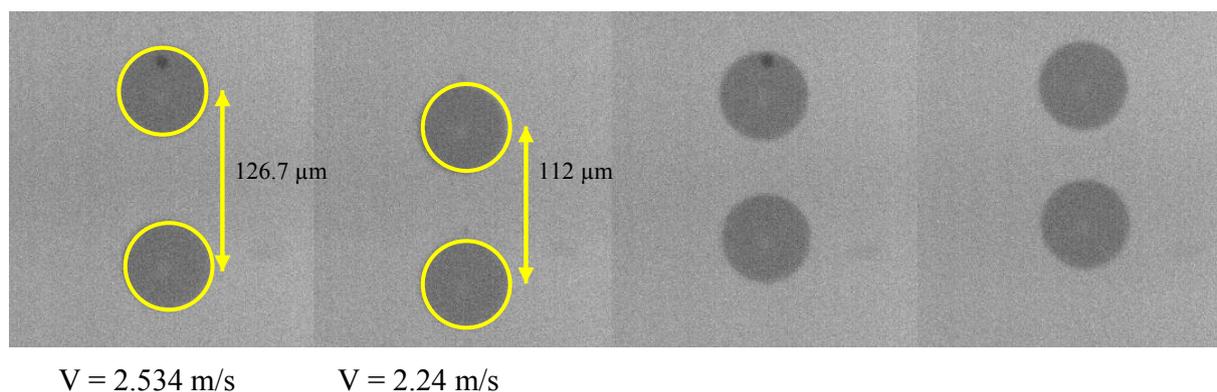
La figure II.10.b montre une image expérimentale avant impact avec enregistrement de deux positions de la goutte avant impact pour mesure de la vitesse. Cette méthode permet le calcul de l'instant de l'impact, en tenant compte des variations de vitesse, pour chacune des expériences. La mesure du diamètre s'effectue de la même manière que précédemment mais la définition est nettement supérieure. L'incertitude sur la mesure du diamètre est de deux pixels soit 2.5%. Sur ces images, la goutte représente environ 80 pixels pour une taille de  $64\mu\text{m}$ . Un pixel correspond donc à  $0.8\mu\text{m}$ , soit une incertitude de  $1.6\mu\text{m}$ . Comme précédemment, l'incertitude sur la mesure de la vitesse est du même ordre de grandeur. Il faut cependant préciser que les éjecteurs piézoélectriques, lorsqu'ils sont utilisés en mode goutte à la demande, induisent davantage de variations que 2.5% sur la vitesse. Habituellement, plusieurs milliers de gouttes sont éjectées, et non pas seulement une, ce qui permet d'établir le phénomène d'éjection. Il faut également préciser que la forme d'onde choisie (montée de 0 à 60V en  $5\mu\text{s}$ , 60V pendant  $5\mu\text{s}$  puis redescende de 60V à 0V en  $5\mu\text{s}$ ) ne correspond pas à la forme d'onde usuelle de cette tête d'impression (amplitude plutôt aux alentours de 110-120V). Cela a certainement contribué à l'augmentation des variations. Nous avons choisi ces

conditions opératoires pour obtenir une goutte sphérique le plus près possible de la plaque à buse et une éjection sans satellites aussi reproductibles que possible. Pour une amplitude supérieure, le filament est plus long et la goutte devient sphérique beaucoup plus près de la surface d'impact. Enfin, les paramètres extérieurs peuvent également perturber l'éjection et la trajectoire de la goutte. Par exemple, la proximité de l'illumination augmente de plusieurs degrés la température au niveau de la plaque à buse, ce qui fluidifie ponctuellement l'encre. De la même manière, pour les encres devant être chauffées pour être éjectées, les écarts sur la régulation de température dans l'éjecteur perturbent l'éjection. A partir de l'équation de Poiseuille suivant le sens d'éjection, et en considérant que la pression due à la céramique piézoélectrique soit parfaite, on obtient :

$$\frac{\Delta U}{U} = \frac{\Delta \mu}{2\mu} \quad (\text{II.5})$$

A titre d'exemple, pour une encre éjectée à 70°C avec une tête d'impression industrielle Spectra®, avec une variation de 1°C autour de cette température (ce qui a une incidence sur la viscosité, modification de 5.74mPa.s à 5.39mPa.s), la vitesse varie de 3%. Le refroidissement de la lampe et de la caméra créent des mouvements d'air qui peuvent dévier la goutte, la ralentir ou l'accélérer. Tous ces facteurs d'incertitude et de variations expliquent les modifications conséquentes de la vitesse d'éjection d'une expérience à l'autre.

Sur la figure II.10.a, la goutte sous sa forme sphérique est toujours enregistrée avec le même décalage temporel vis-à-vis du signal d'éjection. On constate cependant que sa position varie de plusieurs dizaines de micromètres d'une expérience à l'autre.



**Figure II.11 : Exemple de 4 enregistrements lors d'une mesure de vitesse pour un même triplet forme d'onde / éjecteur / encre.**

Les variations de vitesse observées par cinématographie à courts temps d'acquisition, donnent des écarts sur les temps d'impact d'environ 50μs sur l'instant de l'impact. La figure II.11

montre 4 exemples d'acquisitions réalisées sur 4 expériences identiques et enregistrées au même instant après envoi de la forme d'onde. Dans ce cas, on a un écart de 14% en vitesse. Expérimentalement, nous avons réalisé, grâce à cette option de multi-exposition, une mesure statistique sur plus de 500 enregistrements de la vitesse d'éjection pour la combinaison forme d'onde / Spectra SE 128 / encre. Nous avons obtenu une vitesse moyenne de 1.23 m/s. Lors de l'expérimentation à proprement parler, cela nous a permis une discrimination dans le choix des images servant à la construction du film du phénomène. Dès lors que la vitesse mesurée s'éloignait de plus de  $\pm 0.05$  m/s de la vitesse moyenne, l'image n'était pas conservée et l'expérience était reconduite. Dans notre étude, seule la vitesse à l'impact nous intéresse pour la quantification des nombres sans dimensions ( $We$ ,  $Re$ ). Sur chaque enregistrement, cette vitesse est mesurée grâce à l'acquisition en multi-exposition et sera considérée constante pour des conditions opératoires données de forme d'onde, de liquide, d'éjecteur et de température. Remarquons également que dans le cas des microgouttes, si les effets de traînées sont a priori non négligeables, la vitesse varie peu. En effet, les enregistrements du type de la figure II.10.b permettent de mesurer la vitesse à différentes positions en vol et montrent que la vitesse varie faiblement entre  $500\mu\text{m}$  et la surface.

Pour nous assurer de l'évolution de la vitesse, nous avons suivi la goutte sur la durée complète de son vol et constaté qu'elle ne varie pas aux incertitudes de mesures près.

Comme pour les microgouttes, la caméra Sensicam SVGA et sa fonction de multi-exposition combinée à une lumière continue sont très intéressantes dans le cas des macrogouttes. Elle permet d'acquérir avec une très grande précision plusieurs profils transitoires sur une même image avec un décalage temporel très bien connu et pouvant diminuer jusqu'à  $1\mu\text{s}$ . Il est donc possible d'accéder aux temps très courts dans le cas de l'impact d'une macrogoutte. La répétition de l'impact, en modifiant le temps entre deux expositions, permet de reconstituer le phénomène en multipliant le nombre de points de mesure. La figure II.12 montre un exemple d'image obtenue pour 10 expositions avec un délai de  $200\mu\text{s}$  entre chaque exposition. Nous avons choisi cet exemple car il permet de bien visualiser les différences d'un profil à l'autre. Le délai minimum que nous avons utilisé pour ces expériences, entre deux expositions, est de  $25\mu\text{s}$ . Cette technique permet un suivi fin des interfaces, particulièrement au niveau de la ligne triple où l'on distingue parfaitement l'angle de contact. Toutefois, la discrimination de chacune d'entre elles est difficile. Comme le montre la figure II.12, plus une zone du capteur voit d'expositions, plus elle s'assombrit (la valeur du niveau de gris augmente). La zone centrale de l'impact est donc beaucoup plus sombre que le reste.

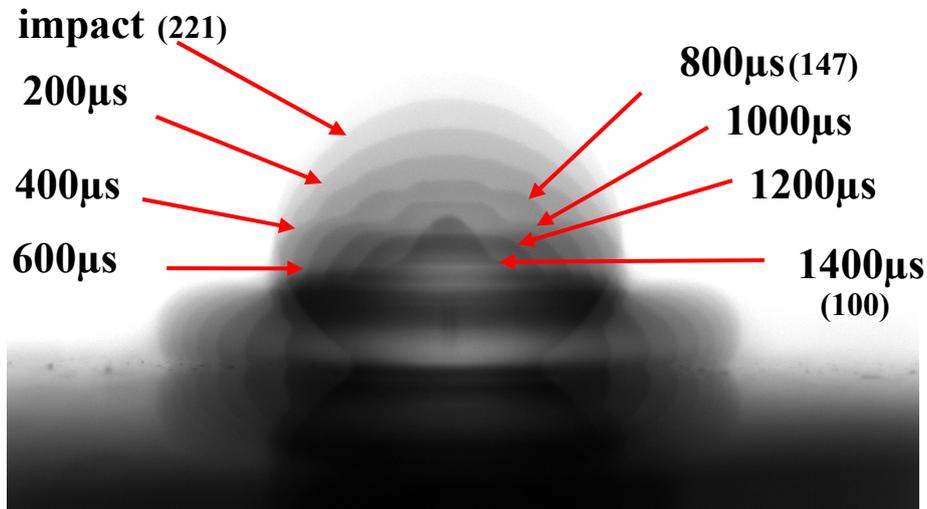


Figure II.12 : Acquisition en multi exposition d'une goutte d'eau distillée ( $D_0 = 2.2\text{mm}$ ) impactant sur du PET + couchage type V ( $\theta_{\text{éq}} = 70^\circ$ ) à  $U = 0.44\text{m/s}$  ; le niveau de gris moyen est donné entre parenthèses pour les profils à l'impact, à  $800\mu\text{s}$  et à  $1400\mu\text{s}$  (plus la valeur est élevée et plus la zone est claire).

Un profil à un temps donné n'a donc pas un niveau de gris identique (ou au moins proche) ce qui rend difficile son isolement par des algorithmes de traitements automatiques. Cependant, les courts temps d'expositions conduisent à un très bon déterminisme. En effet, sur ces images, un pixel représente  $5\mu\text{m}$ . Par conséquent, y compris pour les vitesses de déplacements importantes de la ligne triple ( $10\text{m/s}$ ), l'incertitude n'excède pas  $10\mu\text{m}$  de chaque côté, soit environ 2 pixels. Sur la figure II.12, à  $t = 1.4\text{ms}$ , le diamètre représente 825 pixels. En considérant le cas critique d'un déplacement à  $10\text{m/s}$  à cet instant, l'erreur de mesure relative est de 0.5%. Sur chacun de ces profils, la précision des mesures est donc excellente. La principale source d'erreur se situe sur la détermination de l'instant  $t_k$  auquel se trouve le profil  $k$  étant donnée que les incertitudes s'additionnent d'un profil à l'autre. Cette erreur a deux composantes. La première est la détermination du temps auquel la goutte a impacté. La seconde porte sur le temps de déclenchement précis de l'exposition. Cet instant peut être décrit par la formule suivante :

$$t_k = (\delta t_1 - t_{\text{imp}}) + \sum_{i=2}^k \delta t_i \quad (\text{II.6})$$

où  $\delta t_1 = t_1 - t_0$  est le délai entre l'image avant impact ( $t_0$ ) et la première image après impact ( $t_1$ ) et  $\delta t_i$  est le délai entre le profil considéré (profil  $i$ ) et le profil précédent (profil  $i-1$ ).

Sous sa forme différentielle,  $t_k$  s'exprime comme suit :

$$dt_k = d(t_1 - t_0 - t_{imp}) + \sum_{i=2}^k d(t_i - t_{i-1}) \quad (\text{II.7})$$

En développant, II.7 devient :

$$dt_k = dt_1 - dt_0 - d\left(\frac{L}{U}\right) + \sum_{i=2}^k d(t_i - t_{i-1}) \quad (\text{II.8})$$

Soit, en écriture complète détaillée

$$dt_k = (dt_1 - dt_0 - \frac{UdL - LdU}{U^2}) + \sum_{i=2}^k dt_i - dt_{i-1} \quad (\text{II.9})$$

Pour être complet, le calcul de l'incertitude sur la vitesse d'impact fait intervenir deux images et par conséquent deux incertitudes sur l'instant de déclenchement. Cependant, comme nous l'avons évoqué précédemment cette incertitude est négligeable devant l'incertitude de mesure du déplacement entre ces deux instants. En passant en incertitude absolue (inégalité triangulaire), II.9 devient :

$$\Delta t_k = (\Delta t_1 + \Delta t_0 + \frac{L}{U^2} \Delta U + \frac{\Delta L}{U}) + \sum_{i=2}^k \Delta t_i + \Delta t_{i-1} \quad (\text{II.10})$$

où  $L$  est la distance entre le profil avant impact et la surface et  $U$  est la vitesse d'impact. L'incertitude sur le déclenchement (i.e. l'écart entre le temps fixé pour l'acquisition et l'acquisition à proprement parler) s'additionne d'un profil à l'autre, est identique pour toutes les expositions (c'est une donnée de la caméra) et est noté «  $\varepsilon$  ». Tous les  $\Delta t_i$  y sont égaux. Pour le profil  $k$ , l'incertitude totale sur le déclenchement est de  $2(k-1)\varepsilon$ , soit l'incertitude absolue suivante :

$$\Delta t_k = 2k\varepsilon + \frac{L}{U^2} \Delta U + \frac{\Delta L}{U} \quad (\text{II.11})$$

A l'inverse de l'incertitude absolue, l'incertitude relative diminuera avec l'augmentation du nombre de profils enregistrés sur une même image (le temps final sera plus grand). De plus, l'incertitude sur le déclenchement est de l'ordre de la nanoseconde voire moins. Lors de l'enregistrement du 1<sup>ème</sup> profil, l'incertitude totale due au déclenchement est de l'ordre de la nanoseconde alors que l'instant considéré est proche de la dizaine, voire de la centaine de microsecondes. Plus l'instant du dernier profil de l'image sera grand et plus cette contribution

sera faible. Elle sera donc naturellement négligée dans la suite. L'incertitude temporelle sur l'instant d'enregistrement d'un profil se résume à l'incertitude sur l'instant de l'impact.

### Acquisition rapide

La caméra Sensicam SVGA permet d'obtenir des profils très précis sur les premiers instants de l'impact, toutefois, l'acquisition de seulement 10 profils par expérience et l'impossibilité de les discriminer les uns des autres de manière automatique est une limitation sérieuse à l'utilisation de cette caméra dans le cas des macrogouttes ou des microgouttes sous ce mode là. L'utilisation de caméras rapides est une alternative intéressante au suivi de l'impact sur plusieurs dizaines de millisecondes et nous en avons utilisé 5 différentes suivant l'endroit où les essais ont été menés. Leurs caractéristiques techniques sont données dans le tableau ci-dessous.

Caméra	Cadence nominale (i/s)	Taille du capteur (pixels)	Taille du pixel ( $\mu\text{m}$ )	Cadence maximal (i/s)	Taille de l'image à 10000 i/s (pixel)	Temps d'obturation à cette cadence ( $\mu\text{s}$ )
SpeedCam visario G1	1000	1536x1024	11	10000	512x192	10
Phantom V4.2	2100	512x512	22	90000	256x192	2
NAC Memremcam	1000	1280x1024	10	168000	448x368	3
Kodak HG2000	1000	512x512		2000		23
Phantom v7.0	6688	800x600		190000	640x480	1

**Tableau II.6 : Caractéristiques techniques des caméras rapides utilisées dans ce travail.**

Ces caméras peuvent enregistrer en pleine résolution plusieurs centaines d'images par seconde. Une diminution de la zone d'intérêt du capteur, fonction de « binning », donne la possibilité d'augmenter fortement la fréquence d'enregistrement et ce jusqu'à plusieurs milliers d'images par seconde. Pour l'étude des macrogouttes, dans la gamme de vitesse de notre étude, une fréquence d'acquisition de 10000 images par seconde est suffisante dans la plupart des cas. Dans ce cas, c'est la taille de l'image qui fait la définition. En dessous de 200x200 pixels, nous avons estimé que la précision n'est plus satisfaisante. Une taille d'image supérieure nous permet de gagner en définition mais rallonge très rapidement les temps de

calculs pour les traitements automatisés. Les vitesses d'acquisition de ces caméras sont très importantes et bien supérieures aux cadences de transfert vers l'ordinateur. Les images sont tout d'abord stockées sur une mémoire interne de plusieurs centaines de mégaoctets des caméras avant transfert. Hormis pour la caméra Kodak HG2000, qui fût la première caméra disponible pour notre travail, les temps d'acquisition sont très courts ( $<10\mu\text{s}$ ). Cela donne une très bonne définition pour le suivi de la surface libre et c'est le grossissement utilisé qui donne la précision des mesures. La majorité de nos expériences ont été réalisées avec la caméra Phantom v 4.2 mais la caméra NAC Memremcam ou encore la caméra Phantom v7.0 (AGFA-GEVAERT) ont été largement utilisées. Pour les vitesses de la lamelle proche de 10m/s, avec une obturation en  $2\mu\text{s}$ , la ligne de contact se déplace d'environ  $20\mu\text{m}$ , ce qui correspond à la taille d'un pixel dans le cas de l'observation d'une macrogoutte avec un grossissement permettant de la voir dans sa totalité. Les incertitudes de mesures sur la hauteur et le diamètre de contact sont donc de  $40\mu\text{m}$  (1 pixel de chaque côté de la goutte).

Nos dispositifs de visualisation rapide présentent une dernière particularité, ils sont équipés d'une double visualisation. En effet, une caméra compacte ( $91\text{mm}\times 37\text{mm}\times 47\text{mm}$  pour un poids de 125g), la Philips Dica 121 ®, est utilisée. Elle a une résolution de  $1280\times 1024$  pixels et la taille du pixel est de  $6.7\times 6.7\mu\text{m}$ . Elle possède également une fonction de « binning » qui permet d'enregistrer jusqu'à 1000 images par seconde. Le transfert se fait en temps réel via une connexion firewire et son déclenchement est synchronisé avec celui de la caméra rapide. Les optiques sont les mêmes que pour les autres caméras. La figure II.6.a montre son positionnement. L'utilisation de cette vue de dessus permet d'observer, à partir de la phase capillaire, la forme de la ligne de contact. Bien que nous ne sommes pas les premiers à réaliser une observation à la fois en vue de côté et en vue de dessus ([Santiago-Rosanne et al, 2001 ; Roisman et al, 2002 ; Rozhkov et al, 2002 ; Rozhkov et al, 2003]), nous précisons simplement que cela reste plus rare dans la littérature que les observations du profil. Les surfaces que nous utilisons sont homogènes cependant nous considérons des substrats modèles et des substrats industriels. Dans le cas d'étalement fort, l'hystérésis d'angle de contact est importante et des paramètres extérieurs modifient l'état de surface (vieillessement des silanes, poussière, manipulation, manutention etc...). Le nombre d'angles possibles étant important, la goutte peut stopper son évolution dans la direction de visualisation alors que son extension se poursuit par ailleurs. Dans le cas d'une hystérésis de l'angle de contact, ces états sont métastables et un apport d'énergie contribuerait à vaincre ces barrières énergétiques et obtenir une goutte circulaire sur le support ([Meiron et al, 2004]). Finalement, il n'est pas rare

d'observer, sur les microgouttes et les macrogouttes, des lignes de contacts qui ne sont plus circulaires (figure II.13).

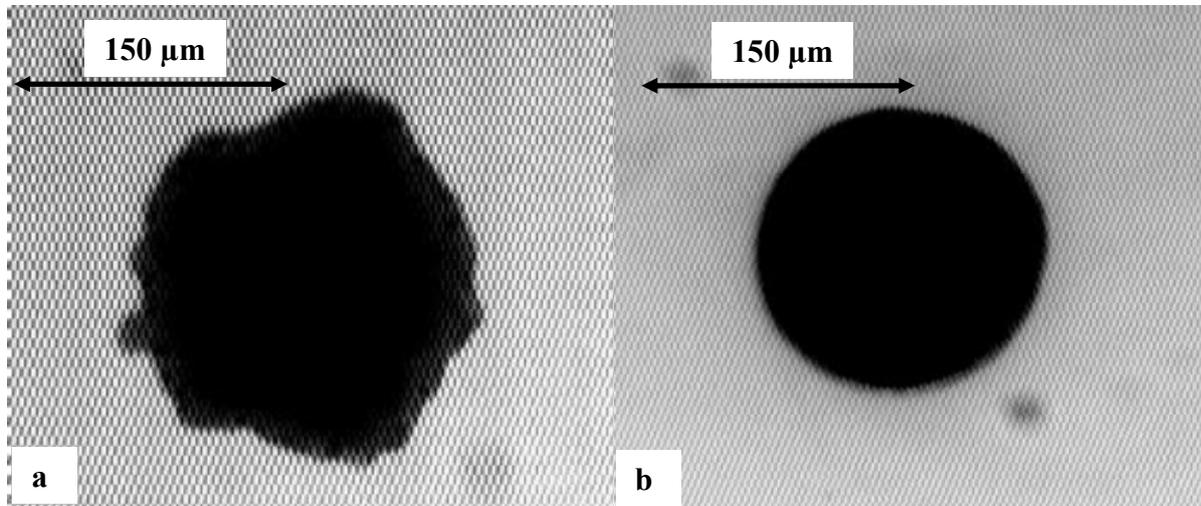


Figure II.13 : Exemple de vue de dessus en fin d'étalement d'une microgoutte d'encre sur une surface (a) de PET et (b) de papier qualité photo.

Dès lors, il est clair que l'observation en vue de côté, en fonction de l'angle sous lequel la goutte est observée, va présenter à la fois un angle et un diamètre de contact qui ne représentent qu'une partie de la réalité. L'évolution de ces grandeurs dynamiques est donc fonction de la position sous laquelle elle l'observe. Il faut remarquer que les comportements observés sur la figure II.9.a n'apparaissent que sur les temps longs de l'étalement et la goutte conserve une forme circulaire (en vue de dessus) jusqu'à la fin du régime d'étalement au moins. A partir de la vue de côté, une conservation de la masse permet de s'assurer de la validité des mesures. L'hypothèse que la goutte est une calotte sphérique est faite et nous utilisons son volume initial pour obtenir l'équation suivante :

$$h(t)^3 + \frac{3}{4}D(t)^2h(t) - D_0^3 = 0 \quad (\text{II.12})$$

où  $D_0$  est le diamètre initial avant impact et  $h(t)$  et  $D(t)$  sont respectivement la hauteur et le diamètre transitoire. En injectant dans cette équation les mesures du diamètre de contact, nous déterminons la hauteur « théorique ». Cette valeur est alors comparée à la hauteur mesurée. Dès que cette conservation n'est plus valable, les mesures n'ont plus de sens. Nous obtenons une condition nécessaire mais pas suffisante d'axisymétrie. Seule la vue de dessus assure la circularité de la goutte. Cette vue, via nos algorithmes de traitement automatique, nous permet de mesurer une valeur moyenne du diamètre de contact et d'en tirer une valeur moyenne pour l'angle de contact. Les méthodes de calcul seront présentées par la suite. Pour les expériences

sur les substrats hétérogènes, cette observation est très importante. En effet, lorsqu'au moins deux zones de mouillabilité différentes sont en présence, la goutte peut se déplacer d'une zone à l'autre. La goutte est alors dissymétrique, notamment sur l'angle de contact, mais il est impossible de connaître la forme exacte de la ligne de contact entre le fluide et la surface. La figure II.14 présente la vue de côté et la vue de dessus correspondante dans le cas d'une telle expérience où il apparaît distinctement (figure II.14.a) l'écart d'angle de contact entre la partie gauche et la partie droite de la goutte. La vue de dessus (figure II.14.b) montre que la forme de la ligne de contact n'est plus circulaire, l'effet étant dû à la différence de mouillabilité des surfaces.

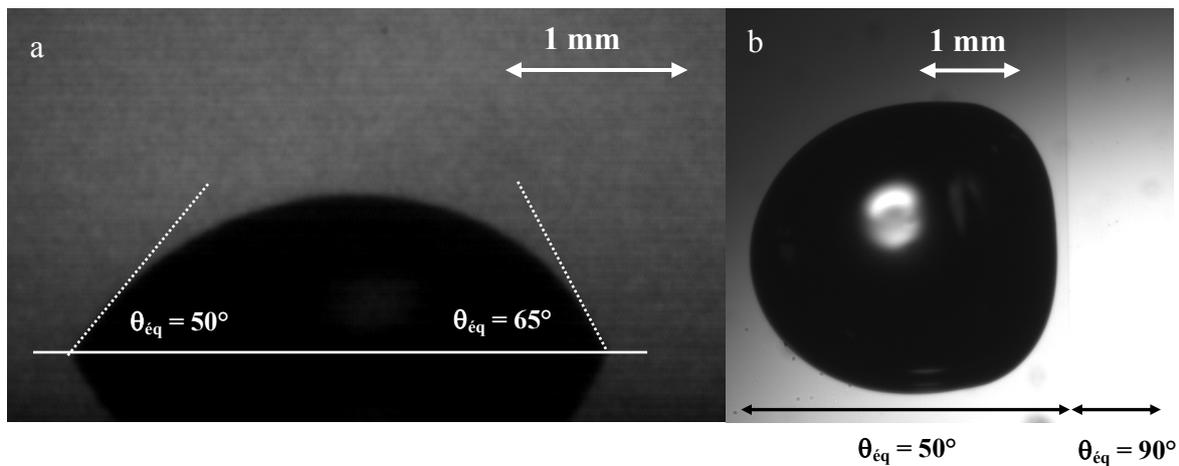


Figure II.14 : Goutte d'eau distillée en fin d'étalement sur une demi plaque hydrophile (à gauche) et hydrophobe (à droite) respectivement (a) en vue de côté et (b) vue de dessus.

### Obturation très courte

Les performances des caméras rapides, en termes de temps d'obturation, sont relativement intéressantes pour le suivi du diamètre et de la hauteur transitoire. Cependant, pour l'étude de l'angle de contact dynamique, il est primordial d'acquérir des images avec un grossissement important au niveau de la ligne de contact. Les incertitudes, de l'ordre d'un ou deux pixels, sont trop importantes pour obtenir une mesure correcte de cet angle. De la même manière, pour les microgouttes, une obturation de l'ordre de la microseconde est trop importante à la vue des temps caractéristiques des phénomènes étudiés. Dans ces deux configurations, la solution consiste à acquérir des images avec des temps d'obturation encore plus courts, de l'ordre de quelques dizaines de nanosecondes pour les microgouttes et de quelques centaines de nanosecondes pour les macrogouttes.

Intensificateur de lumière

Une collaboration avec l'équipe du Professeur J.P. Schön du laboratoire TSI de St Etienne nous a permis d'équiper momentanément notre maquette expérimentale avec un système combinant la caméra NAC Memremcam et un intensificateur de lumière Hamamatsu. Ce dernier amplifie le signal lumineux et joue également le rôle d'obturateur. Il est possible d'obtenir des temps d'acquisitions compris entre 10ns et 1 $\mu$ s. La durée effective de l'obturation dans nos expériences a été fixée à 200ns (soit 10 fois moins que l'obturation habituelle) pour une cadence d'enregistrement de 10000 images par secondes et pour une taille d'image de 448x368 pixels. Le système d'illumination est une ampoule de 50 ou 100W alimentée en courant continu. En effet, à une cadence d'enregistrement supérieure à la fréquence du secteur (50Hz), les oscillations de l'intensité lumineuse sont observables et rendent la détection plus compliquée, notamment lorsqu'il s'agit de traitement d'image automatisé. Un dispositif de transformation du courant est alors utilisé. Pour obtenir une définition suffisante à la fois au niveau du diamètre et de l'angle de contact, et en utilisant l'hypothèse d'axisymétrie de l'impact, seule une moitié de la goutte a été observée. Cette restriction ne concerne que l'impact sur des substrats homogènes et une vue de dessus de l'état d'équilibre permet de vérifier l'hypothèse d'axisymétrie.

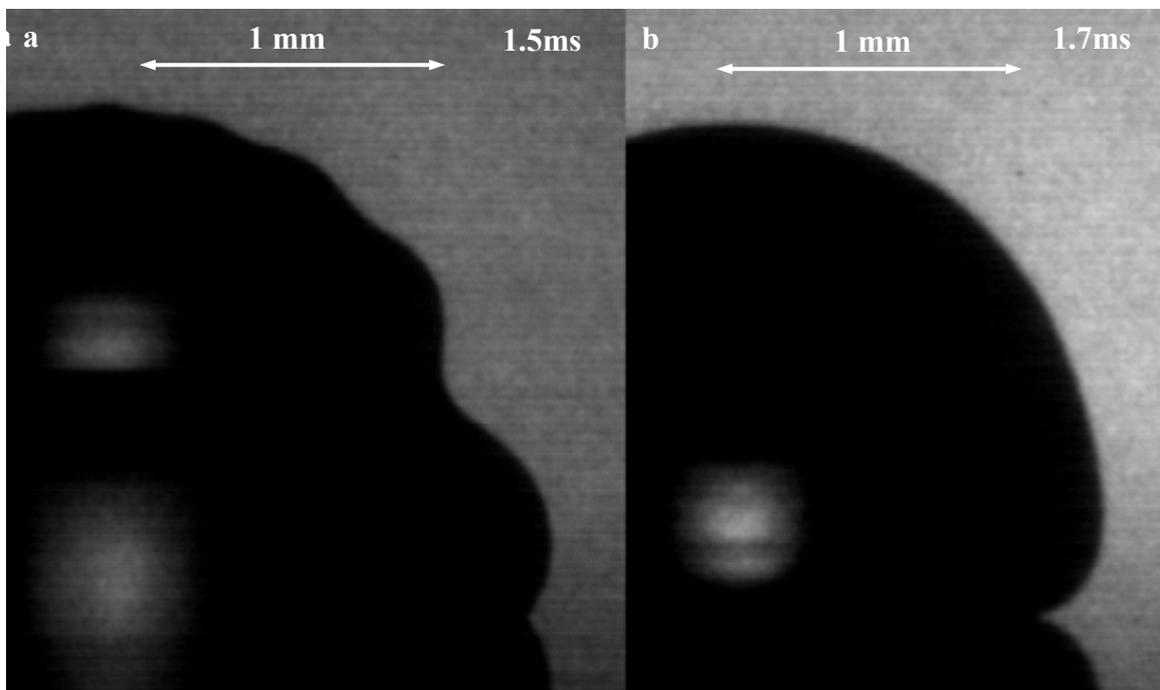


Figure II.15 : Visualisation du diamètre et de l'angle de contact transitoire pour (a) une goutte d'eau distillée  $U = 0.35\text{m/s}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$  et (b) une goutte d'eau distillée + 85% de glycérol,  $U = 0.35\text{m/s}$ ,  $\mu = 96\text{mPa.s}$ .

La figure II.15 montre le type d'images que nous avons pu obtenir avec un tel dispositif pour l'impact de deux gouttes de viscosités différentes. Notons la qualité des images avec notamment un contour très net, ce qui se prête à un traitement automatisé d'image (détection d'interface et mesure de diamètre, hauteur et angle de contact).

Pour les mesures du diamètre de contact, l'incertitude n'est pas identique des deux côtés de la goutte. La contribution principale ne se situe pas au niveau de la ligne de contact, mais au centre de la goutte. L'obturation est suffisamment courte et le gradient de niveau de gris est suffisamment important, pour que la détection de la surface libre ne pose pas de problème. C'est au centre de la goutte que se situe l'incertitude principale. La hauteur maximum (qui sert de point de repère de l'axe de symétrie) n'est pas définie en un point mais sur plusieurs pixels. Le centre est repéré au milieu de ces pixels mais l'incertitude sur le positionnement de cette référence est fixée à 3 pixels. Au niveau de la ligne de contact, les vitesses peuvent atteindre 10m/s. Avec une obturation de 200ns, cette ligne se déplace de  $2\mu\text{s}$ , soit 3 pixels environ (1 pixel =  $7\mu\text{m}$  pour ces expériences). L'incertitude globale est estimée à 6 pixels soit à  $42\mu\text{m}$  dans le cas les plus défavorables.

Les mesures obtenues sont tout de même très précises. En revanche, la mesure de l'angle de contact est plus difficile. Bien qu'il soit possible de tracer une tangente à la surface libre, au niveau de la ligne de contact, sur plus de 10 pixels, l'incertitude de mesure est tout de même importante. Nous avons développé un système de mesure automatique (développé dans la suite) qui détermine l'angle maximum et l'angle minimum qui passent par ces pixels. Même dans cette configuration, l'écart entre la mesure moyenne et les valeurs minimum ou maximum est de  $\pm 3^\circ$ . Effectuer des mesures plus précises demande de se focaliser plus encore sur la zone de la ligne de contact, avec une caméra dont la taille des pixels est plus petite encore et avec des temps d'acquisition encore plus faibles. Le suivi du diamètre et de la hauteur serait alors impossible.

De plus, améliorer ces mesures est difficile ; les images sont une traduction numérique d'un objet continu (l'interface) à l'échelle à laquelle il est observé. L'intérêt se situe plus dans la détermination précise des pixels constitutifs de l'interface. Enfin,  $\pm 3^\circ$  représente un pallier dans la précision de la mesure, s'approcher encore de la surface n'apporterait d'intérêt réel que pour les mesures automatiques (on pourrait utiliser plus de pixels pour déterminer les tangentes). Il est à préciser que pour la plupart des mesures publiées dans la littérature, l'estimation de l'erreur est de  $\pm 5^\circ$ .

### Eclairage pulsé

Pour les microgouttes, une obturation encore plus courte doit être envisagée, en raison du grossissement et des temps caractéristiques des phénomènes physiques, pour pouvoir observer les déformations fines de l'interface. En se basant sur les macrogouttes, un rapport de 1000 entre le temps caractéristique de l'impact et la durée d'obturation est nécessaire ( $2\text{ms}/2\mu\text{s}$ ) pour observer les profils transitoires. Pour ce faire, un dispositif a été mis en œuvre dans le laboratoire de la société AGFA-GEVAERT en Belgique. Il n'a malheureusement pas été intensivement utilisé mais montre d'ors et déjà des améliorations importantes. La caméra utilisée est la Sensicam SVGA mais l'originalité de ce montage concerne le système d'illumination. Il s'agit d'un système d'illumination de type pulsé de très courte durée (20ns) et de forte puissance, le « nanostrobokin » (figure II.16). Une lentille est placée entre l'illumination et la zone d'observation pour focaliser le faisceau lumineux.

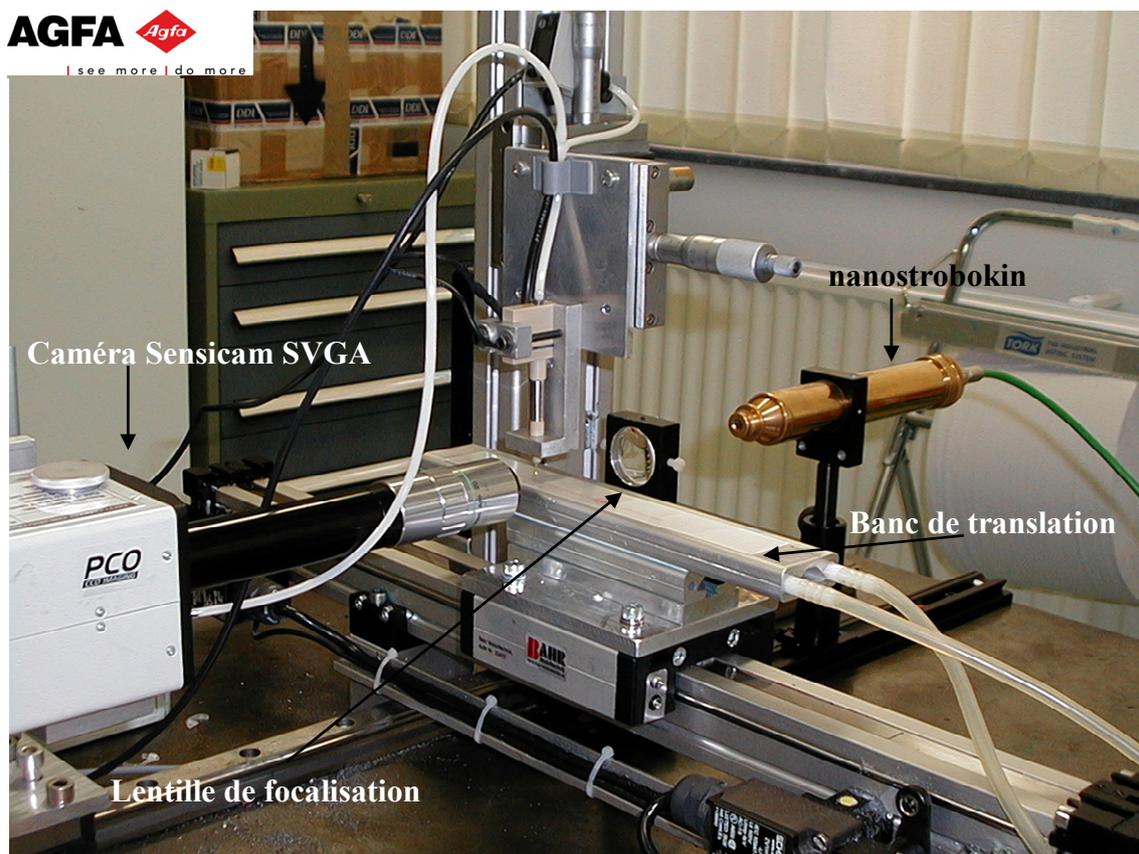


Figure II.16 : Dispositif de visualisation de microgoutte avec le nanostrobokin.

Par ailleurs, ce dispositif d'illumination est également pulsable jusqu'à 20kHz i.e. qu'il peut envoyer 20000 flashes lumineux de durée 20ns par seconde. Une bonne qualité d'images a été obtenue lors des expériences jusqu'à une fréquence de 12.5kHz. Le couplage avec une caméra

rapide permet d'acquérir plusieurs profils sur une même expérience. En répétant l'expérience, nous accédons à la fois aux profils transitoires sur les temps courts et longs de l'impact. En théorie, en répétant chaque expérience plusieurs fois exactement dans les mêmes conditions opératoires mais avec un décalage temporel égal à l'inverse de la fréquence de pulsation, soit  $1/20\text{ns}$  (soit  $50 \cdot 10^6$  images). Cela constitue une technique hybride entre la cinématographie rapide et la pseudo cinématographie à déphasage contrôlé. Les deux principaux intérêts de ce dispositif sont la très courte durée d'illumination ( $20\text{ns}$ ) et la haute fréquence de pulsation ( $20\text{kHz}$ ). Cette association permet l'acquisition à haute fréquence de profils parfaitement nets.

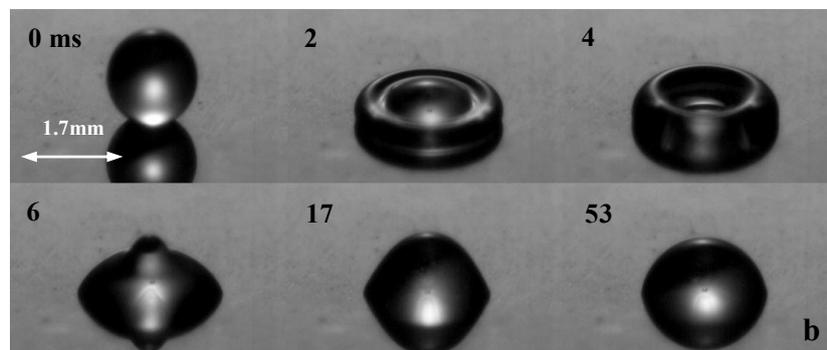
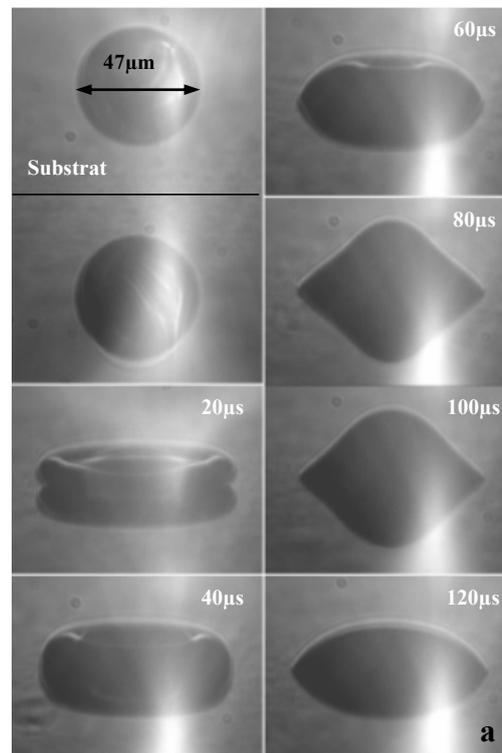


Figure II.17: (a) Profils transitoires expérimentaux observés avec le dispositif d'illumination nanostrobokin, encre industriel,  $\sigma = 33.2\text{mN/m}$ ,  $\mu = 3.2 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\rho = 996 \text{ kg/m}^3$ ,  $U = 3\text{m/s}$ ,  $D_0 = 47\mu\text{m}$ ,  $We = 12.7$ ,  $Re = 44$ . (b) profils expérimentaux observés par cinématographie rapide (lumière continue),  $\sigma = 30\text{mN/m}$ ,  $\mu = 15 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\rho = 1100 \text{ kg/m}^3$ ,  $U = 0.5\text{m/s}$ ,  $D_0 = 1.7\text{mm}$ ,  $We = 15.6$ ,  $Re = 62$ .

La figure II.17 montre les profils expérimentaux obtenus avec ce dispositif. La zone particulièrement lumineuse sur chaque image provient du caractère très focalisé de l'illumination. Cette figure montre également la similarité entre ces profils de microgouttes et les profils obtenus en suivant l'impact d'une macrogoutte. Les déformations observées sur les microgouttes avec cette méthode sont de meilleures qualités que celles obtenues par [Kim et al, 2003] même si les profils enregistrés par les auteurs montrent une très bonne adéquation avec les profils observés sur les macrogouttes.

En conclusion, les principales limitations des maquettes expérimentales pour l'observation du phénomène d'impact, ainsi que les principales sources d'incertitudes, proviennent de la durée nécessaire à l'acquisition de l'image. L'augmentation de la cadence d'acquisition n'est pas une solution. Le temps d'obturation, comparé à la vitesse des phénomènes physiques, doit faire l'objet d'une attention particulière. En ce sens, l'obturation rapide, par intensification de lumière ou par pulsation rapide, sont des solutions très intéressantes qu'il est en plus possible de combiner aux techniques et montages expérimentaux actuels.

### **Traitement d'image**

Chaque expérience conduit à un fichier dont la taille est comprise entre plusieurs centaines de mégaoctets jusqu'à plusieurs gigaoctets, pour un nombre d'images compris entre plusieurs centaines et plusieurs milliers. Ce travail spécifique est motivé par le nombre considérable de données à traiter (gain considérable de temps en traitement automatique) et la volonté de supprimer le facteur d'erreur lié à l'expérimentateur. L'erreur de mesure existe toujours bien évidemment, cependant, les conditions de détection de l'interface dépendent de conditions mathématiques strictes. Les erreurs liées à l'expérimentateur, dues notamment à la fatigue, à la lumière dans la pièce ou encore à la qualité de l'écran sont éliminées. Dans cette partie, nous présentons donc les algorithmes que nous avons développés pour la détection et la mesure automatique sur les profils expérimentaux enregistrés.

### **Mesure et traitement d'image : algorithme de base**

Comme nous venons de l'évoquer, le très grand nombre d'images obtenues expérimentalement, pour chacune des phases de l'impact sur une même expérience, rend les mesures extrêmement longues et fastidieuses. De plus, les valeurs obtenues sont très souvent variables d'un expérimentateur à l'autre et ce, quelle que soit la performance du matériel

utilisé. Nous avons donc cherché, à la fois, à rendre les mesures systématiques et à améliorer la vitesse de mesure. Nous avons développé, à partir du logiciel Matlab<sup>®</sup> et de sa boîte à outils "Image Processing", un certain nombre d'algorithmes robustes spécifiques afin de réaliser le traitement automatique de l'ensemble de nos données expérimentales.

Pour cela, nous utilisons les modules de détection d'interface inclus dans la boîte à outils "Image Processing" en combinaison avec des algorithmes spécifiques. La comparaison des différentes possibilités disponibles montre que l'algorithme de détection d'interface "Canny" est le plus approprié pour l'ensemble de nos expériences. En effet, c'est la méthode de détection de contour la plus puissante disponible dans Matlab<sup>®</sup>. Elle prend en compte deux différentes valeurs de seuil de niveau de gris afin de détecter à la fois les gradients forts et les gradients faibles présents dans l'image. De plus, les interfaces détectées à partir d'un seuil bas sont contenues dans le résultat final si et seulement si elles sont connectées avec une interface détectée à partir d'un seuil fort. Pour ce faire, cet algorithme fonctionne en trois étapes distinctes. Dans un premier temps, un filtre Gaussien est appliqué à l'image et à la fois la norme du gradient ( $e_s(i,j)$ ) et l'angle à la tangente au contour ( $e_0(i,j)$ ) sont calculés pour chaque pixel constitutif du contour (équation II.13 et II.14).

$$e_s(i, j) = \sqrt{J_x^2(i, j) + J_y^2(i, j)} \quad (\text{II.13})$$

$$e_0(i, j) = \arctan \frac{-J_x}{J_y} \quad (\text{II.14})$$

avec  $J_x$  et  $J_y$  les gradients en x et y. Cette méthode est la moins sensible aux effets de bruit et conduit à la détection des véritables interfaces.

En revanche, dans le cas des expériences d'impact sur les microgouttes, les très courts temps d'intégration combinés avec la très petite taille des objets observés ne permet pas toujours d'obtenir une qualité d'image suffisante. Dans ce cas, préalablement à l'application du filtre de détection, il est possible de réaliser une moyenne du niveau de gris des pixels de l'image. Pour ce faire, nous utilisons un filtre de 9 cases avec comme pixel courant, le pixel du centre de la matrice (pixel E, figure II.18). En effet, Matlab<sup>®</sup> considère une image comme une matrice dont les valeurs correspondent au niveau de gris des pixels.

A	B	C
D	E	F
G	H	I

Figure II.18: matrice d'application du filtre de moyenne.

Nous appliquons ensuite à ce pixel courant, la valeur moyenne des niveaux de gris des 8 pixels qui l'entourent. Cette valeur est enregistrée dans une autre image pour qu'une valeur moyennée n'entre pas dans le calcul pour un des autres pixels. L'effet obtenu est une image plus lisse avec des gradients moins importants. En outre, cela permet notamment, lorsque les effets de flou sont trop importants et ne permettent pas d'obtenir une interface continue, de la compléter.

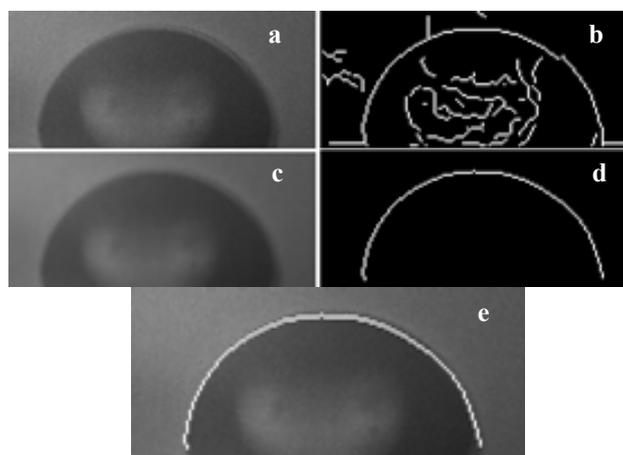
Il reste alors deux possibilités. Dans le cas des grosses gouttes, où la détection se passe relativement bien, l'interface obtenue ne présente pas de cassures. Cependant, au niveau de la ligne de contact, l'ombre de la goutte génère du bruit qui n'est pas éliminé par le filtrage. De la même manière, lors des essais avec le dispositif combinant la caméra NAC Memremcam et l'intensificateur de lumière, des gradients de lumière locaux, dans et hors de la goutte, conduisent à l'obtention d'une image fortement bruitée d'un point de vue de la détection. Afin de séparer l'interface de la goutte des points parasites, un algorithme particulier a été mis en place. Il consiste à détecter la chaîne de pixel la plus longue présente dans l'image et à n'enregistrer que ces points. De plus, avant de traiter l'ensemble d'une expérience, il est possible de vérifier que le profil détecté correspond bien avec le profil expérimental en les superposant sur une même image (figure II.19).



Figure II.19: Exemple de traitement d'image d'une macrogoutte.

Dans le cas des microgouttes, la détection est plus subtile et il n'est pas rare d'obtenir des interfaces discontinues. Dans ce cas, une approche différente est considérée. Nous utilisons

directement l'image après filtrage avec l'algorithme « Canny » et nous déterminons l'abscisse du centre de la goutte et les ordonnées des points de la ligne triple à droite et à gauche. Ensuite, par l'application d'un masque de 9 cases, l'interface est suivie et nous enregistrons les points qui en font partie (figure II.20).



**Figure II.20: Détection d'interface dans le cas des microgouttes, (a) image originale, (b) image originale après application du filtre « canny », (c) image originale après opération de moyenne, (d) résultat de la détection « canny » à partir de l'image moyennée et (e) superposition du profil original et de l'interface détectée.**

Dans le cas où les interfaces ont des discontinuités faibles (inférieures à 2 pixels), il est possible de la reconstituer. Dans le cas contraire, cette reconstitution est « impossible » (impossible à priori de connaître la forme de l'interface) mais nos algorithmes nous permettent néanmoins de mesurer la hauteur et le diamètre de contact.

Tous ces types de traitement sont utilisables via des interfaces spécifiques développées pour rendre plus aisé le traitement d'image en masse. A chaque type d'expérimentation (vue de côté, vu de dessus, évaporation etc....) correspond donc un programme et son interface.

## Mesures

### Diamètre et hauteur

Pour chacune de nos expériences, il est possible d'avoir accès à l'intégralité des profils transitoires lors de l'impact et ainsi de réaliser les mesures souhaitées. La visualisation expérimentale de l'impact a permis de montrer que la goutte présente une géométrie préférentielle : la sphère tronquée. Cette forme axisymétrique est caractérisée par trois

grandeurs géométriques particulières que sont : la hauteur, le diamètre de contact et l'angle de contact. La mesure des deux premières est relativement simple. Pour cela, l'utilisateur fixe, via l'interface logicielle, l'abscisse du centre de la goutte ainsi que l'ordonnée des points de la ligne triple (seulement de l'un d'entre eux dans le cas de l'observation d'une demi goutte). Le positionnement est directement visualisé à l'écran afin de déterminer s'il est correct (figure II.21) et une fois ces points fixés, il est simple d'obtenir les valeurs de hauteur et de diamètre en nombre de pixels. En effet, à partir des coordonnées du point milieu ( $X_h, Y_h$ ) et des points de la ligne triple ( $X_d, Y_d$ ), le diamètre et la hauteur sont facilement obtenus par les formules suivantes :

$$D=2 \times |X_d - X_h| \quad (\text{II.15})$$

$$H=|Y_h - Y_d| \quad (\text{II.16})$$

Remarque : Dans les expériences où la goutte est visualisée en totalité, le diamètre se calcule à partir de la détection des points de la ligne triple à droite ( $X_d, Y_d$ ) et à gauche ( $X_g, Y_g$ ). Dans ce cas,  $Y_d$  e  $Y_g$  peuvent être différents et le diamètre est calculé à partir de la norme du vecteur formé par les deux points de cette ligne triple. La hauteur est obtenue en faisant une projection orthogonale sur la droite qui définit le substrat. La mire de calibration, dans nos expériences, est réalisée à partir de l'observation au même grossissement que les gouttes d'une règle graduée. L'échelle ainsi obtenue nous conduit aux mesures réelles de ces grandeurs.

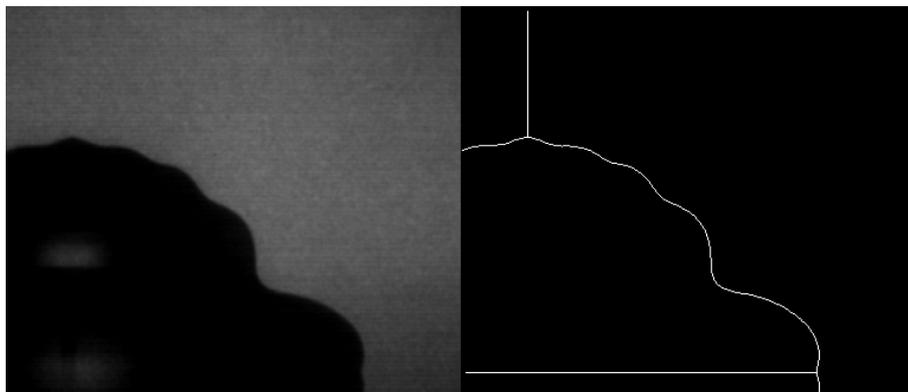


Figure II.21: Positionnement des points de référence.

La figure II.22 présente les résultats d'une mesure de traitement d'image automatique lors de l'impact d'une goutte. Le suivi de l'évolution de la ligne de contact de part et d'autre de la goutte permet de s'assurer de l'axisymétrie de l'impact. De plus, lorsque le cas de l'impact sur une surface hétérogène présentant deux mouillabilités différentes est étudié (chapitre IV), nous sommes en mesure de suivre précisément l'influence de chaque zone de la surface. Précisons, pour ces expériences, les conditions d'observations et de mesures (et les différences avec l'article de référence) ainsi que les incertitudes qui y sont associées.

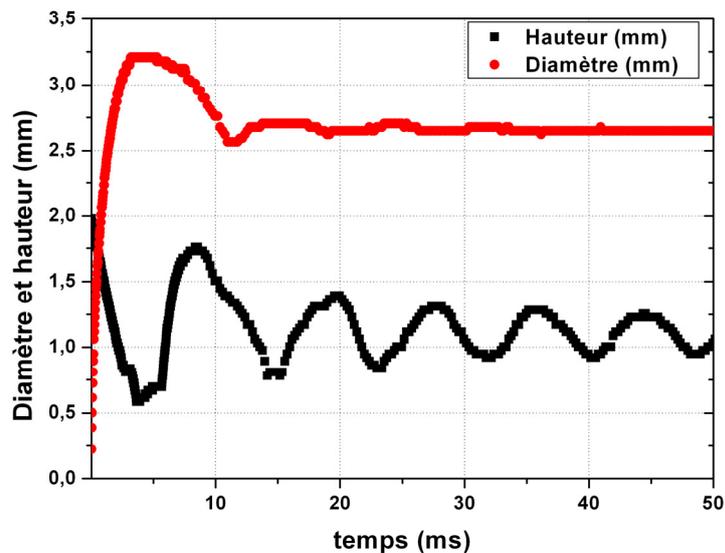


Figure II.22 : Mesure automatique de la hauteur et du diamètre transitoire lors de l'impact d'une goutte d'eau distillée sur une surface de type 7 ( $\theta_{eq} = 90^\circ$ ),  $D_0 = 2\text{mm}$ ,  $U = 0.56\text{m/s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ .

L'objectif est la mesure de la vitesse de déplacement globale de la goutte sur la surface et plusieurs remarques sont à formuler sur la méthode de mesure de cette vitesse. Tout d'abord, il faut noter que notre situation d'expérimentation concerne le cas d'une goutte avec une vitesse initiale, ce qui est très différent des travaux de [Daniel et al, 2004] (dépôt d'une goutte, chapitre IV). En conséquence, particulièrement pour les fluides peu visqueux, de fortes déformations sont visibles ce qui est contradictoire avec l'hypothèse selon laquelle la goutte conserve une forme de sphère tronquée. Tous les profils ne sont donc pas utilisés pour ces mesures.

Dans un second temps, il faut noter que la fréquence d'acquisition est supérieure ou égale à 10000 i/s. Le calcul de la vitesse est par conséquent effectué de la manière suivante. Tout

d'abord, la vitesse de déplacement globale à un instant donné est calculée à partir de la vitesse de déplacement des vitesses des deux lignes de contact suivant la formule suivante :

$$U(i) = \frac{1}{2} \left( \frac{\Delta[R_{LT\_m}(i) - R_{LT\_m}(i-1)]}{\Delta t(i, i-1)} + \frac{\Delta[R_{LT\_nm}(i) - R_{LT\_nm}(i-1)]}{\Delta t(i, i-1)} \right) \quad (\text{II.17})$$

où U(i) est la vitesse globale à l'image (et donc l'instant) i, R<sub>LT</sub> est à la position de la ligne de contact, l'indice « m » ou « nm » indique la partie de la surface se trouve la ligne de contact considérée (« m » pour mouillant et « nm » pour non mouillant), i est le numéro de l'image à laquelle on cherche à déterminer la vitesse et Δt(i,i-1) est l'écart temporelle entre l'image i et l'image i-1. Il faut ajouter que lors de la phase de déplacement lent de la goutte, plusieurs dizaines voir centaines d'images sont parfois nécessaires pour observer un déplacement d'un pixel sur l'une ou l'autre des deux lignes de contact. Cela est dû à une fréquence d'acquisition trop élevée et couplée à une définition trop faible (pixel trop gros par exemple, 20μm par pixel dans nos expériences) et en aucun cas à une vitesse nulle de la ligne de contact. Par conséquent, l'équation II.17 est modifiée pour tenir compte de ce problème et s'écrit comme suit :

$$U(i) = \frac{1}{2} \left( \frac{\Delta[R_{LT\_m}(i) - R_{LT\_m}(i-p)]}{\Delta t(i, i-p)} + \frac{\Delta[R_{LT\_nm}(i) - R_{LT\_nm}(i-q)]}{\Delta t(i, i-q)} \right) \quad (\text{II.18})$$

où p et q sont le nombre d'images entre lesquelles aucun déplacement n'est mesurable sur les lignes triples localisées respectivement sur la partie mouillante et non mouillante de la surface.

Enfin, compte tenu des incertitudes de mesures que cette méthode induit (notamment le fait que le déplacement des lignes de contact ne soit pas toujours en phases), plusieurs vitesses différentes sont mesurées pour un même gradient d'angle de contact. La mesure de ces derniers étant très fine et le nombre de points de mesure relativement important (>100), nous effectuons une moyenne. La méthode de mesure de la vitesse est une restriction importante de cette méthode. Il faut également tenir compte du fait que la variation d'angle de contact entre la partie mouillante et non mouillante est souvent inférieure à 1° pour les vitesses faibles (et les liquides visqueux), ce qui est inférieur à l'incertitude de mesure.

## **Diamètre et angle de contact moyen**

Dans plusieurs cas de figures, notamment pour des encres sur des supports industriels, l'étalement de la goutte est très fort ce qui correspond à un angle de contact faible,

généralement compris entre 5° et 20°. Dans ces conditions et en raison des hétérogénéités naturellement présentes sur ces substrats, l'étalement de la goutte ne reste pas parfaitement circulaire. La visualisation en vue de côté n'est alors plus suffisante et un simple calcul de conservation de volume, à partir des mesures de diamètre de contact et de hauteur au centre de la goutte, permet de montrer cette perte de circularité. En conséquence, la mesure de l'évolution du diamètre de contact doit être réalisée à partir d'une vue de dessus. Cela ne résout pas le problème de la perte de circularité mais permet de suivre l'intégralité de l'évolution de la ligne de contact. A partir de cela, une mesure du « rayon moyen » de contact est réalisable. En effet, en procédant comme précédemment et en utilisant les algorithmes de détection d'interface afin d'obtenir les coordonnées des points de la ligne triple, nous calculons alors le barycentre G ( $G_x, G_y$ ) de ces points qui correspond au centre de la goutte, suivant la formule suivante :

$$G_x = \frac{\sum_{i=1}^n X_i}{n-1} \quad \text{et} \quad G_y = \frac{\sum_{i=1}^n Y_i}{n-1} \quad (\text{II.19})$$

Nous calculons ensuite la norme des vecteurs constitués du centre de la goutte et de l'ensemble des points de la ligne de contact, puis nous en faisons la moyenne. Dans ce calcul, nous tenons compte de l'inclinaison de la caméra en utilisant deux mires ( $m_x$  et  $m_y$ , en pixel/mm ici), la première dans la direction principale de la caméra, la seconde perpendiculairement à cette direction.

$$D_{\text{moy}} = 2 \frac{\sum_{i=1}^n \sqrt{\left(\frac{X_i - G_x}{m_x}\right)^2 + \left(\frac{Y_i - G_y}{m_y}\right)^2}}{n-1} \quad (\text{II.20})$$

Enfin, la connaissance simultanée du volume initial de la goutte observée et le calcul du diamètre de contact moyen nous permet de déterminer un angle de contact d'équilibre moyen. Pour cela, il suffit de résoudre l'équation suivante :

$$D_{\text{moy}} = \left[ \frac{4D_0^3 \sin^3(\theta)}{(1 - \cos(\theta))^2 (2 + \cos(\theta))} \right]^{\frac{1}{3}} \quad (\text{II.21})$$

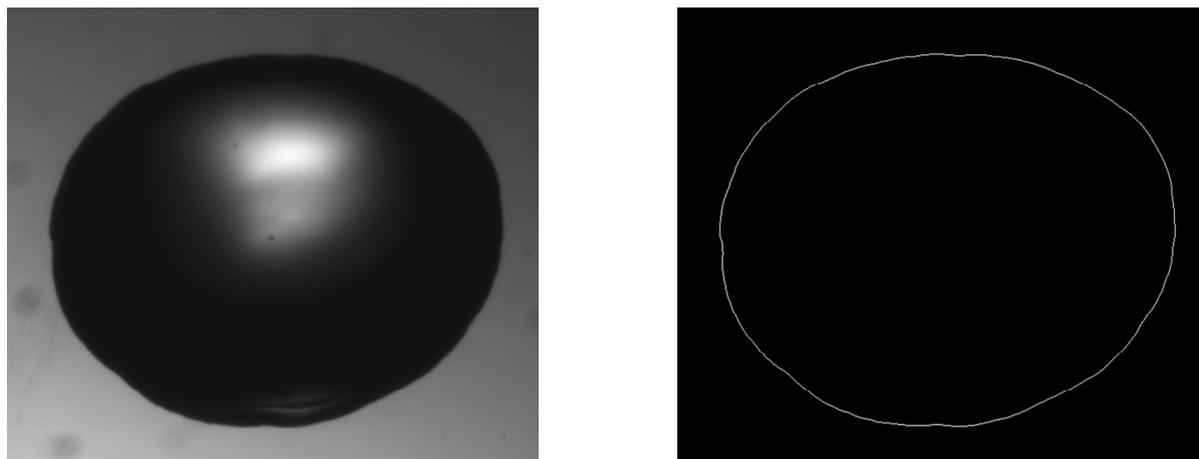


Figure II.23: Goutte d'eau distillée sur un substrat en silicium oxydé (a) observation expérimentale (b) interface détectée,  $D_{\text{moy}} = 4.16\text{mm}$ ,  $D_{\text{mes}} = 4.2\text{mm}$ ,  $\theta_{\text{moy}} = 45.14^\circ$ ,  $\theta_{\text{mes}} = 46^\circ$ .

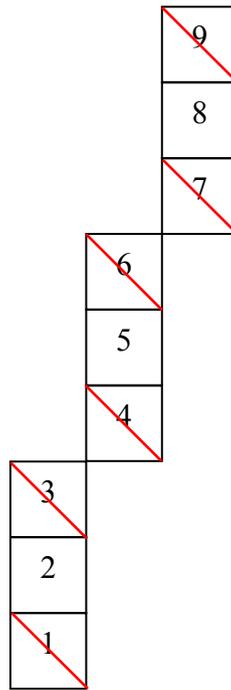
Remarque : L'utilisation de la vue de dessus pour déterminer l'angle de contact moyen entre la goutte de fluide et le substrat, est conditionnée au fait que cet angle soit inférieur ou égal à  $90^\circ$ .

### Angle de contact dynamique

La mesure de l'angle de contact dynamique est beaucoup plus compliquée. Il est admis dans la littérature que cette mesure est soumise à des variations de plusieurs degrés d'un expérimentateur à l'autre, sans compter le fait que cet élément est très rarement mesuré. Cela est notamment dû au caractère transitoire rapide des phénomènes, aux fortes déformations que subit la surface libre, à l'impossibilité de visualiser très près de la surface et au temps d'obturation des caméras utilisées. Les caméras rapides les plus performantes à l'heure actuelle ont des temps d'intégration qui peuvent atteindre jusqu'à  $2\mu\text{s}$ . Cela correspond à un déplacement de la ligne d'environ  $16$  à  $20\mu\text{m}$ , ce qui correspond à la taille d'un pixel. Nous considérons donc que la détection d'interface se fait avec une erreur systématique de plus ou moins un pixel. Si cela n'a pas d'incidence forte sur les mesures de diamètre et de hauteur, c'est en revanche critique dans le cas de l'angle de contact. La mesure, même manuelle, est par conséquent difficile et sujette à caution. Finalement, il n'y a que dans les cas de forte viscosité, où les déformations sont restreintes et la vitesse de propagation de la ligne triple ralentit, qu'il est possible d'avoir des mesures correctes. Cependant, la diminution du temps d'obturation devrait conduire à une détection plus fine de l'interface, tout en permettant un traitement automatisé complet. C'est en ce sens que le dispositif combinant intensificateur de lumière / caméra rapide a été utilisé. Dans le cas d'une ligne de contact se déplaçant à  $10\text{m/s}$ ,

avec un temps d'obturation de 200ns, le déplacement de la goutte pendant l'acquisition est de  $2\mu\text{m}$ , ce qui est largement inférieur à la taille du pixel. Cela assure une image nette et une détermination fine de la position de l'interface. De plus, pour s'approcher au mieux de la surface, nous n'avons enregistré que la moitié de la goutte. L'angle de contact dynamique peut donc être déterminé de manière automatique et pour cela, plusieurs méthodes ont été comparées entre elles. Dans l'idéal, il faut visualiser sur des longueurs proches de la dizaine de micromètre pour accéder à la mesure de l'angle microscopique mais cela est très difficile. Toutefois, une mesure de l'angle macroscopique est possible. Suite à nos travaux, il ressort clairement que, même dans les cas de courbures importantes, si le nombre de pixels constitutifs de l'interface considérée près de la ligne triple est suffisant (de l'ordre d'une dizaine), il est possible d'obtenir une tangente correspondante à cet angle macroscopique.

Dans tous les cas, l'interface est détectée avec une épaisseur minimale de un pixel. Sa réalité physique étant inférieure à cette taille, il est certain que l'interface passe par chacun des pixels sélectionnés. Nous avons donc développé un algorithme qui permet de déterminer l'ensemble des droites qui interceptent tous les pixels afin de déterminer la valeur maximale et minimale de l'angle de contact. Pour cela, nous enregistrons dans un premier temps un nombre donné de pixels à partir de la ligne de contact. Dans un second temps, les deux pixels extrêmes de la série de points considérée sont discrétisés ce qui donne l'ensemble des droites qu'il est possible de former à partir de ces deux pixels. Il faut vérifier pour chacune d'elle, si elles passent bien par l'ensemble des points de la série. Cependant, dans le cas d'une discrétisation fine, le nombre de droite à vérifier, combiné à l'ensemble des pixels à tester revient à un nombre de calculs énormes (ex:  $100*100*9$ ) et donc coûteux en temps de calcul. Notre méthode consiste à minimiser le nombre de calcul en ne testant pas l'ensemble des droites possibles. Nous ne recherchons que les droites extrêmes qui coupent l'ensemble des pixels. Pour cela, plusieurs étapes sont nécessaires et notamment la détermination des « pixels critiques ».



**Figure II.24: Exemple d'interface et pixels critiques associés.**

En effet, vérifier qu'une droite coupe l'ensemble des pixels de la série peut être réduit à vérifier uniquement que cette droite coupe les "pixels critiques". Ils correspondent au premier, au dernier pixel et aux pixels placés avant et après un déplacement en abscisse. Dans le cas de la figure II.24, ce sont les pixels numéro 1, 3, 4, 6, 7 et 9 qui correspondent à ces pixels avec  $m$  et  $n$  le nombre de pas de discrétisation respectivement sur le premier et le dernier pixel de la série. De plus, c'est la diagonale des pixels qu'il faut intercepter, pour considérer complètement l'ensemble des possibilités. Le coefficient directeur de la pente maximale  $\alpha_{\max}$  et de la pente minimale  $\alpha_{\min}$  sont obtenus à partir de l'équation suivante :

$$\theta_{dyn} = a \tan(\alpha_i) \quad (\text{II.22})$$

avec  $i$  correspondant à min ou max selon les cas.

Dans l'exemple considéré ici (figure II.24), notons respectivement  $i$ ,  $j$  et  $\Delta_{ij}$ , l'indice de discrétisation sur le pixel 1, l'indice de discrétisation sur le dernier pixel (ici le n°9) et la droite qui relie le pixel 1 au pixel 9 par les points d'indice  $i$  et  $j$ . Pour déterminer la droite de pente minimale, nous commençons par relier le coin supérieur gauche du pixel 1 au coin inférieur droit du pixel 9. Si la droite  $\Delta_{1n}$  ainsi formée n'intercepte pas l'ensemble des pixels critiques, l'ensemble des indices du pixel 9 sont parcourus (en décrémentant), puis ceux du pixel 1 (en incrémentant) jusqu'à obtenir une solution. S'il n'en n'existe aucune, nous nous trouvons dans le cas d'une mauvaise détection.

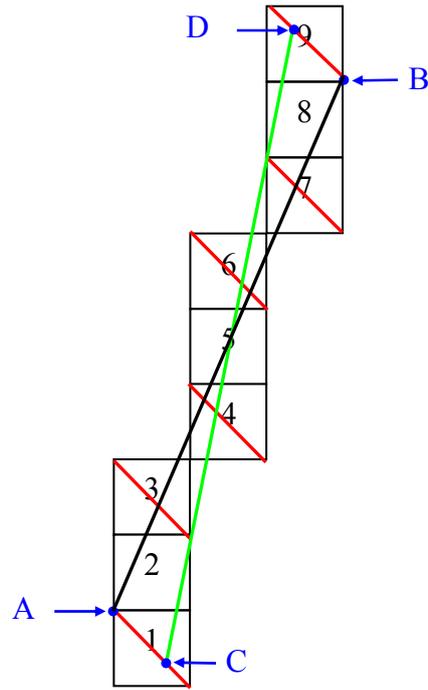


Figure II.25: Détermination des droites extrêmes.

L'opération est alors reconduite en retirant le dernier pixel de la série et ce, dans la limite de 20% du nombre initial de pixels. Si cela ne permet toujours pas de conduire à une tangente, une interpolation linéaire simple est réalisée. Dans le cas où une solution est obtenue, l'étape suivante consiste à déterminer la droite de pente maximale. Pour cela, le même procédé est utilisé mais en partant du coin inférieur droit du pixel 1 et du coin supérieur gauche du dernier pixel de la série (droite  $\Delta_{n1}$ ), en incrémentant l'indice sur le dernier pixel de la série puis en décrémentant l'indice sur le pixel 1 si la droite testée ne conduit pas à une solution. Nous obtenons alors 4 points qui définissent les deux droites de pentes extrêmes (figure II.25).

Comme nous l'avons vu, dans chacun des cas, il faut vérifier que la droite testée intercepte chacun des pixels critiques. Par exemple, afin de vérifier que  $\Delta_{ij}$  coupe bien la diagonale du pixel n°3 ( $P_3$ ), nous ne cherchons pas à résoudre l'équation  $\Delta_{ij} = P_3$  (entre les abscisses  $n - \frac{1}{2}$

et  $n + \frac{1}{2}$ ) mais simplement à déterminer l'existence d'une solution. Comme le montre la figure II.26, cette solution existe si et seulement si :

$$\Delta_{ij}(n - \frac{1}{2}) < m + \frac{1}{2} \quad \text{et} \quad \Delta_{ij}(n + \frac{1}{2}) > m - \frac{1}{2} \quad (\text{II.23})$$

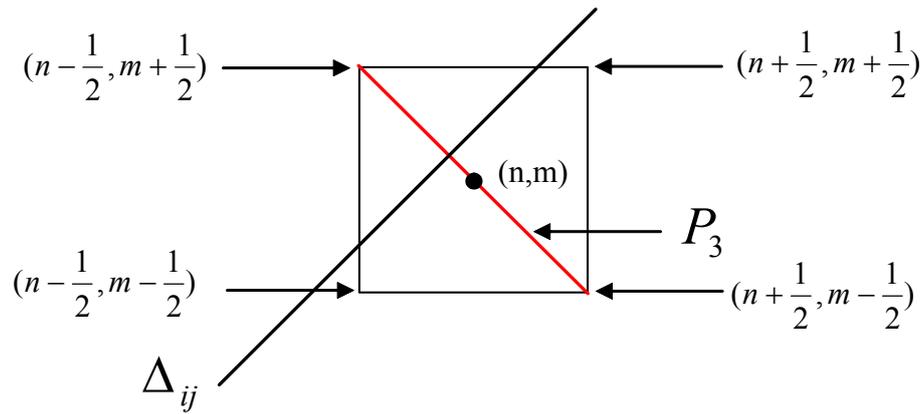


Figure II.26: Existence d'une solution entre la droite testée et la diagonale d'un pixel.

Il est utile de préciser que l'algorithme décrit permet de mesurer avec précision un angle dynamique sur environ 90% des images de nos essais, y compris dans les cas de liquide de faible viscosité.

Les figures II.27 et II.28 présentent deux exemples de comparaison entre la mesure automatique et une mesure manuelle respectivement dans le cas d'une goutte d'eau distillée + 85% de glycérol impactant sur une surface à  $\theta_{\text{éq}} = 80^\circ$  et d'une goutte d'eau distillée impactant sur une surface à  $\theta_{\text{éq}} = 35^\circ$ . Dans chacun des cas la vitesse d'impact est de 0.35m/s.

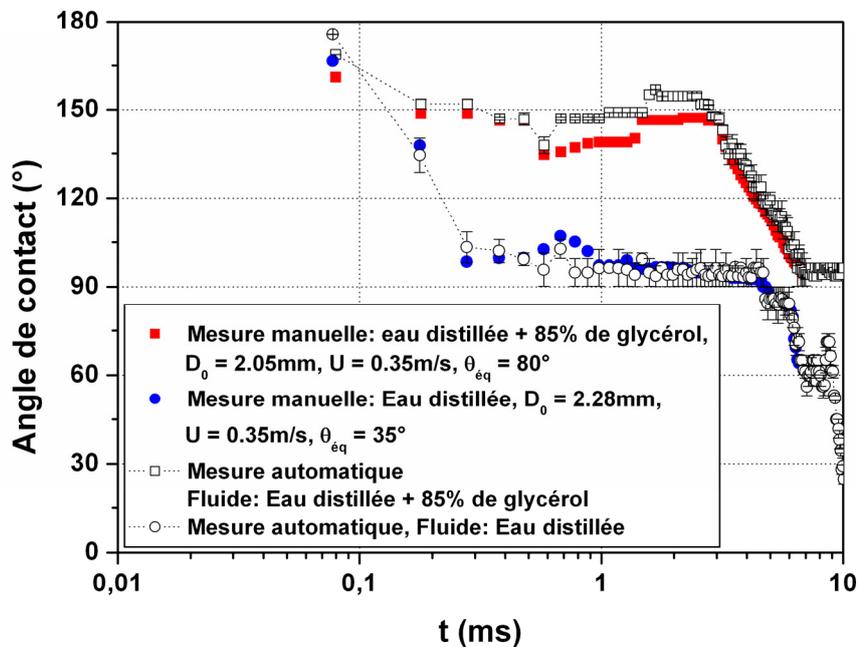


Figure II.27 : Comparaison entre les mesures manuelles (■) et les mesures automatiques (□) de l'angle de contact dynamique lors de l'impact d'une goutte d'eau distillée + 85% de glycérol sur une surface de type 7,  $U = 0.35\text{m/s}$ ,  $D_0 = 2.05\text{mm}$ ,  $\mu = 96\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 68\text{mN/m}$ ,  $\rho = 1210\text{kg/m}^3$ ,  $We = 4.4$ ,  $Re = 9$ .

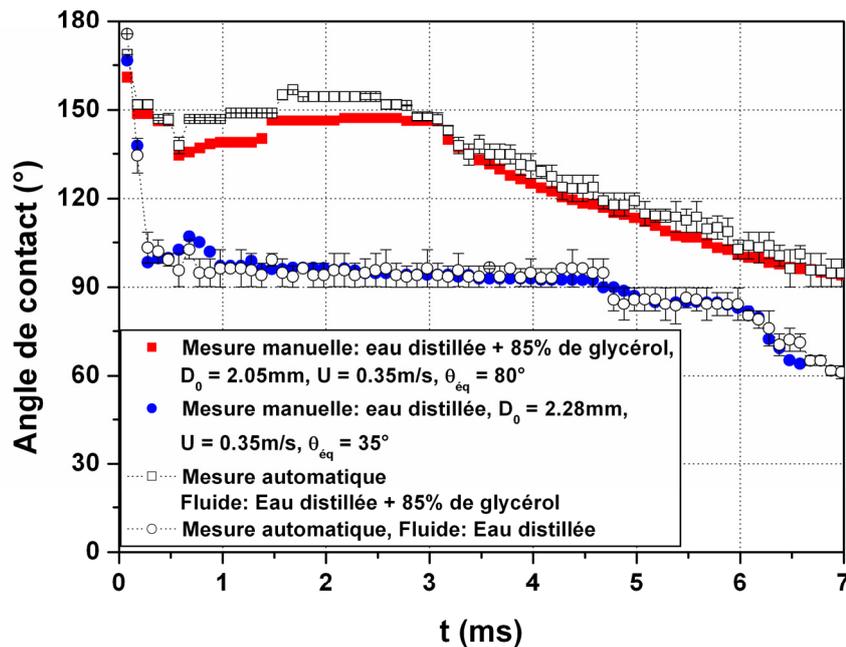


Figure II.28 : Comparaison entre les mesures manuelles (■) et les mesures automatiques (-) de l'angle de contact dynamique lors de l'impact d'une goutte d'eau distillée sur une surface de type 3 ( $\theta_{eq} = 35^\circ$ ),  $U = 0.35\text{m/s}$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $We = 4$ ,  $Re = 836$ .

Nous observons bien que pour des angles plus importants la différence entre l'angle maximum et l'angle minimum mesurable est réduit. De plus, les mesures automatiques obtenues sont cohérentes avec les mesures manuelles, aux incertitudes de mesures manuelles près. Toutefois, nous noterons dans le cas le plus visqueux que le plateau est environ  $10^\circ$  inférieur pour la mesure manuelle. La comparaison de ces deux types de mesures avec ceux provenant de [Sikaló et al, 2005] montre la cohérence de ces mesures et leur justesse.

Si la mesure de l'angle de contact dynamique, suite à une détection d'interface, constitue un plus en terme de détermination, de calcul d'erreur et surtout de vitesse de mesure, la méthode présentée ici n'est pas parfaite. Il est évident qu'un pixel mal détecté peut rendre la mesure automatique fautive voir impossible. C'est la raison pour laquelle, dans chacun des cas et afin de conserver une homogénéité forte, une interpolation linéaire « standard » est effectuée et permet d'obtenir une mesure d'angle, quelle que soit la configuration. Les résultats obtenus dans ce cas sont du même ordre de grandeur que les autres mesures et souvent compris entre la valeur maximale et minimale. Finalement, le nombre de pixels est primordial dans la détermination de l'angle de contact et notre méthode est d'autant plus correcte qu'il est important.

De la même manière, la détection d'interface en elle-même introduit de l'erreur dans le calcul puisque nous passons d'un niveau de gris sur une échelle de 256 à une échelle binaire. Nous perdons ainsi une partie de l'information. En définitive, l'écart entre angle maximum et angle minimum est d'autant plus réduit que le nombre de pixels est important et que les angles sont forts ou faibles.

L'utilisation de nos algorithmes de mesure automatique combinée au dispositif expérimental équipé de l'intensificateur de lumière et à l'enregistrement d'une demi goutte uniquement, permet néanmoins d'obtenir des résultats très concluants.

## Chapitre III

### Impact sur surfaces homogènes

L'ensemble des expériences réalisées, dont une partie est présentée sur les planches en annexe, montre l'influence des différents paramètres de l'impact sur le comportement dynamique de la goutte ([Rioboo et al, 2002]). Pour chacune d'entre elles, nous avons mesuré, en utilisant les algorithmes présentés précédemment (chapitre II), l'évolution au cours du temps à la fois du diamètre de contact entre le substrat et la goutte ainsi que la hauteur au centre. Le cas particulier du dépôt d'une goutte est rapidement abordé dans un premier temps et l'influence de la mouillabilité est discutée. Dans un second temps, le phénomène complet d'impact est étudié en détail.

#### **Vitesse d'impact faible : cas du dépôt**

Pour les cas d'étalement de goutte sans vitesse d'impact (cas du dépôt), des lois de comportement pour l'évolution du diamètre de contact au cours du temps sur des surfaces totalement mouillantes sont disponibles dans la littérature ([DeGennes, 1985 ; De Ruijter et al, 1999]). Elles traduisent un étalement sous l'action des forces capillaires et sont de la forme :

$$D = \alpha t^n \quad (\text{III.1})$$

avec  $\alpha$  un coefficient d'ajustement dépendant des propriétés physico-chimiques du liquide ( $\rho, \sigma, \mu$ ) et du volume qui s'étale. Dans le modèle de De Gennes,  $n = 1/10$  et dans le modèle et de De Coninck  $n = 1/7$ . L'exposant  $1/10$  est obtenu en régime capillaire pur ( $D_0 \ll \lambda$ , avec  $\lambda$

la longueur capillaire ;  $\lambda = \sqrt{\frac{\sigma}{\rho g}}$ ) dans le cas d'un mouillage complet (la dissipation est alors

supposée uniquement localisée dans les coins). L'exposant  $1/7$  s'observe en régime gravitaire. Précisons que les systèmes liquides / solides étudiés ici ne sont pas totalement mouillants mais fortement mouillants ( $5^\circ$  ou  $15^\circ$ ), voir partiellement mouillants ( $30^\circ$  et plus). L'étalement sur surface à mouillabilité partielle présente des différences significatives. La figure III.1 présente l'étalement d'une goutte d'un mélange d'eau distillée et de glycérol (85% en masse) sur 3 surfaces présentant un angle d'équilibre différent.

La mouillabilité du système liquide / solide ne modifie pas l'évolution sous forme puissance mais modifie la valeur de la dite puissance  $n$ . Ainsi, sur une surface où l'angle d'équilibre est de  $8^\circ$ , la puissance est proche de  $1/10$  alors que pour un angle d'équilibre de  $20^\circ$ ,  $n = 0.0523$ .

Cet écart ne peut être porté au crédit de la non circularité de l'étalement puisque celui-ci est contrôlé en fin d'étalement par une observation en vue de dessus (insert à la figure III.1). Très peu de travaux à notre connaissance décrivent la morphologie de la goutte en fin d'étalement ou plus généralement durant l'impact ([Santiago-Rosanne et al, 2001 ; Roisman et al, 2002 ; Rozhkov et al, 2002 ; Rozhkov et al, 2003]). Ce contrôle constitue donc un des aspects importants de nos travaux.

Enfin, dans les cas faiblement mouillants (ici  $\theta_{\text{éq}} = 60^\circ$ ), le diamètre final est atteint tôt (ici  $t = 200\text{ms}$ ) et sans aucune croissance de forme puissance  $1/7$  ou  $1/10$ . La valeur de « n » est donc dépendante de l'angle d'équilibre et sa valeur est comprise entre 0 et 0.1.

Remarque : Dans le cas de liquides moins visqueux s'étalant sur des surfaces partiellement mouillantes, ce dernier comportement est également observé.

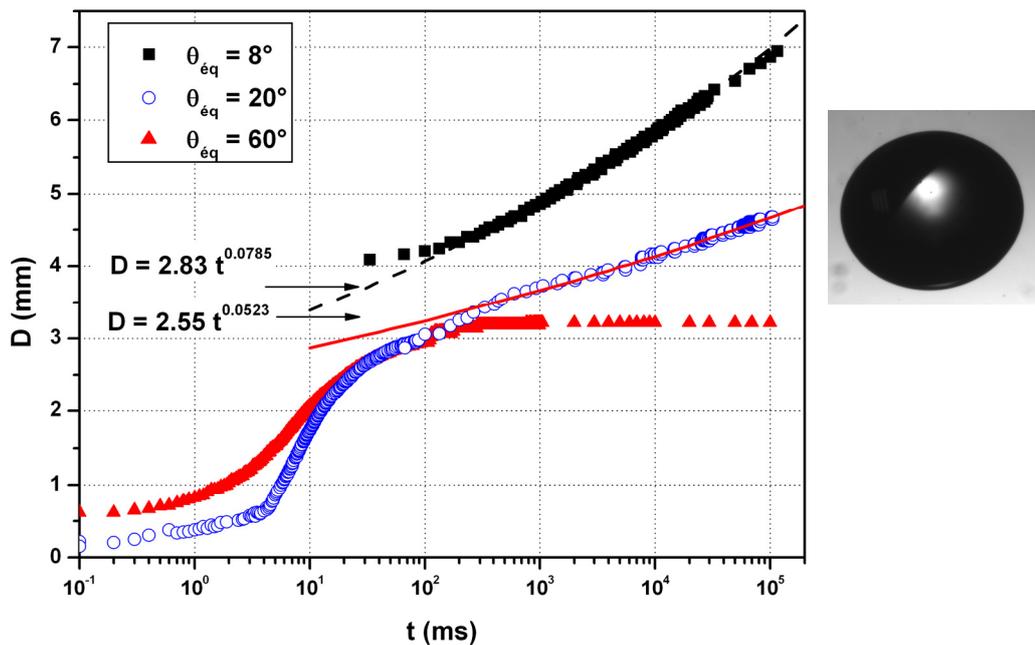


Figure III.1 : Dépôt d'une goutte d'un mélange d'eau distillée et de glycérol ( $D_0 = 2.05\text{mm}$ ,  $\mu = 96\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 68\text{mN/m}$ ,  $\rho = 1210\text{kg/m}^3$ ) sur (■) une surface de type 1,  $\theta_{\text{éq}} = 8^\circ$ , (○) une surface de type 2,  $\theta_{\text{éq}} = 20^\circ$  et (▲) sur une surface de type 6,  $\theta_{\text{éq}} = 60^\circ$ .

### Les différents types d'étalement

Comme nous l'avons vu précédemment et comme le montre la figure III.2, trois configurations sont alors possibles dans le cas de l'impact suivi d'un dépôt.

Lorsque la vitesse d'impact est suffisamment importante et que la surface est peu mouillante, le diamètre maximum excède le diamètre final. Dans cette configuration, un démouillage, c'est à dire une rétraction du diamètre et une augmentation de la hauteur, est observé immédiatement après que la goutte a atteint ce diamètre maximum. Quelques oscillations apparaissent au niveau du diamètre, mais c'est sur la hauteur qu'elles sont le plus visibles. Dans le cas intermédiaire, la vitesse d'impact est suffisante pour obtenir un diamètre maximum équivalent au diamètre à l'équilibre. Enfin, dans le cas où le diamètre maximum est inférieur au diamètre final de la goutte (situation la plus présente dans les applications du jet d'encre), l'étalement maximum est suivi d'une phase d'étalement dite capillaire.

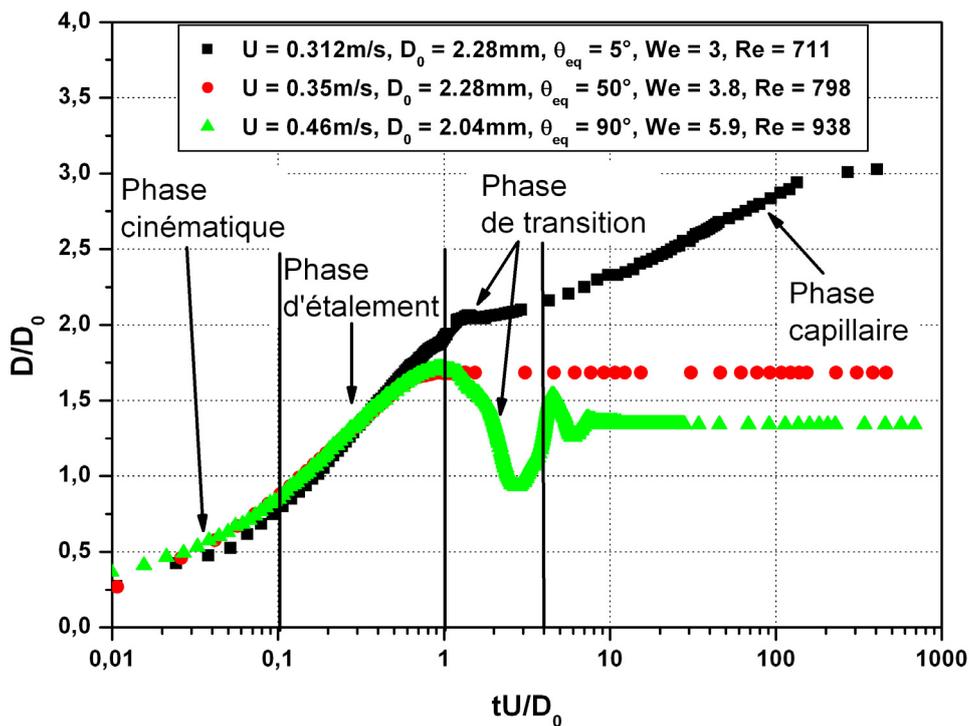


Figure III.2 : Les trois configurations d'étalement possibles pour un impact suivi d'un dépôt.

En effet, à cet instant les forces d'inerties ne jouent plus aucun rôle et seules les forces de tension de surface et de viscosité vont intervenir ; les forces capillaires et la géométrie (effet de courbure) vont forcer l'étalement alors que la viscosité va s'y opposer. Toutefois, dans

l'ensemble de ces configurations, de l'instant de l'impact jusqu'au diamètre maximum, le comportement du diamètre reste le même (figure III.2).

Remarque : Dans le cas d'un substrat avec un angle de contact à l'équilibre de  $110^\circ$ , un rebond partiel, voir total est observable si le fluide considéré est peu visqueux (typiquement de l'eau distillée par exemple). Dans ce cas, la hauteur de la goutte s'élève fortement et un amincissement de la goutte apparaît entre son sommet et le substrat. Cet amincissement peut conduire à une brisure et l'on obtient alors une goutte résiduelle ([Rioboo, 2003], figures I.3.e et I.3.f).

[Rioboo et al, 2002] proposent de découper le phénomène de l'impact en 4 phases distinctes (figure III.2). Comme nous l'avons vu dans le chapitre I, la première de ces phases est dite cinématique et correspond aux tous premiers instants de l'impact. Les déformations de la goutte sont suffisamment faibles pour considérer que la goutte reste une sphère tronquée parfaite. La seconde phase est dite phase d'étalement. Elle s'étend de la fin de la première phase à l'instant où la goutte atteint son diamètre maximum et où sa forme est généralement très proche d'un cylindre. La troisième phase est une phase de transition, et portera par conséquent cette dénomination. Elle correspond au passage de la goutte de sa forme de cylindre à celle de sphère tronquée. C'est au cours de cette phase que les oscillations et/ou le démouillage apparaissent. Enfin, la dernière phase est dite capillaire et dure de l'instant où la goutte commence à s'étaler de nouveau jusqu'à atteindre le diamètre d'équilibre. Nous allons reprendre et montrer systématiquement l'effet de chacun des paramètres du problème dans chacune de ces phases.

Enfin, les grandeurs seront adimensionnalisées pour faciliter leurs superpositions. Il est commode de choisir le diamètre de la goutte en vol  $D_0$  pour échelle de longueur, et le rapport  $\frac{D_0}{U}$  pour échelle de temps où  $U$  est la vitesse d'impact (chapitre I, [Rioboo et al, 2002]). Ces échelles sont construites à partir des grandeurs inertielles du fait de leurs prépondérances au début de l'étalement. De plus, les gouttes gardent une « mémoire » et la variation de ces paramètres a évidemment un impact, y compris sur les temps longs.

### Phase cinématique

Cette phase débute à l'instant où la goutte entre en contact avec la surface. Des résultats récents ont montré qu'une couche d'air est comprise entre la goutte et la surface à l'instant de l'impact. La contraction de cette couche entraîne l'encapsulation d'une bulle d'air ([Thoroddsen et al, 2005]). Les auteurs précisent que la taille et la vitesse de contraction de la couche d'air sont liées à la courbure à la base de la goutte. Un modèle de vitesse de contraction a été construit à partir de l'équilibre entre les forces de tension de surface et l'inertie, ce qui conduit à l'évolution du rayon de la bulle au cours du temps (équation III.2) :

$$R(t) = R_i \exp\left(-C \sqrt{\frac{\pi\sigma}{\rho V t}}\right) \quad (\text{III.2})$$

avec  $R_i$  le rayon initial de la couche d'air,  $V$  le volume de la bulle d'air et  $C$  une constante égal à  $0.94 \pm 0.13$  ([Thoroddsen et al, 2003]).

Dans un second temps, le liquide à la base de la goutte est éjecté le long de la surface sous la forme d'une lamelle. Expérimentalement, l'instant de l'apparition de la lamelle et son développement (forme et vitesse) sont dépendants des paramètres physico-chimiques du liquide.

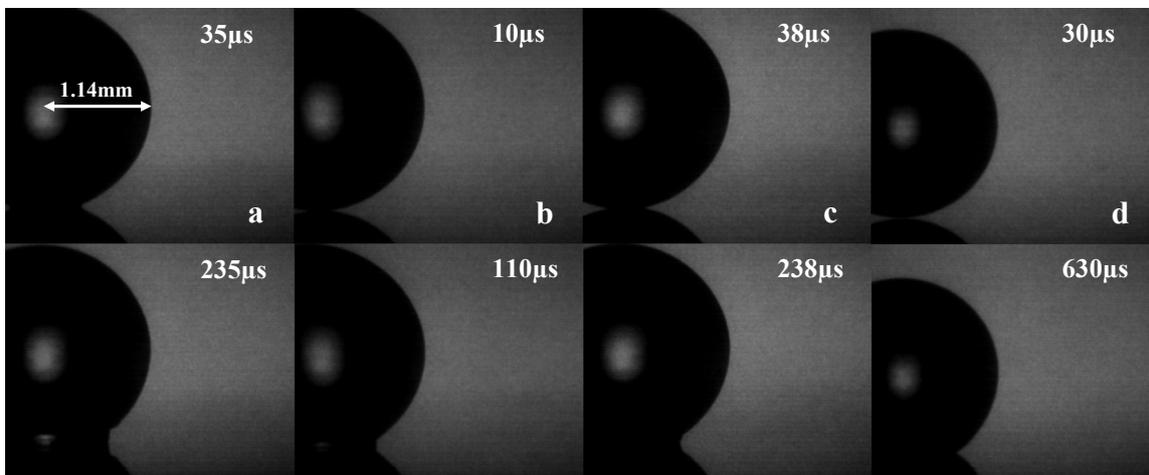


Figure III.3 : Profils transitoires dans le régime cinématique dans quatre cas particuliers, (a) eau distillée impactant à 0.35m/s sur un substrat de type 3 ( $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 35^\circ$ ), (b) eau distillée impactant à 1m/s sur un substrat de type 3 ( $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 35^\circ$ ), (c) eau distillée impactant à 0.35m/s sur un substrat de type 7 ( $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 90^\circ$ ), (d) eau distillée + 85% de glycérol impactant à 0.35m/s sur un substrat de type 3 ( $\mu = 96\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 67\text{mN/m}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 35^\circ$ ).

En effet, à une fréquence de 10000i/s, une image est enregistrée toutes les 100µs et généralement, la lamelle apparaît lors des toutes premières images après l'impact, soit entre 50 et 700µs environ en fonction des conditions expérimentales.

Dans tous les cas, il n'en reste pas moins que les déformations de la surface libre de la goutte sont relativement faibles (la goutte garde sa forme de sphère tronquée) et que la lamelle est très peu développée (figure III.3).

Par conséquent, en faisant l'hypothèse que la goutte traverse la surface sans la voir (figure III.4), le diamètre d'intersection avec la surface est donné par la formule suivante :

$$\frac{D}{D_0} = 2\sqrt{t^*(1-t^*)} \quad \text{avec} \quad t^* = \frac{tU}{D_0} \quad (\text{III.3})$$

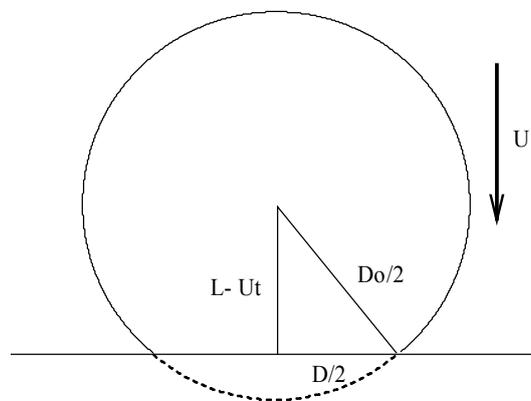


Figure III.4 : Schéma de la goutte durant la phase cinématique.

L'utilisation d'un coefficient d'ajustement  $\alpha$ , dépendant des conditions expérimentales, est nécessaire et l'équation précédente peut se résumer dans les premiers instants de l'impact à (développement limité du premier ordre) :

$$\frac{D}{D_0} = 2\alpha\sqrt{t^*} \quad (\text{III.4})$$

L'évolution du diamètre sans dimension au carré est linéaire avec le temps, cette équation

s'écrit :  $\left(\frac{D(t^*)}{D_0}\right)^2 = 4\alpha^2 t^*$  et c'est cette représentation que nous utiliserons dans la suite. Le

régime cinématique ne s'étend pas au-delà de  $0.1t_i$  ([Rioboo et al, 2002]), ce qui correspond dans nos expériences à 770µs pour les vitesses les plus faibles et 250µs pour les vitesses les plus importantes. Dans ces conditions, il est possible d'observer la lamelle, d'un point de vue expérimental, dans ce régime.

Une autre représentation du diamètre au cours du temps et basée sur de la conservation volumique est proposée par [Kim et al, 2000] :

$$\frac{D}{D_0} = \left[ \frac{3}{2} - \frac{9}{8}s^2 - \frac{1}{2} \left( \frac{81}{16}s^4 - \frac{27}{2}s^2 + 12s - 3 \right)^{\frac{1}{2}} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (\text{III.5})$$

avec  $s = 1 - 2t^*$ . Les auteurs précisent que pour  $t^* \ll 1$ , cette loi est approximée par la même équation que présentée précédemment (équation III.4). Elle est en très bon accord avec les mesures expérimentales, toutefois, aucun paramètre ne permet de prendre en compte les conditions opératoires. Nous verrons dans la suite que, même dans la phase cinématique, la viscosité modifie de manière non négligeable le développement du diamètre. Seule l'équation III.4 est alors utilisée pour décrire l'évolution du diamètre de contact dynamique.

### Effet de la vitesse

Les profils transitoires montrent que la lamelle apparaît plus rapidement pour des vitesses plus importantes. La multiplication de la vitesse d'impact par un facteur 3 conduit à une division par 2 du temps à partir duquel la lamelle est observable. Sous la forme adimensionnelle, cela donne une apparition à  $t^* = 0.04$  pour l'impact à 0.35m/s et à  $t^* = 0.048$  pour l'impact à 1m/s. Cet écart, rapporté à l'expérience d'impact à 0.35m/s, correspond à une variation de 20%, ce qui est significatif. En revanche, la forme de cette lamelle, ainsi que l'angle de contact qu'elle forme avec la surface, ne sont pas modifiés (figures III.3.a et III.3.b).

Enfin, en s'intéressant plus précisément à l'évolution du diamètre de contact (figure III.5), nous ne constatons pas d'écarts importants en fonction de la vitesse d'impact. Les incertitudes calculées, et représentées sur la courbe, indiquent que la vitesse d'impact, au moins dans la gamme considérée dans ce travail, n'a pas d'influence sur le comportement durant le régime cinématique. En utilisant la loi de l'équation III.4 sur les temps courts, le coefficient d'ajustement  $\alpha$  a pour valeur 1.3505. Cette valeur est cohérente avec les résultats publiés par ailleurs où  $\alpha$  est donné à 1.4 ([Rioboo et al, 2002 ; Rozhkov et al, 2002]). La vitesse d'impact n'est donc pas un paramètre influant dans ce régime.

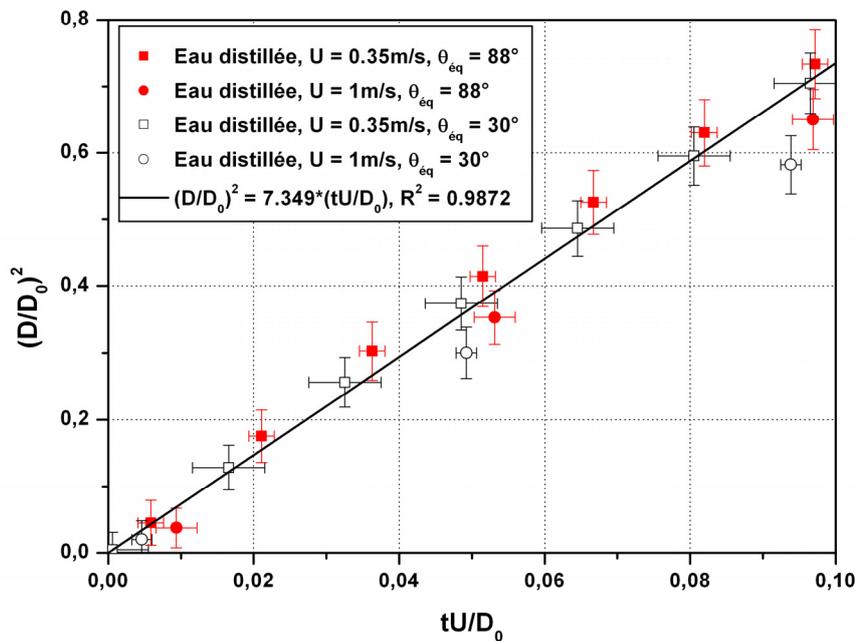


Figure III.5 : Effet de la vitesse d'impact sur le diamètre de contact durant le régime cinématique,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ .

### Mouillabilité et tension de surface

Durant cette phase, l'hypothèse principale est la prépondérance des effets d'inerties devant les effets de capillaires. Les temps sont très courts et les déformations sont faibles quelles que soient la goutte et la surface d'impact. Ceci explique l'absence d'écart significatif à mouillabilité très différente. L'évolution du diamètre de contact au cours du temps (figure III.6) illustre bien ce résultat. En utilisant encore une fois l'équation III.4 pour donner une loi de comportement à ce diamètre dynamique, on obtient un coefficient  $\alpha$  de 1.35. Cette valeur est en parfait accord avec les résultats précédents ([Rioboo et al, 2002]).

Dans les cas illustrés ici, il faut également noter que ce paramètre de mouillabilité ne modifie pas l'instant auquel la lamelle apparaît (entre  $250\mu\text{s}$  et  $300\mu\text{s}$  aux incertitudes de mesures près) pour un écart de  $80^\circ$  pour l'angle d'équilibre ( $\theta_{eq} = 5^\circ$  et  $\theta_{eq} = 88^\circ$ ).

Cependant, la mouillabilité de la surface influence l'angle de contact dynamique. En effet, elle modifie légèrement la valeur locale de l'angle de contact que forme la lamelle avec le support (figures III.3.a et III.3.c). Toutefois, ces écarts n'excèdent pas une dizaine de degrés tant que  $t^* < 0.06$ . Nous reviendrons en détail sur le comportement dynamique de l'angle de contact dans la suite.

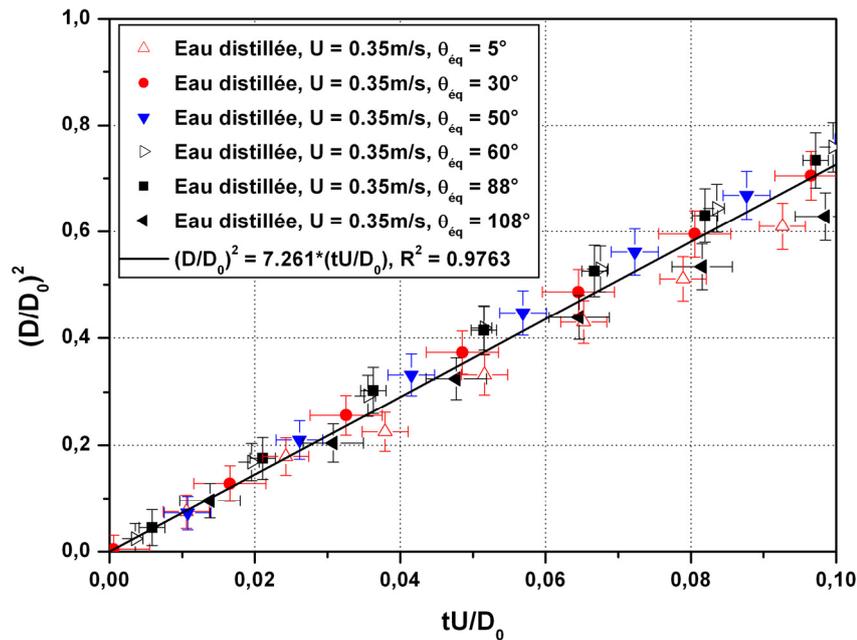


Figure III.6 : Influence de la mouillabilité du support sur l'extension du diamètre de contact, fluide: eau distillée,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $U = 0.35\text{m/s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $We = 3.8$ ,  $Re = 798$ .

### Effet de la viscosité

Le dernier paramètre influant dans cette phase est la viscosité. Ce paramètre perturbe fortement l'apparition de la lamelle et les profils transitoires sont très peu déformés. Comme dans le cas des liquides à basse viscosité, aucune onde capillaire ne sont visibles sur la surface libre pour un liquide de viscosité  $96\text{mPa.s}$ . Une première explication consiste à dire que la forte viscosité du liquide atténue rapidement et fortement l'amplitude de ces déformations. Un autre argument peut être avancé pour justifier leur absence. Dans leurs travaux, [Renardy et al, 2003] observent la formation d'ondes capillaires sur la surface libre de la goutte. Ils précisent que la mouillabilité de la surface n'influence pas l'apparition de ces ondes, en raison d'une échelle de temps trop courte. Nos observations sont en accord avec ce résultat comme le montre la figure III.6. Les auteurs notent également un effet de seuil ( $We > 4$ ) à partir duquel ces ondes capillaires, qui prennent naissance au sommet de la goutte, apparaissent. Il en résulte une structure pyramidale à plusieurs paliers. A partir des arguments d'échelle, les auteurs montrent qu'il existe un intervalle de vitesse d'impact dans lequel ces ondes capillaires se forment. Cet intervalle est défini par :

$$\left(\frac{2\sigma}{\rho D_0}\right)^{\frac{1}{2}} < U < \left(\frac{2\sigma^2}{\rho\mu D_0}\right)^{\frac{1}{3}} \quad \text{(III.6)}$$

Dans le cas d'un mélange d'eau distillée et de glycérol (à 85% en masse), ce qui correspond à une viscosité de 96mPa.s, la borne supérieure de l'intervalle de l'équation III.4 est de 0.34m/s. Ceci explique également pourquoi il n'y a pas d'ondes capillaires visibles dans ce cas précis. Par ailleurs, nous avons observé la présence de ces déformations pour des liquides moins visqueux et en particulier pour des gouttes d'eau distillée impactant entre 0.3 et 1m/s. Pour ce liquide, les bornes de l'équation III.6 sont respectivement de 0.25 et 1.7m/s, ce qui est en accord avec nos observations.

De la même manière, là il n'y a pas à proprement parler d'éjection de la lamelle. Simplement, nous observons ponctuellement, en comparant les profils transitoires des figures III.3.a et III.3.d, à 630µs, que l'angle de contact dynamique change et est supérieur à celui d'une sphère tronquée coupée par un plan. La viscosité du liquide retarde donc temporellement l'apparition de la lamelle et empêche son développement.

Enfin, et comme cela a été montré par ailleurs ([Rioboo et al, 2002]), les échelles de temps sont suffisamment courtes pour que la dissipation due à la viscosité soit négligée. De même que pour la tension de surface, l'évolution du diamètre est donc indépendante de la viscosité dans la phase cinématique.

### **Phase d'étalement**

La phase d'étalement s'étend de la fin du régime cinématique jusqu'à l'instant où la goutte atteint son diamètre maximum. Dans le cas des fluides de viscosité basse, la lamelle s'étend et se propage le long du substrat. Durant cette phase, les forces d'inerties sont toujours prépondérantes et elles sont dissipées par la viscosité du liquide qui s'oppose à l'étalement.

Compte tenu des bornes de ce régime, nous allons nous attacher à montrer l'influence des paramètres principaux que sont la vitesse d'impact, la viscosité et la tension de surface sur, à la fois, l'évolution du diamètre de contact, la valeur de l'étalement maximum et du temps auquel ce diamètre est atteint.

Comme nous l'avons fait remarquer précédemment, durant cette phase, le comportement du diamètre de contact semble être indépendant des paramètres inertiels et physico-chimiques. Nous allons cependant nuancer cette remarque dans la suite. Il faut également noter que la

mouillabilité de la surface joue un rôle dans cette phase, effet que nous allons développer par la suite.

Enfin, la prépondérance des forces inertielles, sauf à la fin de cette phase, implique que le comportement du diamètre de contact restera de la forme de l'équation III.4 avec comme coefficient d'ajustement celui déterminé précédemment dans les différents cas.

### **Effet de la vitesse**

Il est évident que la vitesse d'impact a un effet direct sur l'évolution du diamètre puisque l'énergie cinétique de la goutte varie comme le carré de la vitesse d'impact. A l'instant du contact avec le support, cette vitesse est uniquement orientée de façon verticale et elle passe brutalement à un étalement radial le long de la surface. L'augmentation de la vitesse d'impact a pour effet un accroissement plus important du diamètre de contact, et par suite, du diamètre maximum. En représentant l'évolution du diamètre de contact en paramètre sans dimensions (figure III.7), il faut remarquer que dans les premiers instants, la vitesse d'impact n'a pas la moindre influence. En particulier, il n'y a séparation entre la courbe de l'impact à 1m/s et les deux autres, qu'à partir de  $t^* = 0.3$ . De la même manière, les expériences à 0.6m/s et 0.35m/s s'écartent environ à  $t^* = 0.5$ . Evidemment, si en augmentant encore la vitesse d'impact, nous pouvons nous attendre à ce que les courbes divergent les unes des autres à des temps encore plus courts. En outre, le diamètre maximum est obtenu d'autant plus tard que la vitesse d'impact est grande ( $t^* = 0.8$  pour l'expérience à 0.35m/s et  $t^* = 1.1$  pour l'expérience à 1.1m/s) et il est utile de remarquer ici que ce temps est très différent de la valeur  $8/3t_i$  donné par [Pasandideh-Fard et al, 1996] (nous reviendrons sur ce point par la suite).

La comparaison des profils transitoires pour deux vitesses d'impact différentes (0.35m/s et 1m/s) d'un même liquide sur une même surface montre que pour la vitesse la plus importante, les déformations de la calotte sphérique sont plus faibles (l'onde capillaire n'est presque pas visible sur la surface libre dans le cas à 1m/s).

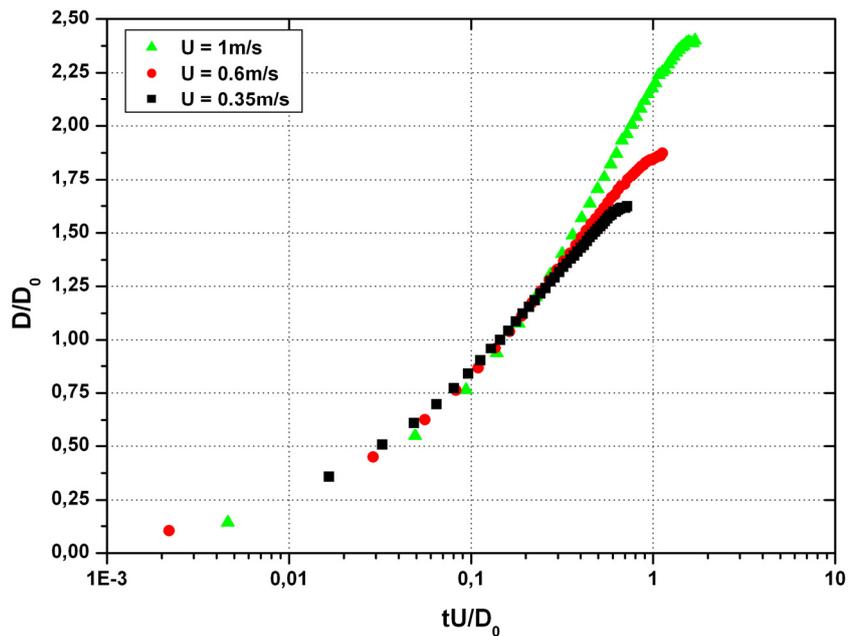


Figure III.7 : Effet de la vitesse d'impact d'une goutte d'eau distillée de 2.28mm sur une surface à  $\theta_{eq} = 50^\circ$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ .

Toutefois, il faut noter que l'exemple choisi ici correspond à l'impact d'une goutte sur une surface très mouillante et des travaux expérimentaux récents indiquent une influence de l'angle d'équilibre sur les ondes capillaires ([Bayer & Megaridis, 2006]). Un très bon accord a été obtenu avec le modèle de [Renardy et al, 2003] mais les observations montrent que plus cet angle est faible et moins les ondes capillaires sont prononcées. Sur la figure III.8, cet effet est bien observable dans le cas de deux vitesses appartenant à l'intervalle défini par l'équation III.6.

Enfin, la lamelle est d'autant plus grande et s'étend d'autant plus rapidement en s'amointrissant que la vitesse d'impact est importante. Sur la figure III.8, l'influence de cette vitesse d'impact est observable bien que, jusqu'à  $t^* = 0.3$  (respectivement  $t = 2\text{ms}$  et  $t = 0.7\text{ms}$  environ), les géométries des gouttes soient très proches et avec une lamelle peu développée (forme de calotte sphérique surmontant un cylindre). Il est alors important de quantifier son effet vis-à-vis de la vitesse de propagation de la lamelle.

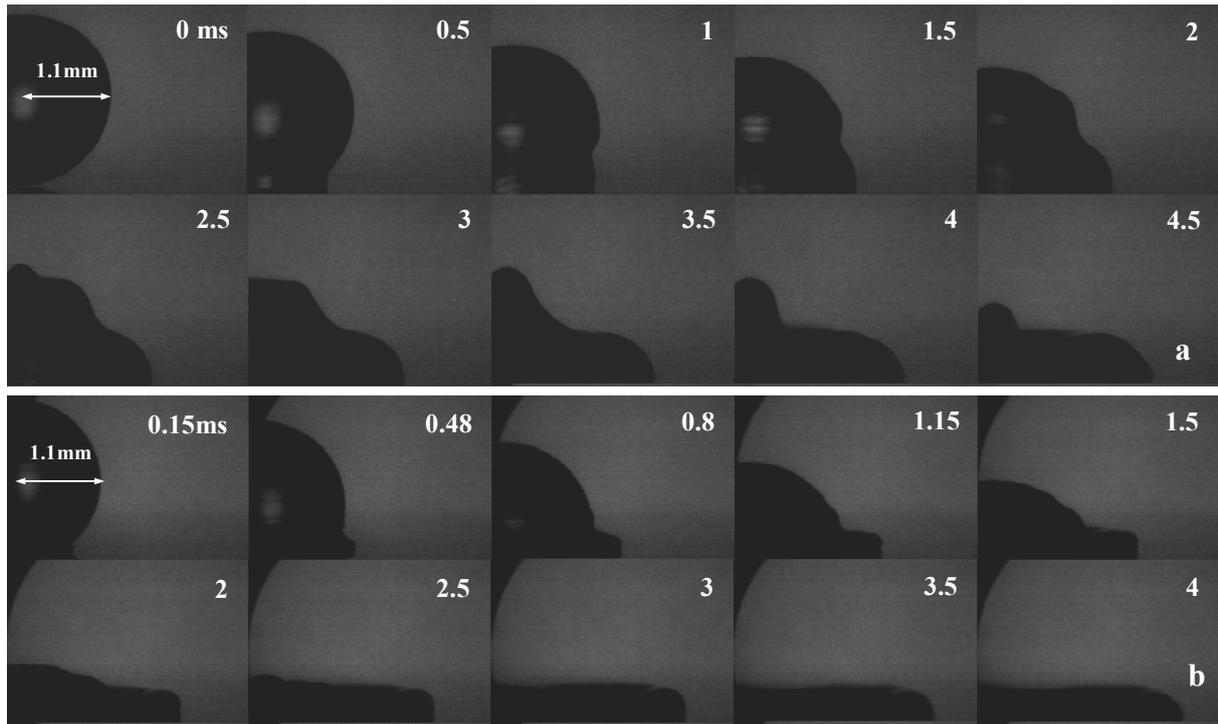


Figure III.8 : Développement de la lamelle lors de l'impact à (a)  $U = 0.35 \text{ m/s}$  et (b)  $U = 1 \text{ m/s}$ , d'une goutte d'eau distillée sur une surface à  $\theta_{\text{eq}} = 5^\circ$ ,  $D_0 = 2.28 \text{ mm}$ ,  $\sigma = 73 \text{ mN/m}$ ,  $\mu = 1 \text{ mPa.s}$ ,  $\rho = 1000 \text{ kg/m}^3$ .

A partir des valeurs expérimentales du diamètre, il est possible d'obtenir une « vitesse instantanée » à un instant « t » de la propagation de la ligne triple  $U_{LT}$ . Le calcul s'effectue à partir de la dérivée à l'instant t de la régression polynomiale d'ordre 2 entre les points  $D(t-\Delta t)$  et  $D(t+\Delta t)$  (figure III.9.a).

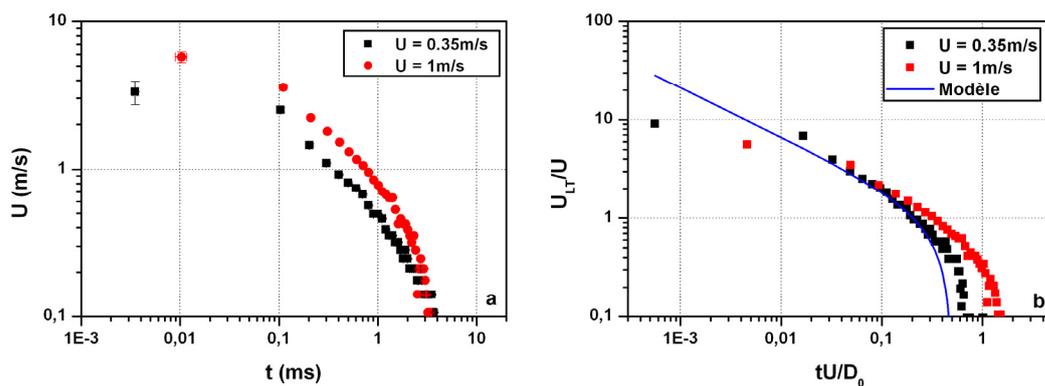


Figure III.9 : Effet de la vitesse d'impact sur la vitesse de propagation de la ligne triple et modèle en représentation (a) dimensionnelle et (b) adimensionnelle, fluide : Eau distillée,  $D_0 = 2.28 \text{ mm}$ , substrat : silicium avec fonctionnalisation de type 3 ( $\theta_{\text{eq}} = 35^\circ$ ).

Les résultats obtenus montrent bien, comme cela était prévisible, que les vitesses d'avancées de la lamelle sont d'autant plus importantes que la vitesse d'impact est grande. Plus particulièrement, une vitesse de propagation du rayon de contact de respectivement 4.65m/s et 5.75m/s est mesurée pour des expériences à 0.35m/s et 1m/s. Le rapport entre ces valeurs et la vitesse d'impact de l'expérience considérée donne respectivement 9 et 5.6. Toutefois, pour réellement pouvoir comparer ces résultats, il faut que les vitesses expérimentales de la ligne de contact soient mesurées exactement au même instant (en temps adimensionnel), ce qui est très difficile en pratique. En rapportant la vitesse de la ligne triple au cours du temps adimensionnalisé à la vitesse d'impact, une tendance générale est obtenue. En effet, pour les cas d'impact d'une goutte d'eau distillée à respectivement  $U = 0.35\text{m/s}$  et  $U = 1\text{m/s}$ , une superposition des valeurs mesurées jusqu'à  $t^* < 0.3$  est constatée (figure III.9.b).

Comme nous l'avons vu précédemment, le diamètre de contact peut être prédit quantitativement par différents modèles géométriques simples. Par exemple, il est possible d'utiliser l'équation III.3 dont la dérivée par rapport au temps nous permet d'obtenir une loi d'évolution de la vitesse de propagation pour le rayon de contact :

$$\frac{U_{LT}}{U} = \frac{\alpha}{2} \frac{1 - 2t^*}{\sqrt{t^*(1-t^*)}} \quad (\text{III.7})$$

où  $U$  est la vitesse d'impact,  $U_{LT}$  la vitesse de la ligne triple au temps  $t^*$  et  $\alpha$  est le coefficient d'ajustement précédemment calculé. La valeur  $\alpha = 1.35$  sera conservée dans la suite, indépendamment des paramètres du problème du fait qu'elle varie peu dans la phase cinématique et qu'elle est très proche des résultats donnés dans la littérature ([Kim et al, 2000 ; Mourougou-Candoni et al, 1997; Rioboo et al, 2002]). Néanmoins, cette loi simple et générique est en très bon accord avec les points expérimentaux, jusqu'à un temps  $t^* = 0.4$ . En raison des hypothèses géométriques, cette loi ne peut cependant pas être utilisée lorsqu'il y a formation de la lamelle. Le comportement du diamètre comme une puissance  $\frac{1}{2}$  du temps n'est donc pas systématique. Des valeurs de puissances plus faibles, de l'ordre de 0.3, sont mesurables dans plusieurs cas et des simulations récentes abondent en ce sens ([Khatavkar, 2005]).

### **Effet de la viscosité**

La viscosité s'oppose systématiquement à tous mouvements. Comme nous l'avons vu par ailleurs, cet effet apparaît très tôt dans le mécanisme d'impact et ralentit considérablement le déplacement de la ligne contact.

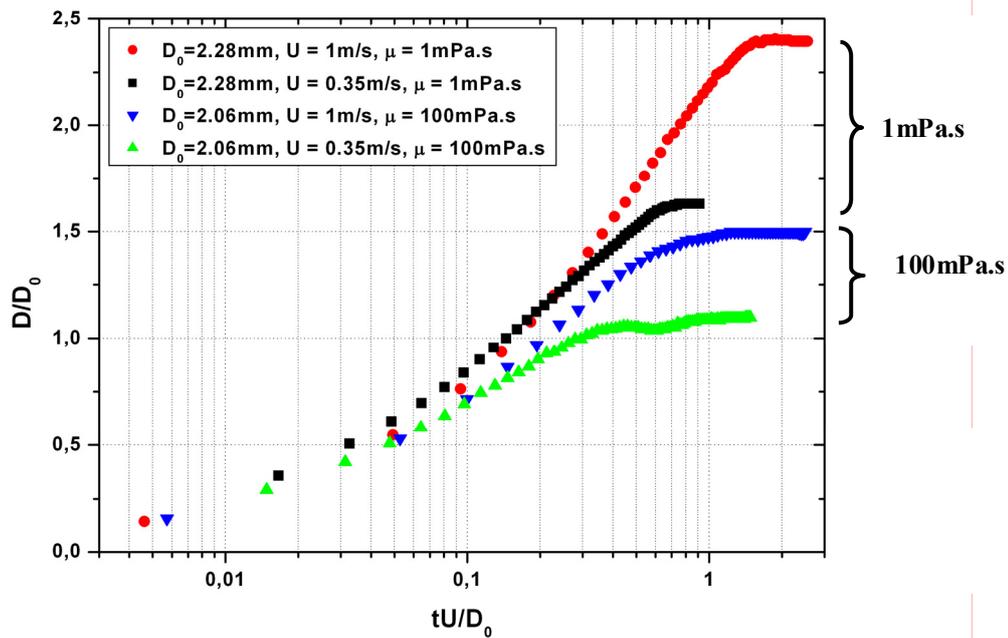


Figure III.10 : Effet de la viscosité sur l'évolution du diamètre de contact, substrat de type 4 ( $\theta_{eq} = 50^\circ$ ).

La figure III.10 met en évidence les écarts temporels et d'amplitudes pour le diamètre maximum dans le cas de deux vitesses d'impact et de deux viscosités différentes, à tensions superficielles relativement proches (73mN/m pour l'eau distillée et 68mN/m pour le mélange eau distillée + glycérol). Pour une vitesse d'impact à 0.35m/s, l'étalement maximum sans dimension est de 1.62 et est atteint à  $t^* = 0.8$  dans le cas d'eau distillée contre 1.05 à  $t^* = 0.4$  pour le mélange eau distillée + glycérol. Cela correspond à un facteur 2 en temps pour une diminution d'amplitude de 35%. Pour les mêmes fluides mais à une vitesse de 1m/s, l'étalement maximum est de 2.4 à  $t^* = 1.7$  contre 1.22 à  $t^* = 0.94$  soit une variation de 45% en temps et de 50% en amplitude. Le temps nécessaire pour atteindre le diamètre maximum semble évoluer régulièrement avec la viscosité, à raison d'un facteur 2 pour deux ordres de grandeurs, et la différence d'amplitude croît également avec l'augmentation de la vitesse.

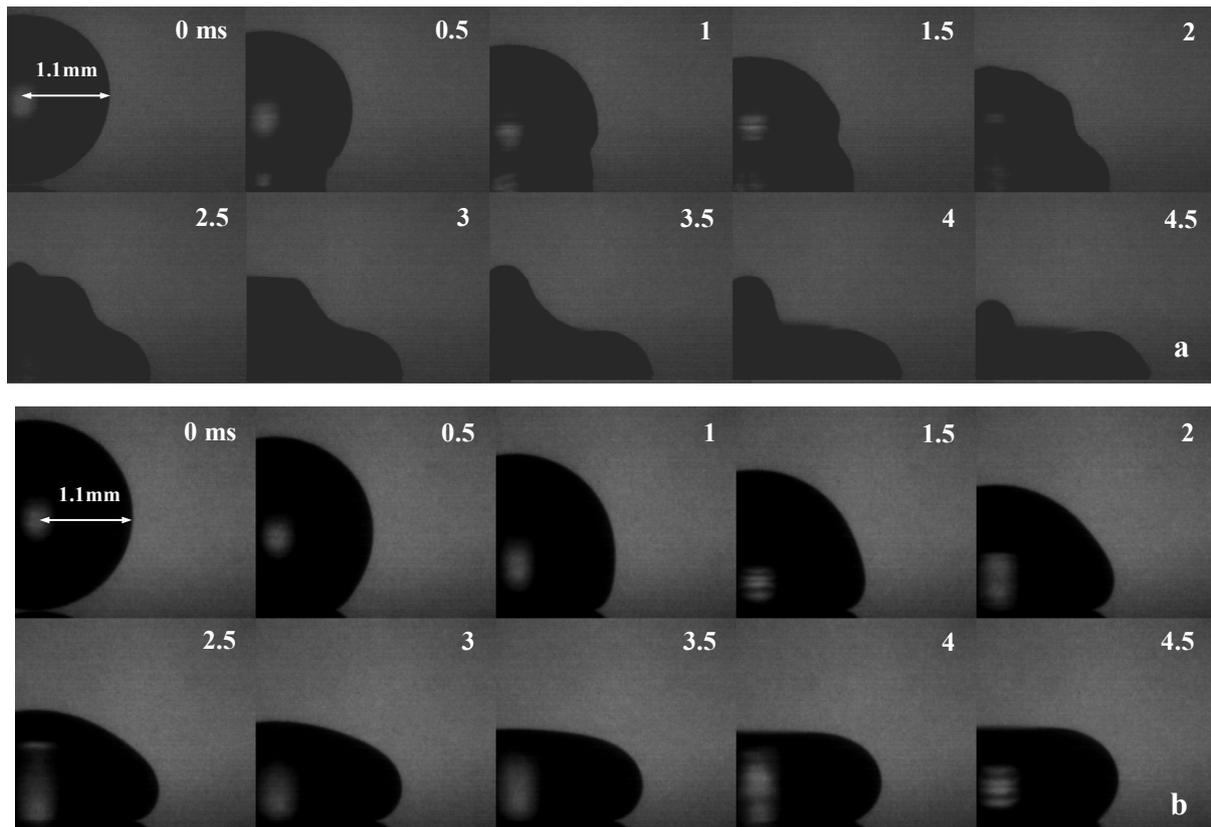


Figure III.11 : Développement de la lamelle lors de l'impact à  $U = 0.3\text{m/s}$  d'une goutte (a) d'eau distillée ( $\mu = 1\text{mPa.s}$ ) et (b) d'eau distillée + glycérol (85% en masse) ( $\mu = 96\text{mPa.s}$ ) sur une surface à  $\theta_{\text{éq}} = 5^\circ$ .

La comparaison des profils transitoires (figure III.11) met en évidence que plus la viscosité augmente, moins la surface libre est perturbée et moins la lamelle se développe. Les fortes déformations observables dans le cas de l'eau distillée ont disparu pour laisser la place à une interface lisse. La géométrie de sphère tronquée surmontant un cylindre est modifiée au fur et à mesure que la viscosité augmente (le « pied » de la goutte observé par [Roux & Cooper, 2004] disparaît). Dans le cas du mélange eau distillée + 85% de glycérol ( $\mu = 96\text{mPa.s}$ ), le diamètre ne se développe quasiment pas et on observe un aplatissement de la goutte sur elle-même. L'intégralité de l'étalement est contrôlée par la viscosité dans ce cas.

La dissipation de l'énergie cinétique ne se fait pas uniquement par la viscosité à l'intérieur de la goutte mais également par le cisaillement sur la surface à l'interface liquide / solide. C'est la courbure de l'interface liquide / gaz, au niveau de la ligne triple, qui traduit les effets de dissipation à la fois visqueuse et d'interaction solide / liquide ([Bayer & Megaridis, 2006]). A angle d'équilibre fixé, plus cette courbure est importante (angle de contact fort) et plus la dissipation visqueuse sur la surface va l'être. Il est alors important de noter que dans le cas  $\mu = 96\text{mPa.s}$ , l'angle de contact que forme la goutte avec le support, tout au long de la phase

d'impact, est compris entre  $130^\circ$  et  $150^\circ$ , alors que pour  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ , cet angle reste constant à environ  $80^\circ$ . Nous reviendrons par la suite sur le comportement dynamique de l'angle de contact durant cette phase avec l'étude spécifique de l'influence de la viscosité et de la mouillabilité de la surface.

En ce qui concerne la vitesse de déplacement de la ligne contact, elle diminue avec l'augmentation de la viscosité (le diamètre croit moins vite). Décrivons ci-dessous son évolution.

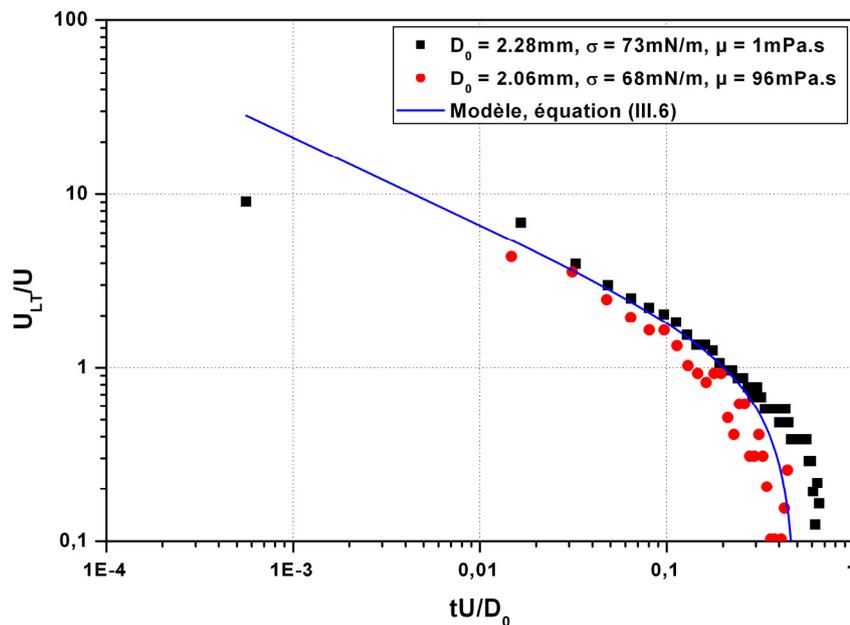


Figure III.12 : Effet de la viscosité sur la vitesse de la ligne de contact,  $U = 0.35\text{m/s}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 50^\circ$ .

La figure III.12 met en avant le même phénomène que dans le paragraphe précédent. La première valeur de vitesse mesurée est de  $1.5\text{m/s}$  à  $t^* = 0.014$ , soit un facteur 5 environ par rapport à la vitesse d'impact. Comme précédemment, les points expérimentaux se superposent jusqu'à  $0.3t^*$  malgré les deux ordres de grandeurs d'écart sur la viscosité des liquides utilisés. Il est à remarquer que le modèle géométrique de l'équation (III.7) est en très bon accord avec le cas visqueux, bien qu'il n'intègre aucunement ces aspects. Cela est sans doute à imputer à l'absence de déformation dans les cas très visqueux, ce qui induit que la goutte reste proche de la forme d'une sphère tronquée (hypothèse principale du modèle).

## Effet de la mouillabilité

Nous allons nous attacher ici à mettre en avant l'effet du paramètre de mouillabilité. Les résultats précédents montrent que la mouillabilité, caractérisée par l'angle d'équilibre entre le liquide et la surface, n'a que peu d'impact sur la phase cinématique. Toutefois, s'il est vrai que durant la phase d'étalement le phénomène d'inertie est prépondérant, il n'en reste pas moins que l'interaction liquide / solide, contribue à la dissipation de l'énergie cinétique. Comme nous l'avons déjà évoqué auparavant, c'est à la fin de cette phase d'étalement que la vitesse de la ligne de contact s'annule sous les effets combinés de la tension de surface et de la viscosité. Ces forces ne peuvent donc pas être totalement négligées devant les forces inertielles à la fin de cette phase. Aussi, en considérant la mouillabilité d'un liquide vis-à-vis d'une surface comme étant sa susceptibilité à s'y étaler, il serait normal que cela ait une influence sur l'étalement maximum pour des angles à l'équilibre très éloignés. La seule possibilité est alors que ce paramètre n'a une réelle influence que lors de la toute dernière partie de l'étalement inertiel.

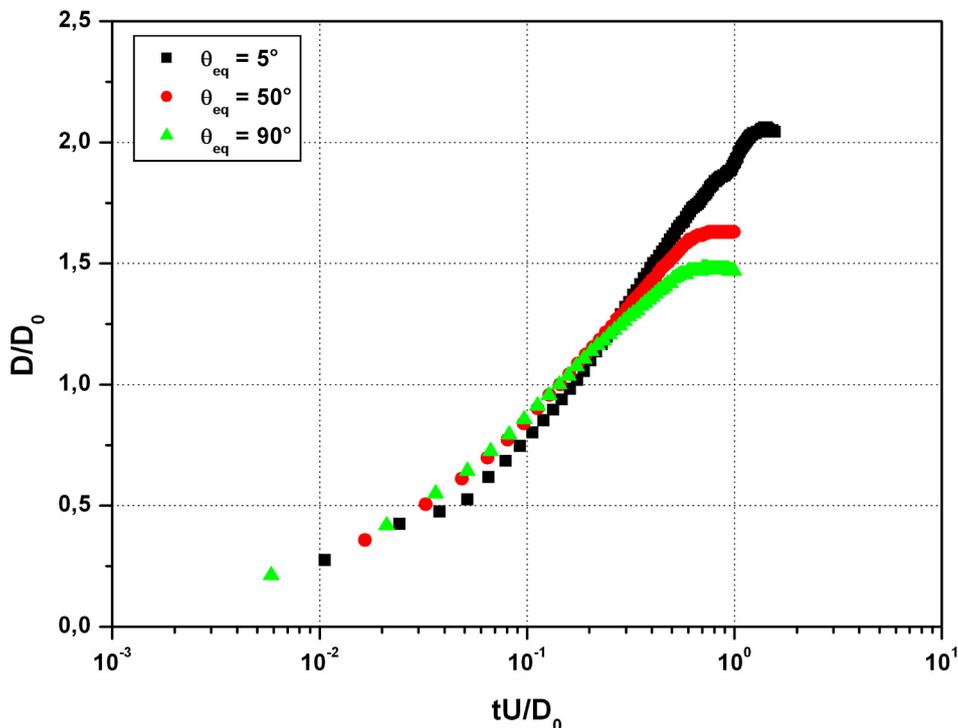


Figure III.13 : Influence de la mouillabilité sur l'évolution du diamètre de contact, Fluide : eau distillée,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $U = 0.35\text{m/s}$ .

Pour la première fois, l'effet de ce paramètre est mis en évidence dans la phase d'étalement sans modification de la surface d'impact. En effet, [Rioboo et al, 2002] modifient la surface d'impact et / ou le liquide (et donc la tension de surface) pour étudier l'influence de l'angle d'équilibre. Cependant, le nombre de Weber n'est pas conservé et l'état de surface des supports n'est pas identique. Dans notre cas l'utilisation des surfaces de silicium chimiquement traitées permet de résoudre ces problèmes et d'observer uniquement l'influence de l'angle d'équilibre (figure III.13). Son influence est loin d'être négligeable et c'est la première fois qu'une telle étude complète est effectuée.

Nous avons représenté sur la figure III.13 l'impact d'une goutte d'eau de 2.28mm de diamètre à  $U = 0.35\text{m/s}$ . Dans ce cas, le nombre de Reynolds est de 800 alors que le nombre de Weber vaut 4, ce qui implique que c'est la tension de surface qui contrôle l'étalement. Cette figure montre que plus la mouillabilité est importante et plus le diamètre maximum sera important et atteint plus tard. Pour une augmentation de  $85^\circ$  (comparaison des cas  $5^\circ$  et  $90^\circ$ ), le diamètre maximum rapporté au diamètre initial diminue de 2.06 à 1.48 et le temps auquel il est atteint passe de  $t^* = 1.4$  à  $t^* = 0.7$ . La variation de l'amplitude et du temps pour atteindre ce diamètre correspond respectivement à une diminution de 28% et 50%, ce qui est largement supérieur aux valeurs données par ailleurs ([Rioboo et al, 2002]). En utilisant un substrat avec un angle intermédiaire ( $50^\circ$ ), on constate que les variations de l'étalement maximum et du temps auquel il est atteint ne sont pas linéaires avec la variation de l'angle d'équilibre.

La courbure de la surface libre est l'élément déterminant dans la dissipation au niveau de la ligne de contact puisque seule la mouillabilité change (et donc l'angle dynamique, voir paragraphe correspondant). La comparaison des profils transitoires (figure III.14) montre que plus un substrat est non mouillant et plus l'angle de contact dynamique sera important. Notons également que la surface libre reste très déformée par l'onde de choc qui remonte vers le sommet de la goutte et que ces déformations sont d'autant plus fortes que la mouillabilité est faible ([Bayer & Megaridis, 2006]).

Sur ces profils (figure III.14), les mesures des angles d'avancée dynamique sont les suivantes :

- sur le substrat à  $5^\circ$ , l'angle au niveau de la ligne triple est de  $60^\circ$
- sur la plaque à  $88^\circ$ , l'angle est de  $115^\circ$
- sur la plaque non mouillante ( $\theta_{\text{éq}} = 180^\circ$ ), l'angle est de  $150^\circ$

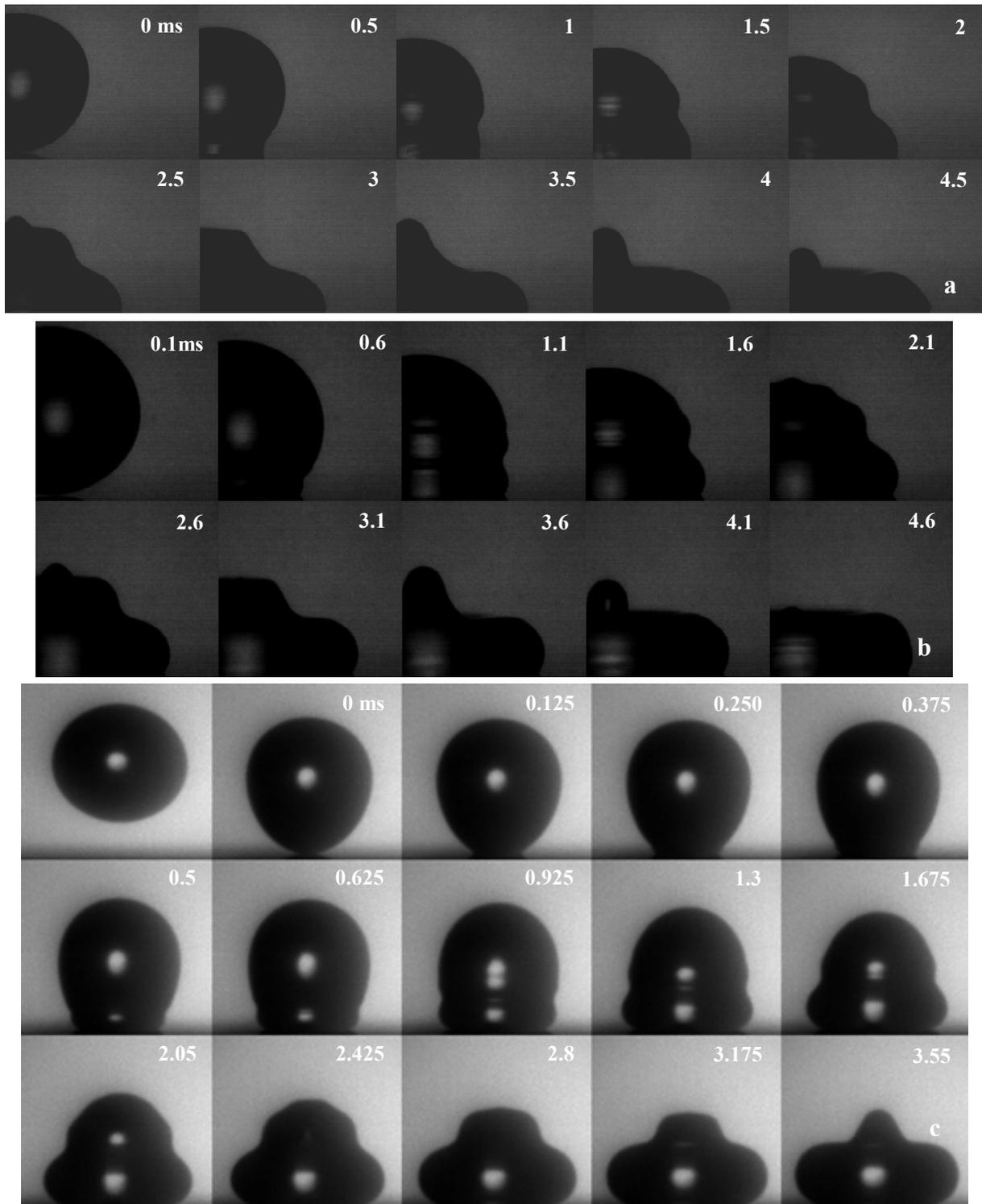
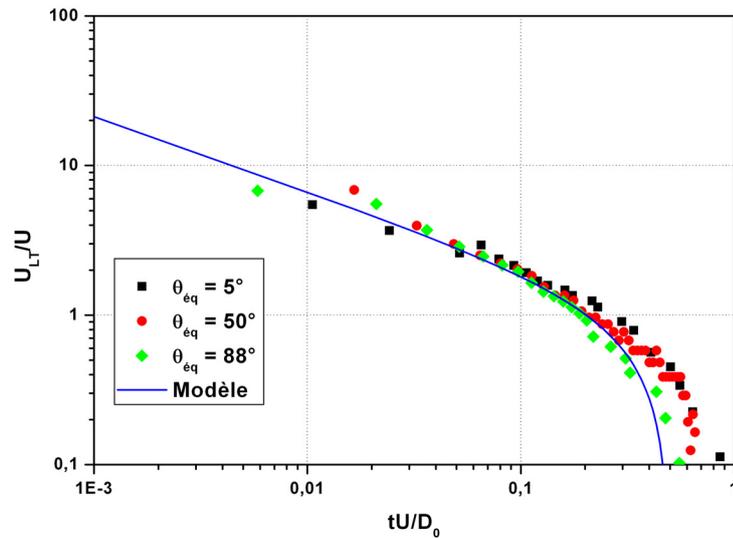


Figure III.14 : Développement de la lamelle lors de l'impact à  $U = 0.3 \text{ m/s}$  d'une goutte d'eau distillée sur une surface à (a)  $\theta_{\text{éq}} = 5^\circ$ , (b)  $\theta_{\text{éq}} = 88^\circ$  et (c)  $\theta_{\text{éq}} = 180^\circ$ .

Il faut noter que ces angles sont supérieurs aux angles d'avancée thermodynamique, particulièrement dans le cas du substrat très mouillant. Nous reviendrons sur ce point dans la suite.



**Figure III.15 : Influence de la mouillabilité de la surface sur la vitesse de la ligne de contact: fluide: eau distillée,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $U = 0.35\text{m/s}$ .**

En ce qui concerne la vitesse de la ligne triple, nous constatons une fois de plus qu'aux premiers instants elle est de l'ordre de 6 à 10 fois la vitesse d'impact (figure III.15). Il est important de remarquer la superposition quasi parfaite des points expérimentaux dans les premiers instants de l'impact, élément que nous avons déjà noté préalablement. La bonne adéquation du modèle de vitesse avec les mesures, et cela quelles que soient les conditions expérimentales, montre la pertinence de ce modèle (au moins dans le régime cinématique et sur une partie de la phase d'étalement). En extrapolant à partir de l'équation III.7, lorsque  $t^* \rightarrow 0$ , la vitesse de propagation du rayon de contact tend vers l'infini. Ce résultat est en accord avec ce qui est mathématiquement prévisible : le passage brusque, au point d'impact, d'un champ de vitesse purement vertical à un champ de vitesse radial.

### **Influence du diamètre initial : cas des microgouttes**

De nombreuses applications, notamment en biotechnologie ou en impression numérique, utilisent des gouttes dont le diamètre en vol est de l'ordre de quelques dizaines de micromètre. Malgré le nombre important de travaux menés sur l'impact de gouttes sur des substrats plans, aucune comparaison détaillée entre macrogouttes et microgouttes n'a été menée. Bien évidemment, les échelles de longueurs étant 3 ordres de grandeurs plus petit pour les microgouttes que pour les macrogouttes, les phénomènes ne sont plus à l'échelle de la

milliseconde mais de la microseconde. Le choix des échelles est, par conséquent, primordial mais ne diffère en rien du cas des macrogouttes. Les échelles de longueur et de temps restent respectivement  $D_0$  et  $\frac{D_0}{U}$  et les nombres sans dimensions sont le nombre de Weber et le nombre de Reynolds. Les hypothèses de la mécanique des fluides sont cependant respectées et le comportement des microgouttes est prédit comme identique à celui des macrogouttes. Toutefois, l'étude de l'évolution dynamique du diamètre de contact est difficile. Il convient de rappeler que les incertitudes sur les microgouttes sont relativement importantes pour une multitude de raisons telles que la méthode d'observation (pseudo cinématographique à déphasage contrôlé), l'éjection qui n'est pas parfaitement reproductible (quelques  $\mu\text{s}$  de décalage d'une expérience à l'autre), la taille du système à observer (de l'ordre de quelques dizaines de  $\mu\text{m}$ ), les vitesses de déplacements (plusieurs m/s) où la vitesse des phénomènes transitoires (à l'échelle de la microseconde). Dans le cas d'une microgoutte de  $50\mu\text{m}$  de diamètre qui impacte à  $5\text{m/s}$  sur une surface, le temps caractéristique de l'expérience est  $t_i = 10\mu\text{s}$ . Il paraît dès lors très difficile d'observer l'impact aux premiers instants et par conséquent le régime cinématique ne sera pas discuté séparément mais inclus dans le régime d'étalement. Cependant, en s'intéressant à la dynamique d'impact d'une microgoutte d'encre à base eau sur plusieurs types de surfaces, nous constatons que le diamètre de contact évolue également comme une fonction racine carré du temps (équation III.4) mais avec un coefficient d'ajustement  $\alpha$  deux fois plus petit puisque égal à  $0.675$  (figure III.16).

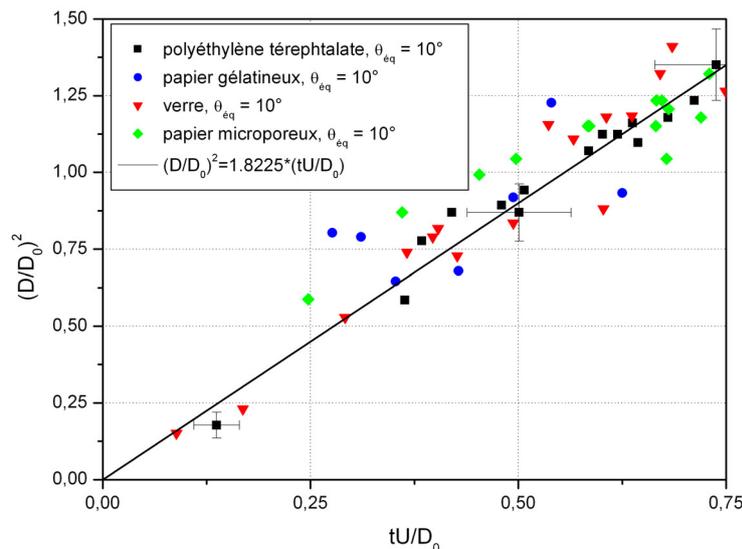


Figure III.16 : Évolution du diamètre de contact d'une microgoutte sur 4 substrats différents,  $D_0 = 65\mu\text{m}$ ,  $U = 1.15\text{m/s}$ .

De la même manière, une excellente adéquation entre les profils expérimentaux des macrogouttes et des microgouttes est observée. La figure III.17.a présente les images obtenues à partir du dispositif d'observation, qui réunit un flash lumineux en lumière blanche de 20ns de durée (ministrobokin) et la caméra rapide Phantom V7.0, présenté dans le chapitre II.

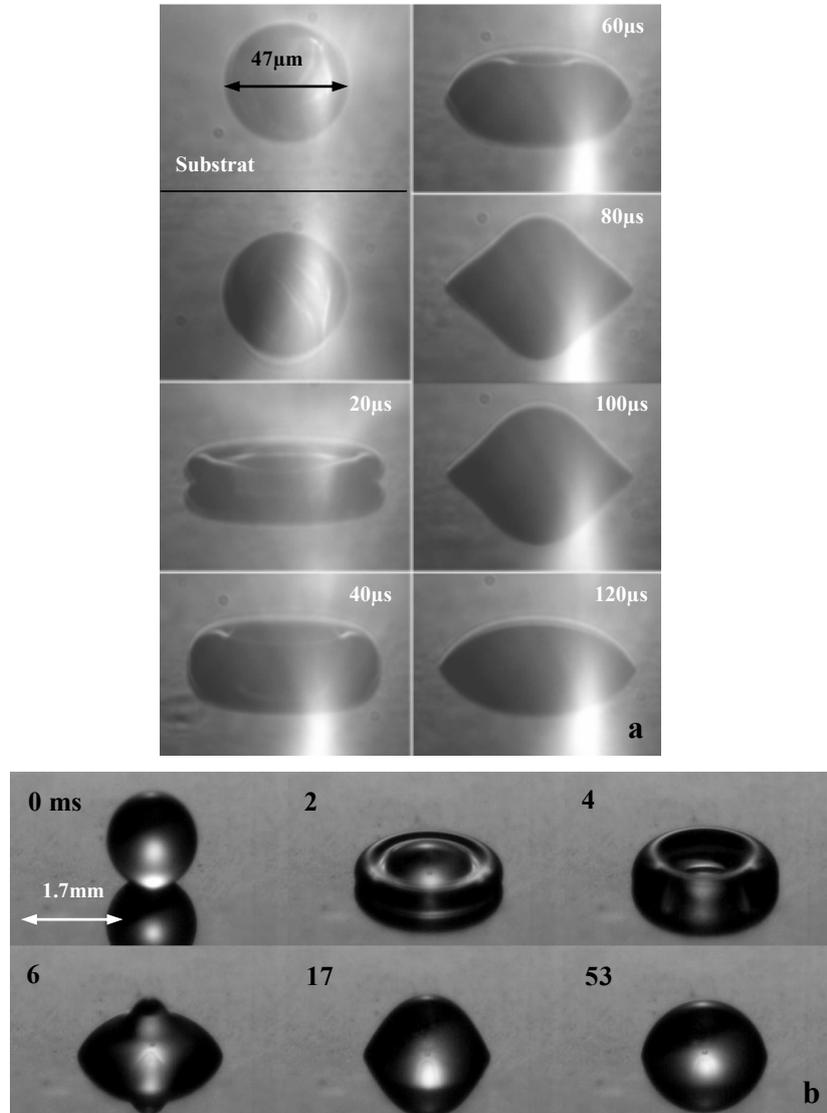


Figure III.17 : (a) Profils transitoires expérimentaux observés avec le dispositif d'illumination nanostrobokin, encre industrielle,  $\sigma = 33.2\text{mN/m}$ ,  $\mu = 3.2\text{ mPa.s}$ ,  $\rho = 996\text{ kg/m}^3$ ,  $U = 3\text{m/s}$ ,  $D_0 = 47\mu\text{m}$ ,  $We = 12.7$ ,  $Re = 44$ . (b) profils expérimentaux observés par cinématographie rapide (lumière continue),  $\sigma = 30\text{mN/m}$ ,  $\mu = 15\text{ mPa.s}$ ,  $\rho = 1100\text{ kg/m}^3$ ,  $U = 0.5\text{m/s}$ ,  $D_0 = 1.7\text{mm}$ ,  $We = 15.6$ ,  $Re = 62$ .

Ces profils, au déterminisme excellent, sont comparés à ceux obtenus par cinématographie rapide dans le cas de macrogouttes pour des nombres sans dimensions du même ordre. Nous observons dans les deux cas les profils précis avec notamment la présence d'un cratère au

centre de la goutte juste avant l'étalement maximum. Ces résultats montrent pour la première fois et très clairement que les mécanismes sont identiques pour des gouttes de diamètre micrométrique et millimétrique.

### **Phase intermédiaire**

Dans cette phase, il y a compétition entre les forces de tension de surface et de viscosité, et les forces d'inertie. Le diamètre de contact de la goutte sur le support ne change pas et elle passe de la forme d'un cylindre à celle d'une sphère tronquée, ce qui se traduit par une augmentation de la hauteur au centre de la goutte et l'apparition d'oscillations. Comme nous l'avons évoqué auparavant, une fois que la goutte arrive à son diamètre d'étalement maximum, elle peut se rétracter, si les conditions expérimentales (vitesses d'impact, mouillabilité, viscosité et tension de surface) le permettent.

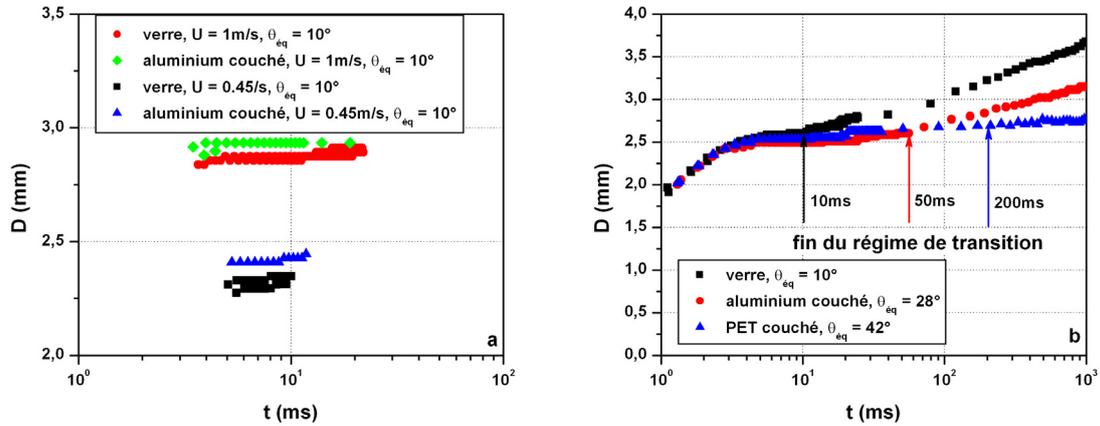
La goutte, sous sa forme de calotte sphérique, possède un certain nombre d'états métastables compris entre le diamètre d'avancée  $d_a$  et le diamètre de reculée  $d_r$ . Ils sont définis par l'équation II.21 en utilisant respectivement l'angle d'avancé  $\theta_a$  et l'angle de reculé  $\theta_r$  ([Rioboo et al, 2002 ; Rioboo, 2003]). Si le diamètre maximum est compris entre ces deux diamètres, la goutte n'évolue pas, s'il est inférieur à  $d_a$ , la goutte continue son étalement et s'il est supérieur à  $d_r$ , un démouillage apparaît.

### **Cas $\beta_{\max} < d_a$**

Cette configuration est principalement observable lorsque la vitesse d'impact n'est pas suffisante pour atteindre un diamètre maximum compris entre  $d_a$  et  $d_r$ . A la fin du régime de transition, la goutte n'est pas dans un état d'équilibre et seules les forces capillaires interviennent. Plus l'état transitoire sera éloigné de l'état final et plus ces forces interviendront fortement et rapidement pour forcer l'étalement de la goutte. La durée de ce régime est donc dépendante des paramètres d'étalement maximum, d'angle d'équilibre final et de viscosité du liquide. Ces aspects n'ont jamais été détaillés auparavant dans la littérature.

La différence  $d_r - \beta_{\max}$  (donc la différence  $\theta_{\text{éq}} - \theta_\beta$ ) est l'un des deux facteurs principaux qui contrôlent ce phénomène. Nous avons vu préalablement que l'étalement maximum est dépendant d'un ensemble de paramètre dont la mouillabilité et la vitesse d'impact font partie. Dans notre cas (figure III.18.a), l'augmentation de cette dernière d'un facteur 2 correspond à multiplier  $\beta_{\max}$  par un facteur 1.25. L'angle de contact  $\theta_\beta$  à la fin la phase de transition entre la

goutte, sous la forme d'une sphère tronquée, et le substrat passe alors de  $65^\circ$  pour  $U = 0.45\text{m/s}$  à  $38^\circ$  pour  $U = 1\text{m/s}$ . Cet angle est obtenu à partir de l'équation II.21, du volume initial et de diamètre de contact expérimental durant ce régime. Dans cette configuration, la durée totale du régime transitoire «  $t_{rt}$  » est multipliée par 4.



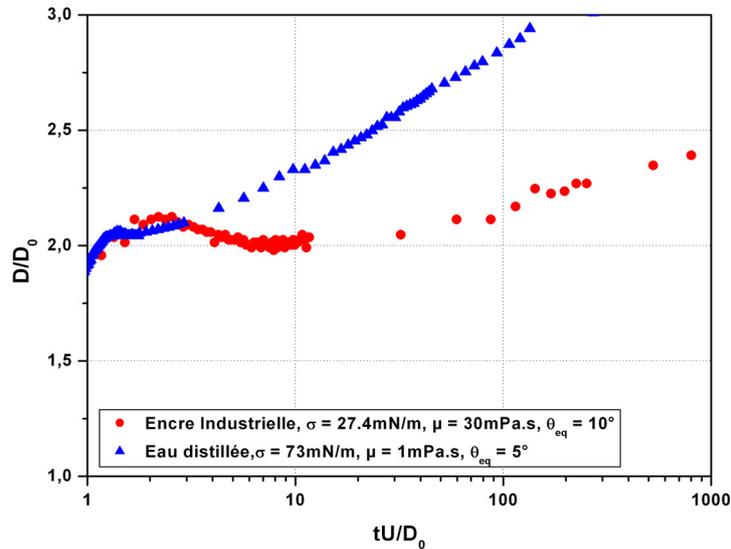
**Figure III.18 :** Effet sur la durée du régime de transition de (a) la vitesse d'impact et (b) l'angle d'équilibre ( $U = 0.6\text{m/s}$ ) lors de l'impact d'une goutte d'encre UV,  $D_0 = 1.5\text{mm}$ ,  $\sigma = 34\text{mN/m}$ ,  $\mu = 30\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1040\text{kg/m}^3$ .

Par ailleurs, pour un étalement maximum donné, plus la surface sera mouillante et plus la durée du régime de transition sera courte (figure III.18.b). Pour un écart d'angle d'équilibre d'un facteur 3 ( $10^\circ$  et  $28^\circ$ ), la durée est multipliée par 5.

Remarque : Sur la figure III.18.b, nous observons également que dans le cas où  $\beta_{max}$  est très proche de l'étalement final,  $t_{rt}$  est très important (multiplication par 20 pour le cas du polyéthylène téréphtalate par rapport au cas d'impact sur le verre). L'étalement maximum est dans ce cas suffisamment proche de «  $d_a$  » pour que la goutte se trouve dans un état quasi-métastable. La dernière barrière énergétique est franchie à l'aide d'un apport extérieur. Dans ce cas, il ne s'agit pas du régime de transition mais plutôt un état quasi final.

La viscosité intervient également sur la durée de ce régime. Sur deux surfaces de mouillabilité très proches ( $5^\circ$  et  $10^\circ$  respectivement) et à étalement maximum très proche, le régime transitoire dure environ 50 fois moins longtemps pour de l'eau distillée ( $\mu = 1\text{mPa.s}$ ) que pour une encre industrielle UV ( $\mu = 30\text{mPa.s}$ ) (figure III.19). Le diamètre reprend son étalement

avant même que le centre de la goutte ait terminé sa remontée. En opposition sur la surface industrielle, un léger démouillage est observé bien que la viscosité soit 30 fois supérieure.



**Figure III.19 :** Effet de la viscosité sur la durée du régime de transition à angle d'équilibre proche dans (●) le cas d'une encre industrielle ( $\mu = 30\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 27,4\text{mN/m}$ ) et (▲) d'une goutte d'eau distillée ( $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ).

Les différents paramètres influant de ce problème ont un effet non linéaire sur l'évolution de  $t_{rt}$ . D'un point de vue théorique, le problème peut être abordé de la manière suivante : la goutte commence à s'étaler de nouveau dès qu'elle est passée de la forme d'une crêpe à celle d'une sphère tronquée. Cela se traduit par une modification rapide de l'angle de contact au cours du temps. En utilisant la théorie de l'hydrodynamique, il est possible d'écrire :

$$U = \frac{dR}{dt} = \frac{\sigma}{6\mu l} \cdot (\theta^2 - \theta_{eq}^2) \theta \quad (\text{III.8})$$

où  $\theta$  est l'angle de contact au cours du temps. En dérivant par rapport au temps l'équation de volume ([Semal et al, 1999]), nous obtenons :

$$\frac{dR}{dt} = \frac{dR}{d\theta} \cdot \frac{d\theta}{dt} = - \frac{d\theta}{dt} \cdot \left( \frac{3V}{\pi} \right)^{\frac{1}{3}} \cdot \frac{[1 - \cos(\theta)]^2}{[2 - 3 \cos(\theta) + \cos^3(\theta)]^{\frac{4}{3}}} \quad (\text{III.9})$$

La solution de la forme suivante peut être proposée à cette équation différentielle :

$$\theta_{eq} = \theta_{\beta} \exp\left( \frac{-\alpha(\theta_{\beta} - \theta_{eq})t_{rt}}{\theta_{\beta} \tau} \right) \quad (\text{III.10})$$

avec  $\tau$  le temps de dissipation visqueuse égal à  $\tau = \frac{\rho D_0^2}{\mu}$  et  $\alpha$  un coefficient d'ajustement

linéaire avec l'angle  $\theta_\beta$  (angle de contact de la goutte à l'étalement maximum sous sa forme de sphère tronquée, obtenue à partir du diamètre maximum et de l'équation II.21).

Les résultats obtenus à partir de l'impact d'une goutte d'encre UV ( $\sigma = 34\text{mN/m}$ ,  $\rho = 1040\text{ kg/m}^3$ ,  $\theta_{\text{éq}} = 10^\circ$ ) sont donnés dans le tableau III.1 :

U (m/s)	$t_{\text{rt}}$ mesuré (ms)	$t_{\text{rt}}$ calculé (ms)
0.626	12	11.8
0.88	20	14.2

**Tableau III.1 : Comparaison entre durée calculée et mesurée pour le régime de transition.**

Les résultats calculés sont cohérents avec les valeurs mesurées mais lorsque la vitesse d'impact augmente, l'accord entre expérience et théorie diminue. De plus, la solution proposée ne tient aucun compte de la tension de surface du liquide, ni de l'angle d'équilibre. Cette solution simple donne cependant rapidement un ordre de grandeur du régime de transition et la résolution complète de l'équation différentielle permettrait sans doute de mieux prédire la durée de ce régime en tenant compte de l'ensemble des paramètres du problème.

### **Cas $\beta_{\text{max}} > d_r$**

Dans ce cas, le diamètre de contact va se réduire (démouillage) et la hauteur augmenter, immédiatement après l'étalement maximum. La vitesse à laquelle la goutte démouille ( $U_{\text{ret}}$ ) la surface est fonction de la vitesse d'impact. Plus elle est importante, plus la goutte excèdera le diamètre d'équilibre et plus  $U_{\text{ret}}$  sera grande (figure III.20). Une estimation de  $U_{\text{ret}}$  (par régression linéaire sur l'évolution du diamètre en fonction du temps) donne une vitesse « moyenne » de rétraction du rayon 4.8 fois supérieure pour une vitesse d'impact 3 fois plus grande dans le cas de l'impact d'une goutte d'eau distillée sur une surface à  $\theta_{\text{éq}} = 88^\circ$  ( $U_{\text{ret}}=0.04\text{m/s}$  pour  $U = 0.35\text{m/s}$  et  $U_{\text{ret}} = 0.2\text{m/s}$  pour  $U = 1\text{m/s}$ ). En considérant l'impact à  $0.3\text{m/s}$  sur une surface à  $108^\circ$  d'angle de contact avec l'eau distillée, la vitesse de rétraction est de  $0.05\text{m/s}$ . Ces valeurs sont surprenantes en considérant les résultats de [Rioboo, 2003] où pour une vitesse d'impact 3 fois plus importante, la vitesse de rétraction est multipliée par

2. Il faut noter que dans les expériences de [Rioboo, 2003], l'angle de reculée est de  $95^\circ$ , la surface est de la cire rugueuse et le diamètre de la goutte n'est pas conservé d'une expérience à l'autre (2.75mm et 3.17mm). En comparaison, nos essais considèrent des gouttes 20% plus petites environ (par rapport à 2.75mm) et la surface utilisée est à la fois non rugueuse et a un angle de contact de reculée de  $75^\circ$  avec l'eau distillée. Un angle de contact de reculée supérieur devrait plutôt augmenter la vitesse de rétraction. Ces observations montrent l'influence du diamètre en vol de la goutte, de l'angle de reculée et de la rugosité de la surface (possibilité d'accroche de la ligne triple sur les rugosités).

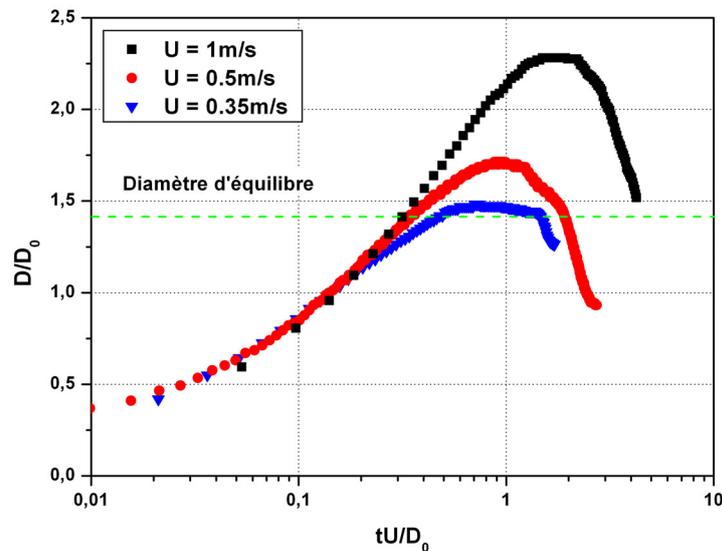


Figure III.20 : Rétraction du diamètre pour une goutte d'eau distillée impact sur un substrat de type 7,  $\theta_{\text{éq.}} = 88^\circ$ ,  $\mu = 1 \text{ mPa.s}$ ,  $\sigma = 73 \text{ mN/m}$ ,  $\rho = 1000 \text{ kg/m}^3$ .

Une approche différente, le modèle de [Bartolo et al, 2005], détermine le taux de rétraction maximum  $U_{\text{ret}}/R_{\text{max}}$  et permet de faire correspondre les différents résultats. En effet, les auteurs précisent que la vitesse de rétraction n'est pas une constante du temps (variation non linéaire du diamètre), ce qui est en accord avec les cassures observables sur la figure III.21.a. La mesure d'une vitesse moyenne n'est pas nécessairement une bonne représentation du mécanisme de démoillage.

En respectant les hypothèses de ce modèle, la vitesse de rétraction maximale rapportée au rayon maximum est indépendante de la vitesse d'impact : le cas  $U = 0.35 \text{ m/s}$  ne se superpose pas avec les courbes à  $U = 0.5$  et  $U = 1 \text{ m/s}$  mais ne respecte pas la condition minimale requise définie par [Bartolo et al, 2005] pour le nombre de Weber. Dans le cas d'une goutte d'eau

distillée impactant à 0.5 et 1m/s sur une surface de type 7 ( $\theta_f = 77^\circ$ ), le rapport entre la vitesse de rétraction maximale et le rayon maximum montre une bonne adéquation entre résultats expérimentaux et le modèle proposé par [Bartolo et al, 2005]. Nous obtenons respectivement, d'un point de vue expérimental et théorique,  $U_{ret}/R_{max} = 0.0925$  et  $U_{ret}/R_{max} = 0.1208$  à  $U = 0.5\text{m/s}$  et  $U_{ret}/R_{max} = 0.0856$  et  $U_{ret}/R_{max} = 0.1132$  à  $U = 1\text{m/s}$ . Pour chacun des cas, cela correspond à une erreur de 24%. En modifiant le préfacteur de 0.6, donné par les auteurs, par un coefficient égal à 0.46, nos valeurs expérimentales et les prévisions théoriques correspondent. Pour un facteur 2 sur la vitesse d'impact, le taux d'étalement maximum ( $U_{ret}/R_{max}$ ) reste le même, ce qui confirme le modèle proposé et valide l'hypothèse selon laquelle la vitesse d'impact n'a pas d'influence. En revanche, ce modèle ne permet pas d'obtenir une évolution dynamique de la vitesse ni la durée sur laquelle va intervenir la rétraction. De plus, l'écart d'environ 25% entre le coefficient d'ajustement, donné par [Bartolo et al, 2005], et celui utilisé ici (respectivement 0.6 et 0.46), dans le cas d'une goutte d'eau distillée, montre que la surface joue également un rôle. Les auteurs utilisent une surface de paraffine ou de polycarbonate alors que nous utilisons des substrats de silicium. Il faut remarquer que sur le polycarbonate, l'angle de recul est de  $60^\circ$  et le préfacteur est également de 0.6. Cela semble indiquer que ce n'est pas la mouillabilité de la surface qui modifie ce coefficient mais peut être l'état de surface ou l'interaction solide / liquide.

Remarque : L'écart obtenu sur le coefficient d'ajustement peut être lié à la méthode de mesure expérimentale de la vitesse de rétraction maximale. La détermination de cette vitesse pour nos expériences s'effectue de la manière suivante. Le diamètre conserve une valeur constante sur un temps puis il a un changement brusque, ce qui induit beaucoup de variations dans les valeurs de  $U_{ret}$ . Ce comportement est lié au grand nombre d'images acquises avec une fréquence importante. L'interface se déplace mais la vitesse de rétraction n'est pas suffisante, compte tenu de la définition de la caméra et de la vitesse d'acquisition, pour observer ce déplacement. Visuellement, l'interface ne se déplace pas sur l'image alors que physiquement ce mouvement est bien présent. Nous effectuons alors une régression polynomiale d'ordre 3 sur l'évolution global du diamètre pour tenir compte de ses diverses variations et l'équation obtenue est dérivée par rapport au temps pour avoir la vitesse. L'utilisation d'un polynôme de degré 2 ne convient pas et induit un comportement linéaire de la vitesse de rétraction. Elle augmente (en valeur absolue) au cours du temps et atteint sa valeur maximale à l'instant où le diamètre a fini sa rétraction. Ceci est antagoniste avec le fait que la goutte stoppe sa rétraction à l'étalement maximum et montre que cette approche n'est pas correcte.

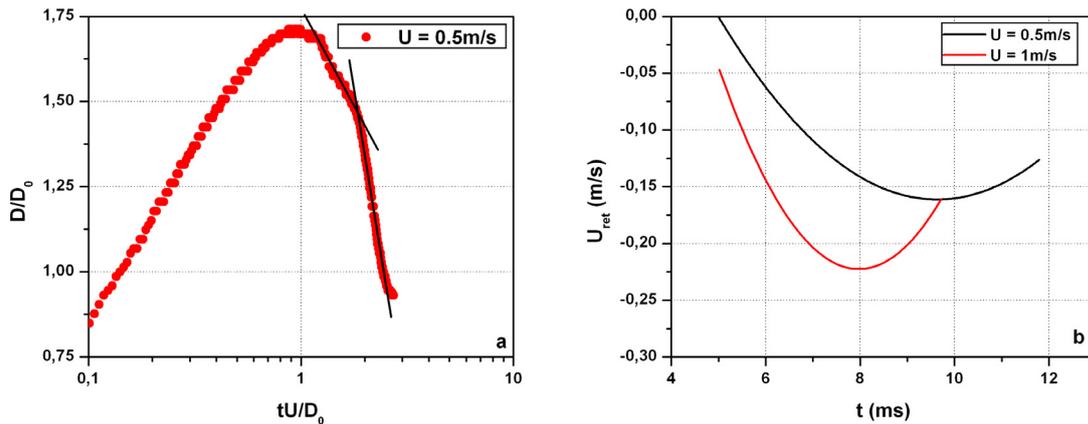


Figure III.21: Evolution au cours du temps de (a) la rétraction du diamètre de contact et (b) de la vitesse de démouillage pour deux vitesses d'impact dans le cas d'une goutte d'eau distillée.

Des essais complémentaires sur des surfaces de mouillabilité différentes et avec des liquides différents doivent être effectués pour « cartographier » complètement, d'un point de vue expérimental, l'influence des paramètres de vitesse d'impact, de mouillabilité et de rugosité (taille, forme et espacement).

### Oscillations de la hauteur

Dans le régime de transition, la goutte passe de la forme d'un cylindre à celle d'une sphère tronquée. Son sommet augmente immédiatement après l'étalement maximum et des oscillations qui ne sont dues qu'aux forces physico-chimiques sont observables. L'amplitude de ces oscillations et leur nombre est réduit par effet visqueux dans le liquide. La vitesse d'impact n'a pas d'influence sur la fréquence des oscillations puisque la ligne triple ne se déplace plus au moment de ces oscillations. De la même manière, [Michel et al, 2005] précisent que la viscosité du liquide (et par suite le nombre de Reynolds) ne modifie pas la valeur de cette fréquence, néanmoins l'ensemble des expériences présentées ne concernent que l'impact sur des surfaces dont les angles d'équilibre sont supérieurs à  $60^\circ$ . La fréquence est due à la tension de surface du liquide mais il faut remarquer que l'interaction avec le support intervient fortement (figure III.22). Il est possible de construire une fréquence à partir des grandeurs physico-chimiques, ce qui correspond à la fréquence d'oscillation d'une goutte dans l'air ([Clift et al, 1978]). L'inverse de cette fréquence correspond également au temps caractéristique du problème (équation III.11).

$$f = \sqrt{\frac{\sigma}{\rho D_0^3}} \quad (\text{III.11})$$

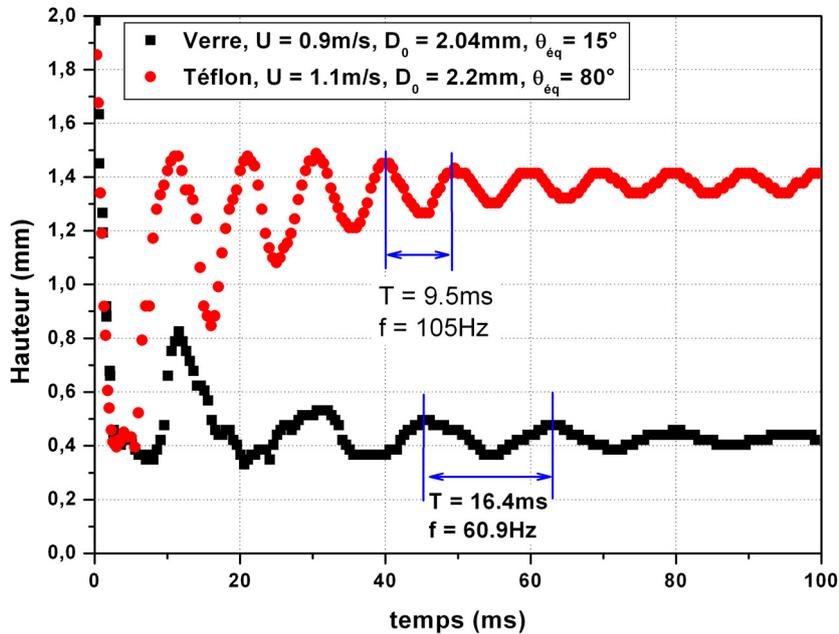


Figure III.22 : Oscillations de la hauteur d'une goutte d'eau distillée sur une surface (●) de téflon et (■) de verre.

Pour deux surfaces de mouillabilité différentes,  $15^\circ$  et  $80^\circ$ , la fréquence d'oscillation expérimentale est mesurée respectivement à 61Hz et 105Hz. Toutefois, pour les deux cas de la figure III.22, le liquide est de l'eau distillée et la fréquence théorique calculée à partir de l'équation III.11 est de 90Hz. Ces expériences montrent donc l'influence de la mouillabilité de la surface sur la fréquence d'oscillation. Afin de tenir compte de cet aspect, un coefficient variable dépendant de l'interaction solide / liquide est utilisé. La fréquence d'oscillation peut donc s'écrire sous la forme suivante :

$$f = g(\theta_{\text{éq}}) \cdot \sqrt{\frac{\sigma}{\rho D_0^3}} \quad (\text{III.12})$$

La figure III.23.a regroupe les mesures expérimentales de la fréquence d'oscillation lors de l'impact de gouttes d'eau distillée (pures ou avec 59% de glycérol) sur des substrats modèles ainsi que des gouttes d'encres industrielles UV sur des supports industriels (tableaux II.1 et II.2). L'incertitude relative des mesures est calculée à 7% au maximum. Pour les

mouillabilités inférieures à  $60^\circ$ , la fréquence augmente linéairement avec  $\theta_{\text{éq}}$ , tout comme le coefficient d'ajustement.

$$f = 1.0875 \cdot \theta_{\text{éq}} + 47.64$$

$$g(\theta_{\text{éq}}) = 0.014 \cdot \theta_{\text{éq}} + 0.4657 \quad (\text{III.13})$$

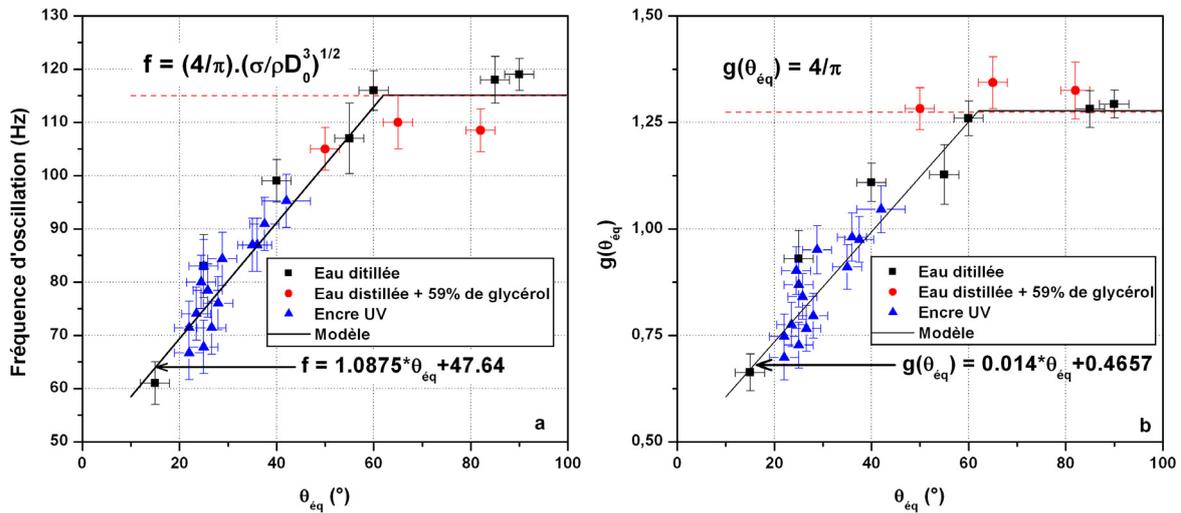


Figure III.23 : Evolution de (a) la fréquence d'oscillation et (b) du coefficient  $g(\theta_{\text{éq}})$  en fonction de la mouillabilité de la surface d'impact et pour différents fluides, (■) eau distillée,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.2\text{mm}$ , (●) eau distillée + 59% de glycérol,  $\mu = 9.6\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 68\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.06\text{mm}$ , (▲) encre UV,  $\mu = 30\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 30\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 1.47\text{mm}$ .

A partir de  $60^\circ$ , la fréquence d'oscillation devient constante à  $g(\theta_{\text{éq}}) = 4/\pi$  (figure III.23.b), ce qui correspond également au coefficient d'ajustement proposé par [Fukai et al, 1993] pour estimer cette fréquence d'oscillation. Le coefficient  $g(\theta_{\text{éq}})$  est uniquement dépendant de la mouillabilité de la surface et une loi empirique linéaire d'évolution est proposée avec un coefficient directeur de 0.014 (équation III.13).

Un décalage entre les fréquences maximales d'oscillations entre le cas de l'eau distillée et celui de l'eau distillée + 59% de glycérol est noté sur les supports à fort angle de contact (figure III.23.a). Cet écart est cohérent avec le fait que la tension de surface dans le second cas est plus basse, ce qui se traduit par une fréquence maximale inférieure.

A titre de vérification, nous avons appliqué cette méthode à un fluide parfaitement caractérisé pour retrouver sa tension de surface. Pour cela, nous avons réalisé une mesure de fréquence d'oscillation d'une goutte d'éthylène glycol de diamètre initial 1.84 mm, de masse volumique  $1078 \text{ kg/m}^3$ , sur une surface à  $\theta_{\text{éq}} = 90^\circ$ , et avec un coefficient d'ajustement  $g(\theta_{\text{éq}}) = 4/\pi$ . La

fréquence expérimentale est de 109.6Hz ce qui donne une tension de surface calculée de  $\sigma_{cal} = 49.75 \pm 2.5 \text{ mN/m}$ . La valeur tabulée est de 48 mN/m et une mesure de vérification de la tension de surface du liquide par la méthode « Pression Maximum de Bulle » donne 48.9mN/m, soit un écart entre valeur calculée et valeur tabulée de 3.65%.

La mesure de la fréquence d'oscillation est une méthode simple pour obtenir la tension de surface d'un fluide. L'ensemble de nos mesures se limite à des liquides avec des tensions de surfaces statiques mais cette méthode est relativement prometteuse (en complément des autres) pour la mesure de la tension de surface dynamique sur des temps courts. Les oscillations de la goutte sont mesurables au bout de quelques millisecondes dans le cas des macrogouttes et la seule inconnue est le coefficient d'ajustement. Il suffit de considérer une surface très hydrophobe pour s'assurer que la valeur de  $g(\theta_{\text{éq}})$  est proche de  $4/\pi$  et suivre la variation de la fréquence (donc de  $\sigma$ ) au cours du temps.

Remarque : L'hystérésis de l'angle de contact intervient probablement sur la fréquence d'oscillation du fait des forces qui s'appliquent au niveau de la ligne de contact. L'ensemble des points reportés sur les différentes courbes correspond aux angles d'équilibre mesurés et non aux angles à l'équilibre d'un point de vue thermodynamique. Pour améliorer les mesures, il suffit de s'assurer que cet angle se trouve à l'équilibre en utilisant un système d'excitation extérieure, comme un dispositif de haut parleur par exemple ([Vadillo et al, 2006]).

### **Régime capillaire et régime de relaxation**

Le régime dit capillaire correspond à la dernière phase de l'étalement de la goutte qui se trouve dès lors sous la forme d'une sphère tronquée. Ce régime commence à la fin de la phase de transition et dure jusqu'à ce que la goutte atteigne son diamètre final. Dans le cas d'un substrat partiellement mouillant, ce diamètre est défini par l'équation II.21 avec  $\theta = \theta_{\text{éq}}$ . Pour un support complètement mouillant, l'étalement prendra fin lorsque le liquide formera une couche mono moléculaire à sa surface (pourvu que la taille de la surface soit suffisamment importante devant le volume de fluide). C'est uniquement l'interaction liquide / solide qui contrôle cette dernière phase (pas d'effet des phases initiales) par le biais de la tension de surface, qui force l'étalement de la goutte, et la viscosité, qui s'y oppose.

Comme nous l'avons largement montré dans ce chapitre, la présence d'une vitesse initiale lors de l'étalement d'une goutte de liquide sur une surface a une influence forte sur le l'évolution

du diamètre de contact au cours du temps, d'où notre allusion dans le début de ce chapitre à une « mémoire » de la goutte. Toutefois, lorsque cette vitesse initiale n'est pas suffisante pour atteindre le diamètre final immédiatement après la phase d'étalement, la goutte poursuit son étalement sous l'effet des forces capillaires. Le déplacement de la ligne de contact est stoppé à la fin du régime d'étalement, aussi la vitesse d'impact n'influence plus, a priori, l'évolution du diamètre de contact au cours du temps dans ce régime ; les lois utilisées dans le cas du dépôt sont alors supposées valables dans cas de l'impact. La figure III.24 ci-dessous présente le cas de l'impact à  $U = 0.3\text{m/s}$  d'une goutte d'eau distillée de  $2.28\text{mm}$  sur une surface de silicium de type 1 ( $\theta_{\text{eq}} = 5^\circ$ ). L'évolution de type puissance 1/10 ([De Gennes, 1985]) reste valable, ainsi que la valeur du coefficient d'ajustement. Dans ce cas également, la valeur de  $\alpha$  reste proche de celle obtenue dans le cas du dépôt. Précisons que cela reste également vrai pour le cas de l'impact sur les autres surfaces mouillantes que nous avons utilisées (verre et l'aluminium couché notamment).

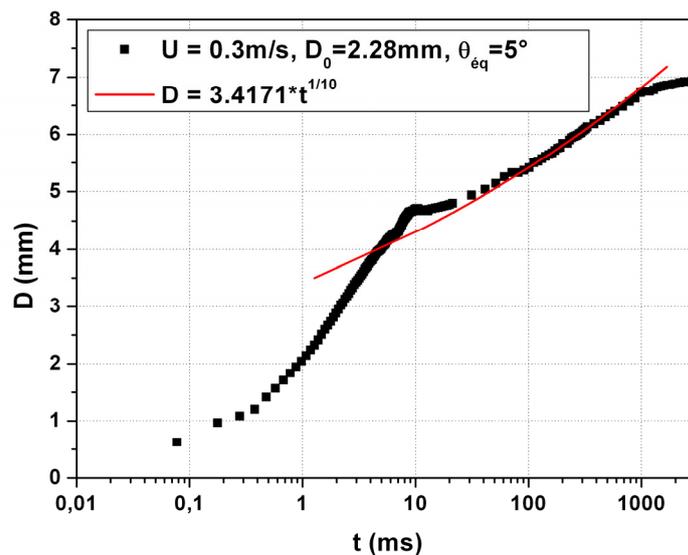


Figure III.24 : Étalement capillaire d'une goutte d'eau distillée sur une surface de type 1,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $We = 2.8$ ,  $Re = 684$ .

Remarque : A la fin de l'étalement, lorsque la goutte a quasiment atteint son état final, les mesures expérimentales s'éloignent de la courbe théorique. Précisons que cet effet apparaît dès lors que la différence  $\theta_{\text{eq}} - \theta_d \approx 5^\circ$ . De la même façon, et contrairement à ce qui a été défini pour le régime de transition, le diamètre de contact évolue légèrement avant de suivre la variation temporelle en puissance 1/10 et donc d'être réellement dans le régime capillaire.

Les mesures de la durée du régime de transition peuvent être réajustées ou il convient de considérer un régime intermédiaire entre la phase de transition et la partie capillaire. Toutefois, cela n'a pas d'effet important sur le comportement global de l'étalement.

## Mouillabilité forte

### Effet de la vitesse et de la viscosité

Sachant que l'ensemble des configurations présentées ici ne considèrent que le cas de surfaces partiellement mouillantes, l'argumentation selon laquelle la vitesse d'impact ne modifie pas l'évolution du diamètre de contact durant la phase capillaire est restreinte au cas où l'étalement maximum est suffisamment éloigné du diamètre final. Dans ces conditions, et en considérant un système fortement mouillant ( $\theta_{\text{eq}} = 10^\circ$  environ), la vitesse d'impact n'intervient pas. La figure III.25 ci-dessous permet d'illustrer cette affirmation sur le cas de l'impact d'une goutte d'encre sur une surface fortement mouillante et pour 3 vitesses d'impacts différentes (respectivement 0.45, 0.63 et 1 m/s). Par ailleurs, plus  $\beta_{\text{max}}$  est petit et plus la durée du régime capillaire est élevée (et inversement pour le régime de transition) mais sans pour autant que cela ne modifie la valeur du coefficient d'ajustement  $\alpha$  ou la valeur de  $n$ .

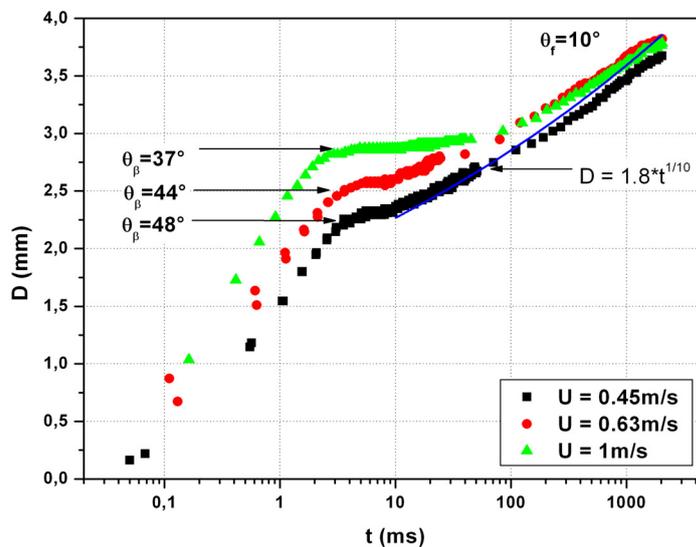


Figure III.25 : Étalement capillaire pour une goutte d'encre UV industrielle sur du verre pour 3 vitesses différentes,  $D_0 = 1.49\text{mm}$ ,  $\mu = 30\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 34\text{mN/m}$ .

Pour un même fluide, sur une même surface mais à des vitesses différentes, les courbes se rejoignent durant le régime d'étalement capillaire (en représentation dimensionnelle pour le temps ou en représentation sans dimension mais avec l'échelle de temps physico-chimique). Nous montrons sur la figure III.25 que le diamètre atteint en temps final est le même quelqu'en ait été le chemin initial.

La viscosité du liquide ralentie l'extension du diamètre mais ne modifie en rien le type d'étalement. Pour le cas d'un fluide à  $\mu = 30\text{mPa.s}$  en comparaison avec de l'eau distillée (soit un facteur 30 avec sur la valeur de  $\mu$ ),  $\alpha$  est environ divisé par 2 (3.4 à 1.8).

### Effet du diamètre initial

Sur la figure III.26 est représenté l'étalement dans la phase capillaire de microgouttes et de macrogouttes. Les expériences correspondent à l'impact de microgouttes d'une encre industrielle sur différentes surfaces ( $D_0 = 36\mu\text{m}$ ,  $\mu = 10\text{mPa.s}$  et  $\sigma = 30\text{mN/m}$ ) et du n-Tetradecane sur du silicium à trois vitesses différentes (0.89, 1.67 et 2.38m/s) pour les macrogouttes ([Park et al, 2002] ;  $D_0 = 2\text{mm}$ ,  $\mu = 2\text{mPa.s}$  et  $\sigma = 26\text{mN/m}$ ).

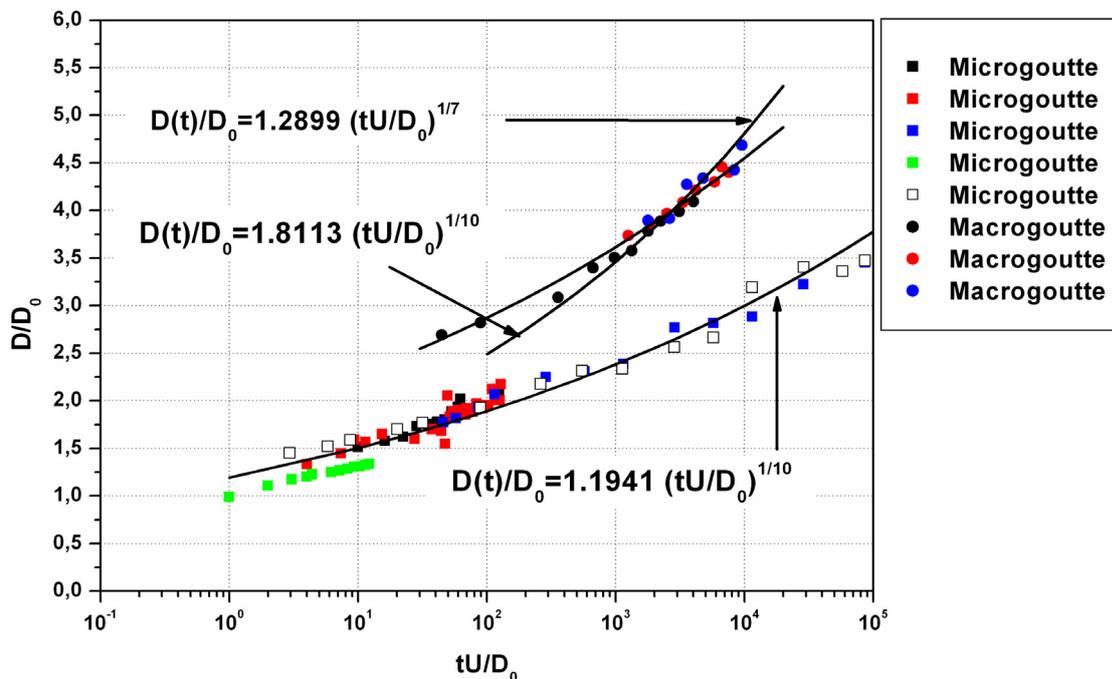


Figure III.26 : Régime capillaire pour des microgouttes (□, ■, ■, ■, ■) et des macrogouttes (●, ●, ●) et loi d'évolution associée.

L'angle que forme chacun de ces fluides avec la surface sur laquelle il s'étale est faible ( $<10^\circ$ ). Remarquons que les deux modèles (puissance 1/7 ou 1/10) conviennent.

Les microgouttes s'étalent avec une puissance en 1/10 et les macrogouttes avec une puissance  $n = 1/7$  ou  $n = 1/10$ . Cela s'explique par le fait que l'étalement sur les macrogouttes n'est pas suffisamment avancé pour pouvoir distinguer l'un des comportements plutôt que l'autre. Cet écart de puissance s'explique simplement par le fait que les macrogouttes ne font que commencer leur étalement alors que les microgouttes le terminent. En réfléchissant en ordre de grandeur, les microgouttes s'étalent sur 1 seconde, soit 6 ordres de grandeurs en temps (à supposer que le plus petit temps soit la microseconde), alors que les macrogouttes de n-Tetradecane s'étalent seulement sur 3 ordres de grandeurs. Ce comportement global est en adéquation avec [De Ruijter et al, 2000] où les auteurs précisent que les deux tendances d'étalement se succèdent. L'étalement, dans la phase capillaire et pour des angles d'équilibre inférieurs à  $10^\circ$ , est donc identique à celui du dépôt. Enfin, en reprenant le modèle donné dans [Middleman, 1995], l'évolution du diamètre de contact peut être décrit, dans le cas mouillant, par :

$$D(t) = 2C \left( \frac{\pi \sigma D_0^9}{6\mu} \right)^{1/10} t^{1/10} \quad (\text{III.15})$$

avec  $C = 0.94$ . Cependant, à chaque expérience correspond un coefficient différent. Pour l'eau distillée,  $C = 1.35$  alors que pour l'encre industrielle, de viscosité supérieure,  $C = 1.08$ . En conséquence, si la forme  $D \approx \alpha t^{1/10}$  reste valable, un travail sur la valeur de « C » en fonction des caractéristiques du liquide et de son interaction avec le support doit être effectué pour fournir des résultats tabulés pour une application industrielle.

### Mouillabilité partielle

Dans la majorité des cas que nous abordons ici, les substrats sont partiellement mouillables ( $\theta_{\text{eq}} > 10^\circ$ ). Le substrat a une influence qui se traduit par la réduction de la valeur de la puissance  $n$ . Comme on pouvait s'y attendre aux vues des résultats dans le cas du dépôt, l'effet de la mouillabilité de la surface est également observable dans le cas de l'impact de goutte. Une fois encore, la variation du diamètre de contact comme une fonction puissance du temps reste vraie mais avec une puissance variable entre 0 et 1/10 en fonction de l'angle d'équilibre.

Dans le cas de l'impact sur un substrat avec un angle de contact final de  $28^\circ$ ,  $\alpha = 2.11$  et  $n = 0.0575$  (figure III.27). Nous obtenons une puissance proche de celle mesurée dans le cas du dépôt sur une surface de mouillabilité similaire. La mouillabilité de la surface a donc un effet important sur, à la fois, le coefficient d'ajustement et la puissance de cette loi.

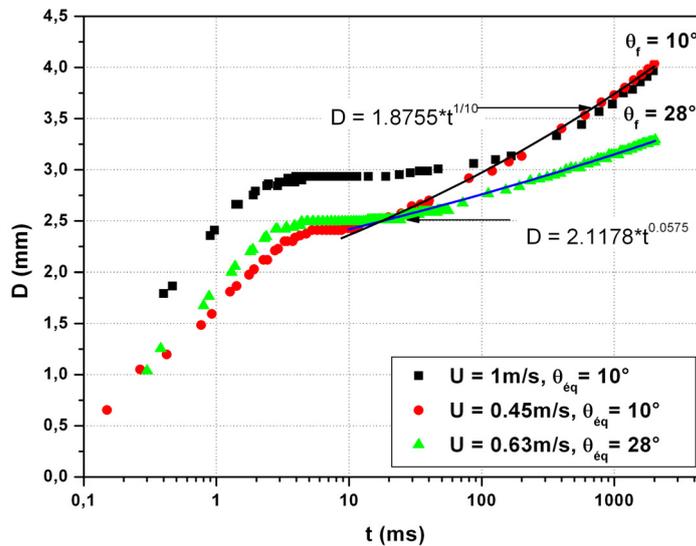


Figure III.27 : Étalement capillaire d'une goutte d'encre UV industrielle sur deux surfaces d'aluminium de couchage différents,  $D_0 = 1.49\text{mm}$ ,  $\mu = 30\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 34\text{mN/m}$ .

Conclusion : Pour l'ensemble des mouillabilités présentées ici, une corrélation importante pour l'évolution du diamètre de contact est obtenue entre le cas du dépôt et l'évolution dans la phase capillaire dans le cas de l'impact. Les hypothèses initiales sont vérifiées néanmoins il reste à étudier l'évolution de la valeur de la puissance « n » en fonction de  $\theta_{\text{éq}}$ . Pour se faire, le cas du dépôt est suffisant.

### Régime de relaxation

Le régime capillaire est toujours suivi d'une phase de relaxation lorsque la surface présente une mouillabilité partielle ([De Ruijter et al, 1999]), même forte (figure III.27). On observe également ce régime lorsque la vitesse d'impact est suffisante pour que  $\beta_{\text{max}}$  soit très proche du diamètre d'équilibre final  $d_f$ . La figure III.28 ci-dessous présente le régime de relaxation dans le cas de l'impact d'une goutte d'eau distillée sur une surface de type 1 ( $\theta_{\text{éq}} = 5^\circ$ ) et celui d'une goutte d'encre industrielle UV sur une surface d'aluminium couchée ( $\theta_{\text{éq}} = 30^\circ$ ). Sur

cette figure, on observe clairement la présence d'une phase très différente du régime capillaire et qui permet d'atteindre l'état d'équilibre final. [De Ruijter et al, 1999] proposent un comportement de type exponentielle pour le diamètre dans ce régime (équation III.16). Dans ce modèle, le rayon de contact s'exprime comme suit :

$$R(t) = R_{\text{éq}} - \delta R(t) \tag{III.16}$$

avec  $\delta R(t) = \exp\left(-\frac{t}{T}\right)$  et  $T = \frac{\mu R_{\text{éq}}}{3\sigma\theta_{\text{éq}}} \left[ \delta + \frac{8 \ln\left(\frac{3V}{\pi a^3 \theta_{\text{éq}}}\right)}{3\theta_{\text{éq}}}\right]$  et où  $a$  et  $\delta$  sont des coefficients

d'ajustements variables en fonction de l'approche (hydrodynamique ou moléculaire).

Sur les deux exemples présentés ici, nous obtenons, en considérant  $T$  comme un paramètre d'ajustement,  $T = 420$  (figure III.28). Notons que les courbes se superposent pour ces deux cas précis malgré des conditions de mouillage ( $\theta_{\text{éq}} = 5^\circ$  et  $30^\circ$  respectivement) et propriétés physico-chimiques pour les deux liquides différentes ( $\sigma = 73\text{mN/m}$  et  $\mu = 1\text{mPa.s}$  pour le cas de l'eau distillée et  $\sigma = 30\text{mN/m}$  et  $\mu = 30\text{mPa.s}$  pour l'encre industrielle). Cela indique que le régime de relaxation est indépendant de ces paramètres.

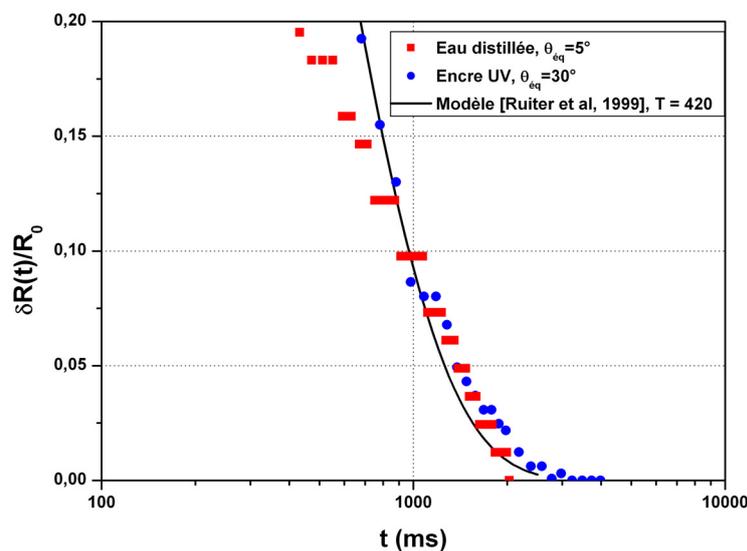


Figure III.28 : Phase de relaxation lors de l'étalement d'une goutte d'encre UV sur un substrat industriel partiellement mouillant  $\theta_{\text{éq}} = 30^\circ$  (bleu) et d'une goutte d'eau distillée sur un substrat très mouillant  $\theta_{\text{éq}} = 5^\circ$  (rouge).

Ces résultats confirment le modèle de [Ruijter et al, 1999] mais pour des angles d'équilibre largement supérieurs à la valeur de  $0.1^\circ$  proposée dans leur travaux.

Remarque : Le cas des microgouttes n'est pas abordé ici. Le comportement est identique à celui des macrogouttes pour des conditions de mouillabilité identiques et des résultats similaires sont obtenus.

### **Angle de contact dynamique**

Le caractère transitoire rapide et les fortes déformations de l'interface au niveau de la ligne triple rendent difficiles les observations et les mesures de l'angle de contact dynamique  $\theta_d$ . Toutefois, les caméras disponibles à l'heure actuelle sont de plus en plus performantes et permettent l'enregistrement d'un grand nombre d'images, à la fois avec une fréquence importante et un temps d'acquisition toujours plus court. L'angle dynamique devient mesurable à une échelle macrométrique, mais avec de fortes incertitudes. Par conséquent, nous n'argumenterons pas sur les lois à l'échelle micrométrique, puisque aucune mesure n'est possible, et nos investigations resteront focalisées sur les mesures expérimentales de l'angle macroscopique.

### **Comportement global**

Il est important de faire remarquer ici que l'angle de contact dynamique ne suit pas une loi simple et que l'ensemble des paramètres régissant le phénomène d'impact entrent en jeu. Si nous suivons l'évolution de cet angle au cours du temps (figure III.29), une décroissance rapide est observée dans les premiers instants ( $t < 1\text{ms}$ ) et est immédiatement suivie d'une phase où l'angle évolue peu ou pas du tout ( $t < 4\text{ms}$ ). A la suite de ce « plateau », des phases de décroissances successives apparaissent jusqu'à atteindre un angle minimum. Ces décroissances correspondent à la phase de transition du diamètre de contact. La ligne de contact ne se déplace plus mais la goutte se réorganise sous l'effet de la tension de surface pour prendre la forme d'une sphère tronquée avec des variations d'angle de contact supérieures à  $50^\circ$  ([Bayer & Megaridis, 2006]).

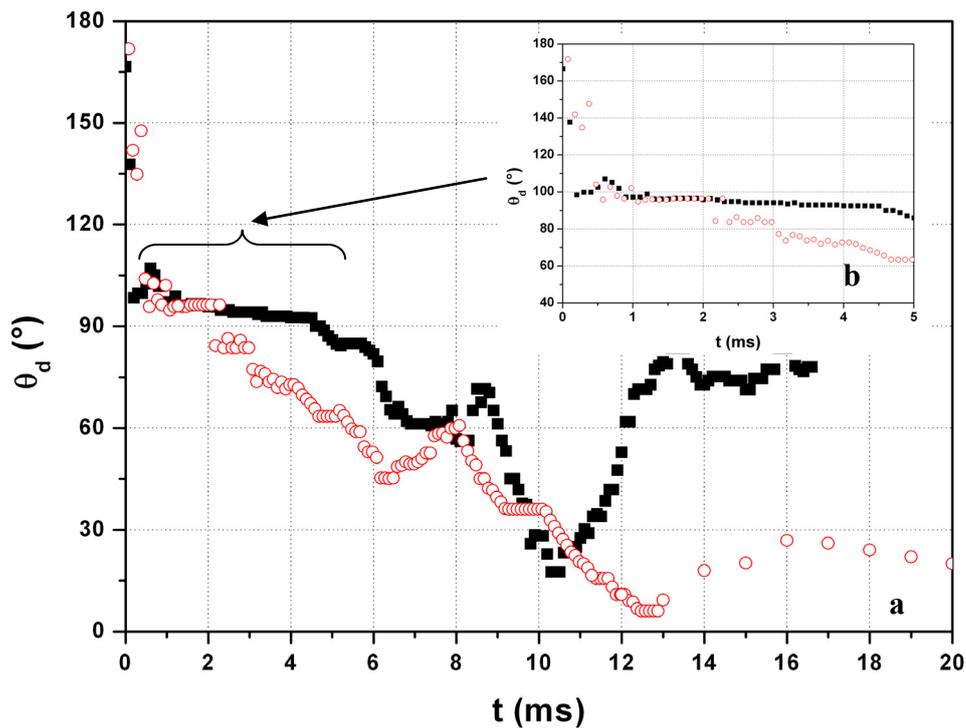


Figure III.29 : (a) Evolution de l'angle de contact dynamique d'une goutte d'eau distillée sur 20ms sur  $(\circ)$  une surface de type  $\theta_{\text{eq}} = 5^\circ$  et  $(\blacksquare)$  une surface de type 7  $\theta_{\text{eq}} = 70^\circ$ ,  $U = 0.35\text{m/s}$ ,  $D_0 = 2.28\text{m/s}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ . La figure (b) correspond à un grossissement de l'évolution de l'angle de contact sur les 5 premières millisecondes de l'impact.

La première décroissance apparaît dès l'instant où le diamètre maximum est atteint et où la hauteur de la goutte est minimum. Les variations de l'angle sont observables dès lors que la hauteur oscille et chaque minimum de l'angle correspond à un maximum de la hauteur.

Sur la figure III.29, entre  $t = 4\text{ms}$  et  $t = 13\text{ms}$ , deux décroissances successives sont visibles. La valeur des minima est en relation avec la mouillabilité de la surface et l'angle mesuré est d'autant plus faible que l'angle de reculée sur la dite surface l'est. De la même manière, plus l'angle d'équilibre est important et plus ces minima sont observés tôt et ont une valeur plus importante (respectivement dans les deux cas à 10ms et 13ms avec un angle de  $20^\circ$  et  $9^\circ$ ). Suite à cette phase de relaxation / transition, et lorsque la mouillabilité de la surface et les conditions expérimentales le permettent, la goutte entre dans la phase d'étalement capillaire. Dès lors, l'angle décroît de nouveau et présente quelques légères variations dans le cas où les oscillations ne sont pas complètement terminées.

## Les différentes phases

Nous avons précédemment découpé le problème en 4 phases et nous allons conserver cette classification pour étudier l'influence de chacun de ces paramètres. Le problème de l'angle de contact dynamique  $\theta_d$  est central dans notre sujet d'étude et il n'est pas réglé à l'heure actuelle. [Sikalo et al, 2005] ont mis en évidence la forte influence de la viscosité du liquide sans pour autant parvenir à déterminer une loi de comportement. Nous montrerons que les lois « classiques », telles que [Hoffman, 1975] ou [Tanner, 1979], ne semblent pas applicables dans les phases cinématique, d'étalement et de transition. Les modèles existants restent valables pour des nombres capillaires très inférieurs à 0.1 (état quasi statique de compensation des forces de tension de surface et de viscosité, correspondant à la phase capillaire) alors que les mesures de la vitesse de la ligne triple conduisent à des valeurs de Ca dynamique (calcul du nombre capillaire à partir de la vitesse de la ligne de contact au cours du temps) comprises entre 1 et 10 dans les premiers instants de l'impact, avec :

$$Ca = \frac{\mu U_{LT}}{\sigma} \quad (\text{III.17})$$

où  $U_{LT}$  la vitesse de la ligne de contact mesurée expérimentalement en m/s.

[Michel et al, 2005] montrent expérimentalement que, pour un nombre capillaire donné, plusieurs angles de contacts très différents sont mesurables, notamment aux vitesses de déplacements faibles de la ligne triple. Il est donc impossible, a priori, de relier l'angle de contact uniquement au nombre capillaire.

## Phase cinématique

Dans la phase cinématique, les déformations de la goutte sont faibles et l'approximation que cette dernière conserve la forme d'une sphère tronquée formant un angle  $\theta_d$  avec la surface ( $180^\circ$  à l'instant de l'impact) est valable.

L'équation de  $\theta_d$  s'écrit ([Sikalo et al, 2005]) :

$$\theta_d(t) = \frac{180}{\pi} \left( \frac{\pi}{2} + a \cos\left(\frac{D(t)}{D_0}\right) \right) \quad (\text{III.18})$$

En injectant l'équation III.2 avec  $\alpha = \sqrt{2}$  (valeur de la littérature : 1.4), nous obtenons une description temporelle  $\theta_d$  qui est en bon accord avec les mesures expérimentales (figure III.31).

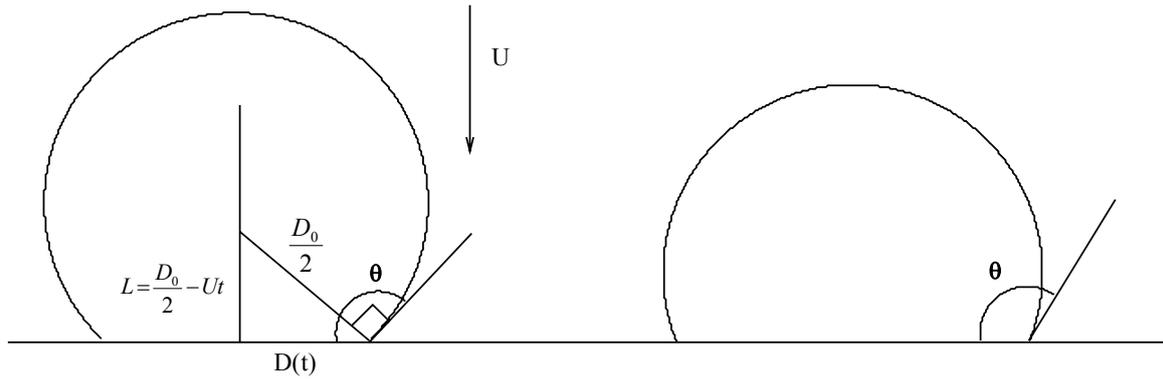


Figure III.30 : Angle de contact entre une sphère tronquée et une surface.

Dans ce cas, cet angle dépend de l'évolution dynamique du diamètre de contact et par suite de tous les paramètres qui influencent ce dernier (vitesse, viscosité, tension de surface, mouillabilité etc....).

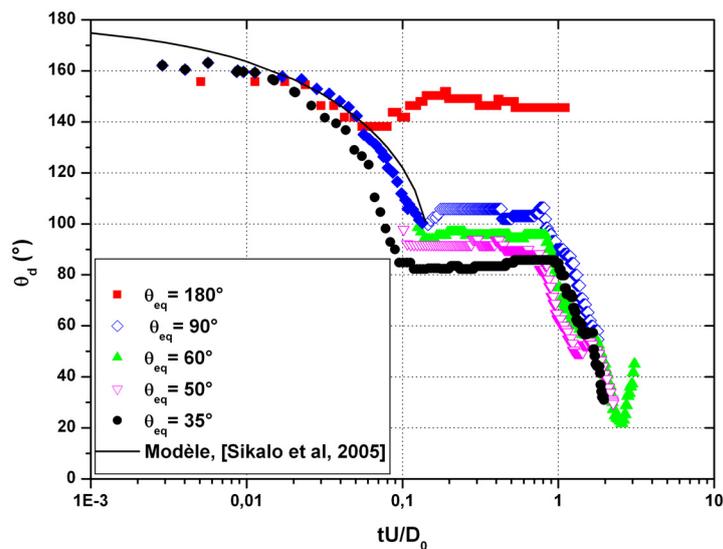


Figure III.31 : Evolution de l'angle de contact dynamique lors de l'impact d'une goutte d'eau de 2.28mm de diamètre sur différentes surfaces.

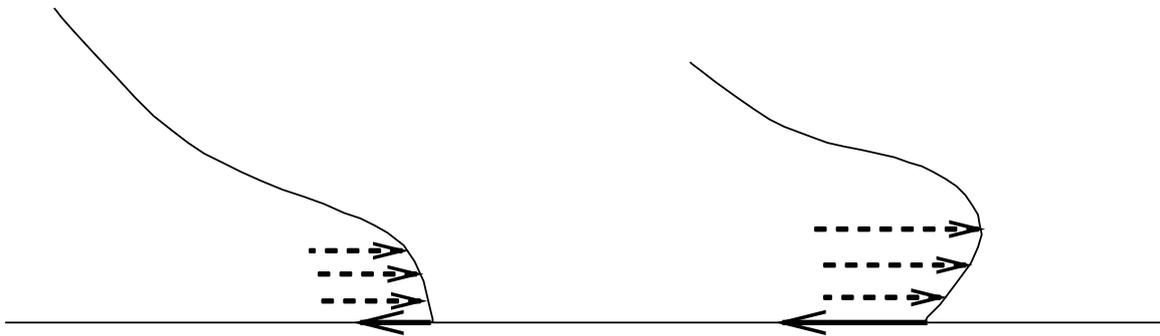
### Effet de la mouillabilité

Dans ce régime, limité à  $t^* < 0.1$ , l'angle diminue de  $180^\circ$  à une valeur dépendante du couple mouillabilité – viscosité, mais également de la vitesse d'impact. Plus la surface est mouillante et plus  $\theta_d$  diminue à la fois rapidement et vers une valeur plus basse. Dans les deux cas extrêmes de la figure III.31 ( $35^\circ$  et  $180^\circ$ ), la valeur à  $t^* = 0.1$  est de  $140^\circ$  pour la surface non

mouillante et de  $80^\circ$  pour la surface à  $\theta_{\text{éq}} = 35^\circ$ . L'observation des profils expérimentaux, au moment de l'expulsion de la lamelle, montrent bien le changement rapide de l'angle dans les premiers instants, ainsi que les écarts liés à la mouillabilité (figure III.14). Pour une surface partiellement mouillante, la force non compensée de Young qui s'oppose à la propagation de la lamelle ne dépend que de la mouillabilité et s'exprime comme suit :

$$F = \sigma_{SG} - (\sigma \cos \theta_d + \sigma_{SL}) \quad (\text{III.19})$$

A partir de l'équation III.19, nous observons que la force non compensée de Young est d'autant plus importante que la mouillabilité est faible. Un schéma de description de la surface libre est donné sur la figure III.32.



**Figure III.32 : Schéma de comportement de l'angle de contact en fonction de la mouillabilité de la surface (flèches en pointillées: champ de vitesse, flèche en trait plein: force de résistance due à la mouillabilité de la surface).**

Remarque : Dans le cas de l'évolution du diamètre de contact, la mouillabilité n'avait que peu d'effet, contrairement à ce qui est constaté pour l'angle de contact. La forte déformabilité de la surface, particulièrement pour les fluides faiblement visqueux, peut expliquer cette observation.

#### Effet de la viscosité et de la vitesse

La viscosité n'intervient que sur la valeur de l'angle en fin de régime cinématique. Quelle que soit la mouillabilité de la surface, pour  $\mu = 96 \text{ mPa.s}$ , l'angle mesuré est compris entre  $125^\circ$  et  $140^\circ$ . Dans ce cas, l'augmentation de la vitesse d'un facteur 3 diminue l'angle de fin de régime cinématique de moins de 10%.

La vitesse n'intervient également que sur la valeur à la fin de ce régime. Plus  $U$  est importante et plus l'angle sera bas. La vitesse globale de la lamelle est d'autant plus importante que la

vitesse d'impact l'est. La force qui s'oppose au déplacement a une influence moindre et la ligne de contact avance plus rapidement pour former un angle légèrement inférieur.

## Phase d'étalement

### Effet de la viscosité et de la mouillabilité

A partir de  $t^* = 0.1$ , la goutte entre dans la phase d'étalement et dès lors seules la tension de surface et la viscosité vont intervenir. Plus la viscosité est importante et moins la mouillabilité de la surface influence l'angle de contact dynamique. Les expériences avec des gouttes d'eau distillées permettent de bien observer l'effet de la surface ( $Re = 2400$  pour  $U = 1\text{m/s}$ ). L'angle obtenu à la fin du régime cinématique se conserve tout au long de la phase d'étalement (effet de plateau).

$\mu$ (mPa.s)	$\theta_{\text{éq}}$	$\theta_{\text{av}}$	$\theta_{\text{dyn}}$ (mesure moyenne)
1	90	107	115
1	60	72	99
1	50	60	87
1	5	15	58
10	45	55	120
10	70	80	125
96	5	12	146
96	50	60	149
96	87	92	147

Tableau III.2 : Comparaison de l'angle d'avancée ( $\theta_{\text{av}}$ ) et angle d'avancée dynamique ( $\theta_{\text{dyn}}$ ).

De plus, l'augmentation de la mouillabilité de la surface diminue la valeur de l'angle d'avancée dynamique de la lamelle sur la surface (figure III.33.a et III.33.b). Pour le cas d'une goutte d'eau distillée impactant à une vitesse de  $U = 0.35\text{m/s}$  sur deux surfaces de mouillabilité  $50^\circ$  et  $90^\circ$ , l'angle dynamique mesuré est respectivement de  $87^\circ$  et  $115^\circ$ . Il est important de préciser ici que cet angle « d'avancée dynamique », que nous noterons  $\theta_{\text{dyn}}$  dans la suite, est largement supérieur à la valeur « classique » de l'angle d'avancée  $\theta_{\text{av}}$  d'un liquide

sur une surface. Par ailleurs cet angle dépend significativement de la mouillabilité de la surface et de la viscosité du liquide (tableau III.2).

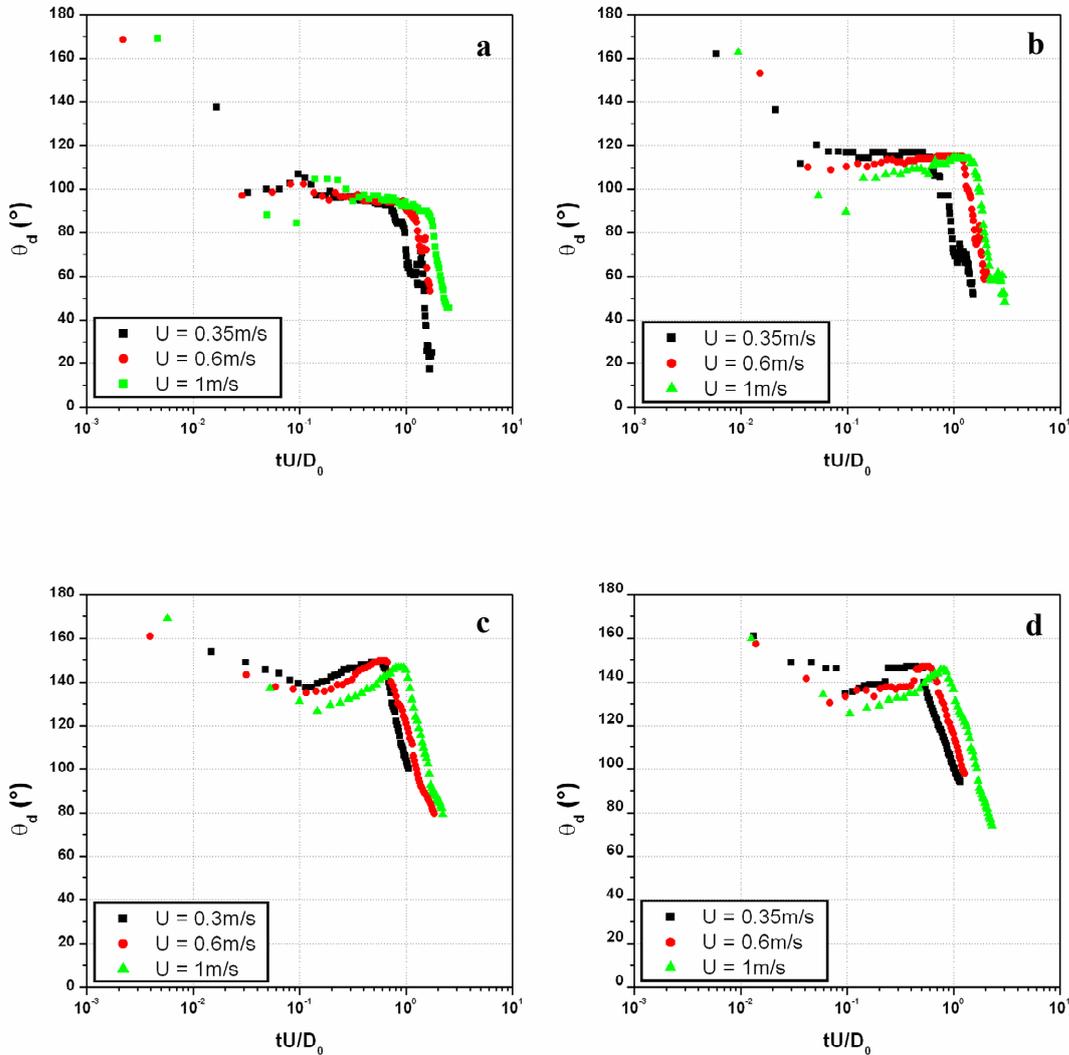


Figure III.33 : Evolution de l'angle de contact dynamique pour 3 vitesses différentes d'une goutte (a) d'eau distillée impactant sur un surface à  $\theta_{eq} = 30^\circ$ , (b) d'eau distillée impactant sur un surface à  $\theta_{eq} = 88^\circ$ , (c) d'eau distillée + 85% de glycérol ( $\mu = 96 \text{ mPa.s}$ ) impactant sur un surface à  $\theta_{eq} = 30^\circ$ , (d) d'eau distillée + 85% de glycérol ( $\mu = 96 \text{ mPa.s}$ ) impactant sur un surface à  $\theta_{eq} = 80^\circ$ .

A viscosité plus importante, l'angle de contact augmente durant la phase d'étalement jusqu'à atteindre une valeur proche de  $150^\circ$  (ce plateau correspond à  $\theta_{dyn}$ ) indépendamment de la mouillabilité et de la vitesse d'impact (figure III.33.c et III.33.d).

La durée sur laquelle  $\theta_d = \theta_{dyn}$  est plus importante pour les fluides moins visqueux ( $0.9t^*$  pour  $\mu = 1\text{mPa.s}$  contre  $0.1t^*$  pour  $\mu = 96\text{mPa.s}$ ). Dans ce cas, c'est la viscosité qui domine l'étalement et qui contribue majoritairement, au niveau de la ligne de contact, à la dissipation des forces cinétiques.

Remarque : Cet angle de contact dynamique traduit la dissipation des forces de tension de surface non compensée de Young et de viscosité au niveau de la ligne de contact. Aussi, afin de traduire au mieux cette dissipation et les variations étant faibles, nous considérons dans la suite l'angle dynamique de contact  $\theta_{dyn}$  comme la moyenne des angles mesurés durant la phase d'étalement.

#### Effet de la vitesse d'impact

Le comportement de  $\theta_d$  n'est que très peu influencé par la vitesse d'impact. Ce paramètre modifie la durée du plateau mais de façon moins conséquente que la viscosité. Dans le cas d'un fluide visqueux ( $\mu = 96\text{mPa.s}$ ), pour une vitesse 3 fois supérieure, la durée du plateau diminue également d'un facteur 3 (respectivement 2.5ms à 0.35m/s et 0.8ms à 1m/s) ce qui correspond à une durée constante équivalente comprise entre 0.375 et 0.4t\* (figure III.33.d). L'instant où la goutte atteint  $\beta_{max}$  est modifié par la vitesse d'impact. Cependant, les valeurs de  $\theta_{dyn}$  restent proches (écart inférieur à 5°).

### Phase de transition

Dans la phase intermédiaire, l'hystérésis de l'angle de contact est très importante, la goutte passe de la forme d'un cylindre (où d'un trapèze) à celle d'une sphère tronquée sans aucun déplacement de la ligne de contact (figure III.34).

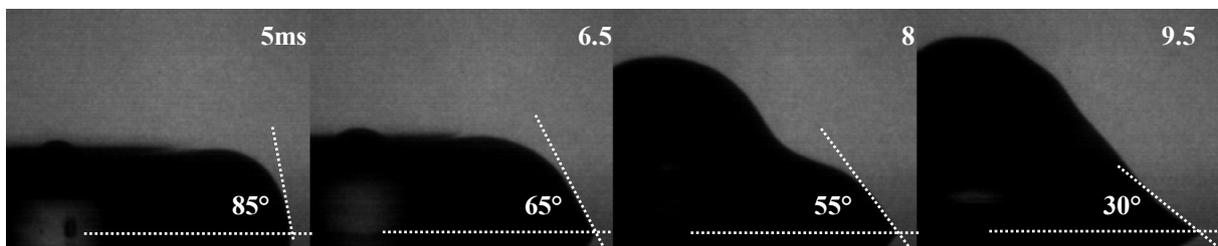


Figure III.34 : Hystérésis de l'angle de contact pour une vitesse nulle de la ligne triple (cas d'une goutte d'eau distillée sur une surface à  $\theta_{eq} = 35^\circ$ ,  $U = 0.35\text{m/s}$ ).

Remarquons d'ores et déjà que dans ce régime, une vitesse de déplacement nulle de la ligne triple rend impossible de relier  $\theta_d$  au nombre capillaire, excluant d'office l'ensemble des lois « classiques » de la littérature ([Hoffman, 1975 ; Tanner, 1979]). Dans tous les cas, le diamètre de contact ne change pas pendant cette phase et l'angle de contact  $\theta_d$  diminue. Cette diminution est largement dépendante des conditions expérimentales et notamment de l'amplitude de la première oscillation. L'angle dynamique peut atteindre l'angle de reculée, ce qui se traduit par un démouillage de la surface. Dans les cas mouillants, les démouillages sont faibles et le diamètre augmente de nouveau dès que le sommet de la goutte commence sa descente. Pour les cas non mouillants, le démouillage de la surface est plus important et est dû à l'angle de reculée du liquide sur la surface.

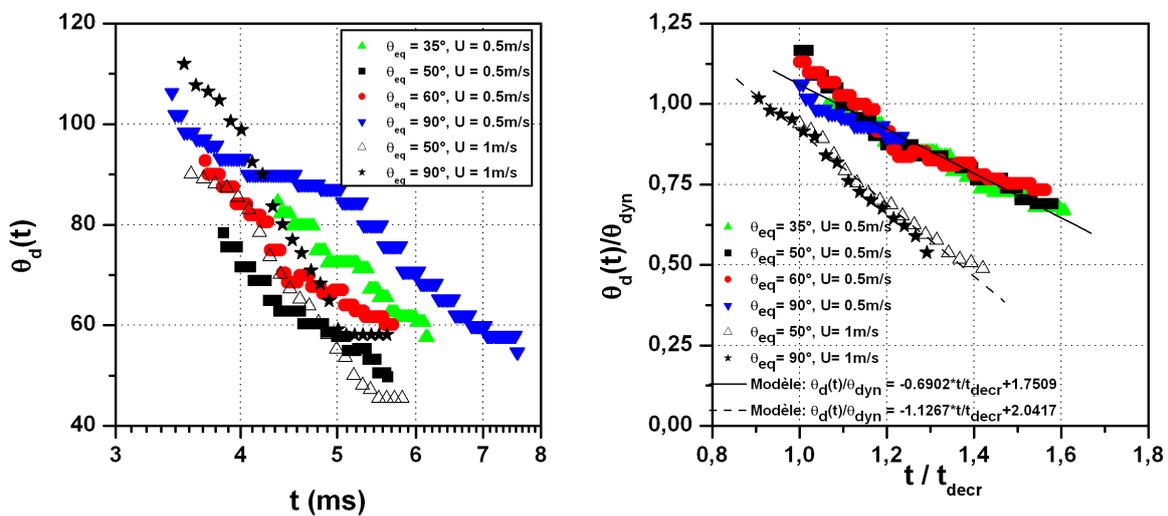


Figure III.35 : Décroissance de l'angle de contact en fonction de la vitesse d'impact et de la mouillabilité (liquide : eau distillée), (a) en échelles dimensionnelles et (b) en échelles adimensionnées.

Lorsque la goutte présente des oscillations à son sommet, ces oscillations sont également observables sur l'angle de contact dynamique. Un effort d'adimensionnalisation a été effectué pour trouver une base commune aux différentes courbes (plusieurs mouillabilités et vitesses d'impact différentes dans les expériences). L'objectif est de faire ressortir une courbe maîtresse en fonction des paramètres importants. Les figures III.35.a et III.35.b permettent clairement de voir l'effet de l'adimensionnalisation.

Deux vitesses d'impact et quatre mouillabilités étant utilisées pour ces expériences, nous avons cherché à déterminer un point commun entre elles. Les paramètres de vitesse et de mouillabilité de la surface ont une influence sur l'instant auquel le diamètre maximum est atteint ; et donc sur l'instant  $t_{decr}$  auquel l'angle débute sa décroissance. Le temps est alors

rapporté à cet instant. De la même manière, la mouillabilité modifie la valeur de l'angle avec lequel la lamelle se propage, aussi l'angle dynamique est rapporté à la valeur de  $\theta_{\text{dyn}}$ . Une décroissance linéaire de  $\theta_d$  est observable dans le cas de l'eau distillée indépendamment de la mouillabilité de la surface (dans la gamme considérée ici, à savoir entre 35° et 90°). En opposition, pour une vitesse d'impact moins importante, le film est moins tendu et l'effet de « ressort » de l'interface est plus faible (la division par 2 de la vitesse d'impact entraîne une décroissance plus lente de l'ordre de 39%).

### Phase capillaire

Dès lors que la goutte entre dans la phase capillaire (quand elle existe), seules les forces de viscosité et de tension de surface interviennent et, tout comme pour le diamètre, les lois classiques s'appliquent. Plusieurs formulations sont alors possibles telles que les lois de [Tanner, 1979], [Hoffman, 1975], ou plus récemment [Sciffer, 2000].

Dans le premier cas, l'évolution de l'angle de contact est reliée à la vitesse de la ligne triple par la relation donnée dans [Middleman, 1995] (équation III.20).

$$\theta_d = C(Ca)^{\frac{1}{3}} \quad (\text{III.20})$$

où  $Ca$  est le nombre capillaire défini à l'aide de la vitesse de la ligne triple (équation III.17) et  $C$  une constante égale à 3.4 ([Middleman, 1995]). Cependant, cette formule nécessite la connaissance de la vitesse de la ligne triple. Une autre approche consiste à utiliser des considérations géométriques. La goutte a la forme d'une sphère tronquée et une conservation de volume en utilisant l'équation II.21 permet d'obtenir une évolution de  $\theta_d$  à partir de la variation temporelle du diamètre de contact.

$$D(t) = 2 \left( \frac{3V \sin^3(\theta_d)}{\pi(1 - \cos(\theta_d))^2 (2 + \cos(\theta_d))} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (\text{III.21})$$

Dans le cas de mouillage complet, il suffit de résoudre l'équation suivante pour obtenir  $\theta_d$  en fonction du temps :

$$\alpha^3 t^{\frac{3}{10}} = 2 \left( \frac{3V \sin^3(\theta_d)}{\pi(1 - \cos(\theta_d))^2 (2 + \cos(\theta_d))} \right) \quad (\text{III.22})$$

Avec  $\alpha$  le coefficient d'ajustement dépendant des propriétés physico-chimiques du liquide ([De Ruijter et al, 2000]).

Une solution approchée est également donnée par [De Ruijter et al, 1999] sous la forme suivante :

$$\theta_d \approx 2 \left( \frac{2V}{\pi} \right)^{\frac{1}{10}} \left( \frac{15\sigma}{\mu \ln \left( \frac{3V}{\pi a^3} \right)} \right) \quad (\text{III.23})$$

où « a » est un coefficient d'ajustement de l'ordre du  $\mu\text{m}$  ou moins ([De Ruijter et al, 1999]).

### Relation entre $\theta_d$ et $Ca$ , comparaison aux lois classiques

De nombreuses lois disponibles dans la littérature relient l'évolution de l'angle de contact dynamique à la vitesse de la ligne de contact ([Hoffman, 1975 ; Tanner, 1979 ; Shikhmurzaev, 1997 ; Sciffer, 2000]).

Le modèle de [Hoffman, 1975] considère le cas d'un écoulement à faible vitesse dans un capillaire. Il précise que dans un tel cas, en particulier lorsque l'interaction entre solide/liquide ne change pas, les forces interfaciales et les forces visqueuses s'opposent à l'écoulement et que se sont les seuls facteurs contrôlant la forme de l'interface (elles tendent à ramener l'interface vers sa position, et donc son angle, d'équilibre). En conséquence, il établit une relation reliant l'angle de contact, le nombre capillaire et l'angle de contact d'équilibre (équation I.15).

[Tanner, 1979] considère quant à lui le cas de l'étalement continue et complet ( $\theta_{eq} = 0^\circ$ ) sous l'action de la tension de surface d'une goutte se trouvant sous la forme d'une calotte sphérique. Il relie la vitesse de la ligne de contact à l'angle de contact apparent macroscopique mesuré au point d'inflexion de l'interface (jonction entre la couche de lubrification et l'interface de la goutte, [Tanner, 1979]).

Dans ces travaux, [Shikhmurzaev, 1997] compare son modèle aux théories existantes. Dans sa liste, nous trouvons notamment la forme de l'équation suivante :

$$Ca = k(\theta_d - \theta_{eq})^m \quad (\text{III.24})$$

Ce que nous faisons ici, c'est reprendre l'hypothèse d'un comportement asymptotique de l'angle dynamique ([Tanner, 1979]) en prenant  $m = 3$  et avec  $k$  un coefficient empirique. Notons à ce sujet que les valeurs que nous obtenons pour cette constante sont du même ordre de grandeur que l'épaisseur de la couche de lubrification nécessaire pour obtenir une solution dans les simulations de [Tanner, 1979].

Une approche plus récente ([Sciffer, 2000]), reprend les hypothèses de [Shikhmurzaev, 1993] selon lesquelles la tension de surface à l'interface varie avec la densité interfaciale. Par suite, l'écoulement dans le volume provoque des contraintes de cisaillement interfaciales ([Blake,

1988]) et ce sont les transferts de masse du volume vers l'interface qui rétablissent l'équilibre de la densité interfaciale loin de la ligne de contact. [Sciffer, 2000] propose une relation linéaire entre la contrainte de cisaillement et la tension interfaciale pour traduire ces contraintes de cisaillement (voir chapitre I).

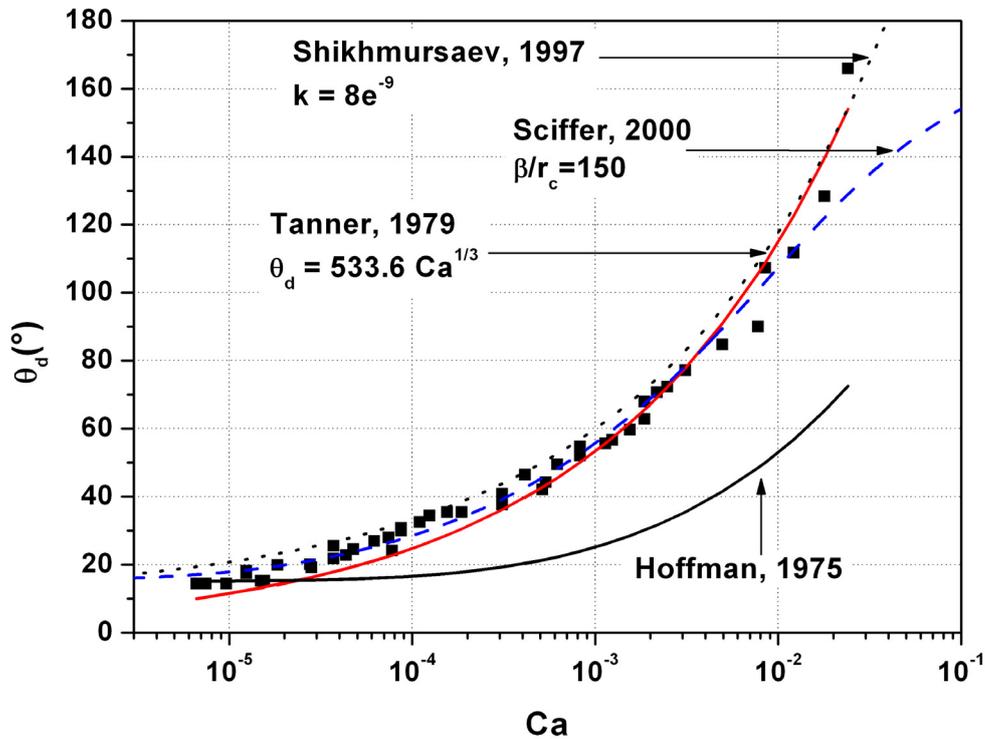


Figure III.36 : Angle de contact dynamique en fonction du nombre capillaire lors du dépôt d'une goutte d'encre UV sur une surface d'aluminium couché  $D_0 = 1.45\text{mm}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 10^\circ$ ,  $\mu = 30\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 34\text{mN/m}$ ,  $\rho = 1040\text{kg/m}^3$ .

Dans le cas du dépôt d'une goutte de liquide sur une surface (totalement ou partiellement mouillante), ces lois conduisent à des résultats plus ou moins en bon accord (figure III.36). Les écarts avec les mesures expérimentales sont essentiellement dus, pour [Hoffman, 1975], à l'écart dans le procédé expérimental (mesures effectuées sur un liquide qui se déplace dans un capillaire en verre). La loi de [Tanner, 1979] ne considère que des systèmes totalement mouillants et excède  $180^\circ$  pour les nombres capillaires importants. Cependant, le coefficient d'ajustement  $\alpha$  obtenu dans le cas de figure III.36 est de 533, ce qui est cohérent avec la valeur de 612 obtenue par [Chen & Wada, 1992] dans le cas du dépôt d'une huile silicone de 196mPa.s et 972mPa.s ( $\sigma = 21\text{mN/m}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 0^\circ$ ). Le modèle cité dans [Shikhmursaev, 1997] (équation I.52) tient compte de l'angle d'équilibre mais excède également la limite de  $180^\circ$ .

La loi de [Sciffer, 2000] respecte les différentes limites imposées par le système liquide / solide d'une goutte sur une surface et constitue le modèle le plus adapté au cas du dépôt.

Toutes les lois disponibles dans la littérature relient l'angle de contact dynamique au nombre capillaire et dans le cas de l'impact sur une surface très mouillante, la majeure partie de l'étalement s'effectue dans la phase capillaire où la validité de ces lois est avérée. Elles semblent donc suffisantes.

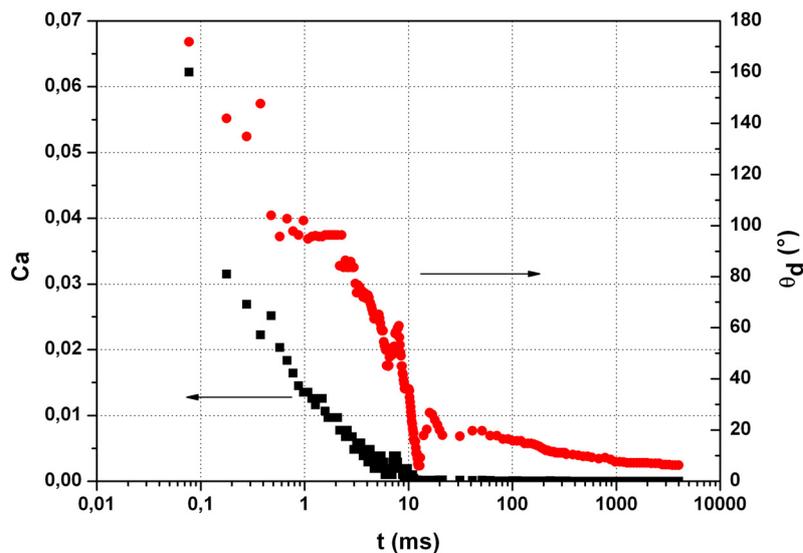


Figure III.37 : Nombre capillaire (■) et angle dynamique (●) en fonction du temps, cas d'une goutte d'eau distillée impactant à 0.35m/s sur surface de type  $\theta_{\text{éq}} = 5^\circ$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ .

La figure III.37 présente l'évolution de l'angle de contact et du nombre capillaire au cours du temps dans le cas d'une goutte d'eau distillée impactant à  $U = 0.35\text{m/s}$  sur une surface à  $\theta_{\text{éq}} = 5^\circ$ . Le nombre capillaire décroît de manière monotone au cours du temps et son évolution ne suit pas celle de l'angle de contact, notamment durant le plateau et au cours de la décroissance. Pendant le plateau, l'angle de contact ne varie pas alors que la vitesse de la ligne triple diminue jusqu'à s'annuler. Pour les phases de décroissance, les déplacements de la ligne de contact sont suffisamment faibles pour que les mesures conduisent à une vitesse constante sur plusieurs instants. Par suite, pour une même valeur du nombre capillaire  $Ca$ , plusieurs angles différents (écart jusqu'à plusieurs dizaines de degré) sont mesurés (figure III.38). Toutefois, il n'y a aucune raison d'observer de telles variations pour un même nombre

capillaire et les écarts mesurés sont certainement dus aux incertitudes de mesures. Nous avons donc effectué la moyenne des angles de contact pour une même vitesse de la ligne de contact (et donc un même nombre capillaire ; figure III.39).

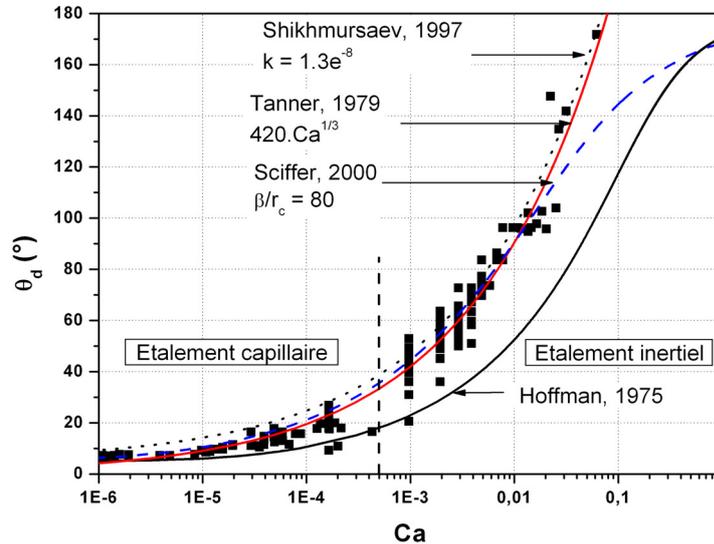


Figure III.38 : Evolution de l'angle de contact dynamique en fonction du nombre capillaire dans le cas d'une goutte d'eau distillée impactant à 0.35m/s sur surface de type 1,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 5^\circ$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ .

### Mouillabilité importante

Bien que la représentation  $\theta_d = f(\text{Ca})$  semble ne pas être adaptée, la durée sur laquelle les comportements de l'angle dynamique et le nombre capillaire sont différents est relativement courte, particulièrement dans le cas d'un étalement fort (mouillabilité importante). En conséquence, il est tout de même possible d'obtenir une bonne adéquation entre les lois [Tanner, 1979 ; Sciffer, 2000] et les mesures expérimentales. Toutefois, la partie constante de l'angle de contact ne peut pas être correctement retranscrite par les lois classiques.

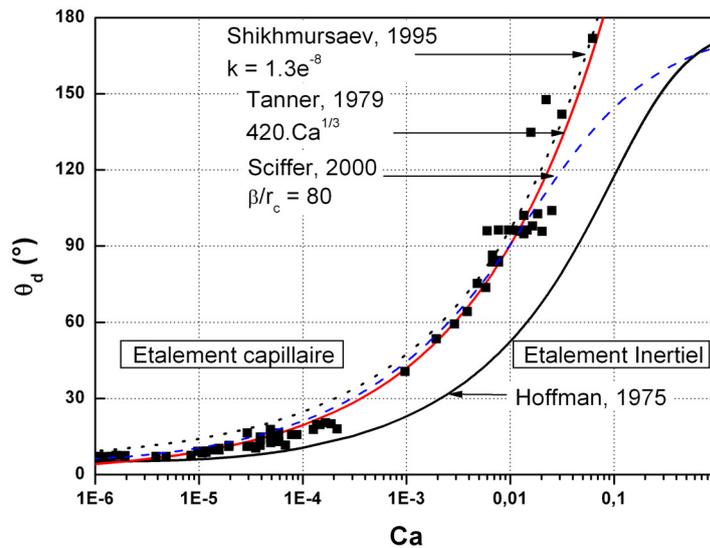


Figure III.39 : Evolution de l'angle de contact dynamique en fonction du nombre capillaire dans le cas d'une goutte d'eau distillée impactant à 0.35m/s sur surface de type 1,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $\theta_{\text{éq}} = 5^\circ$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ .

La figure III.39 montre que la loi d'Hoffman ne permet pas de prédire correctement les valeurs expérimentales, à l'inverse de la loi de Tanner, de Shikhmursaev ou de la loi de Sciffer ([Vadillo et al, 2006]). Dans l'expérience de la figure III.39 ci-dessus, la valeur de  $C = 3.4$  pour la loi de [Tanner, 1979] surestime l'angle de contact théorique et le meilleur accord est obtenu pour  $C = 2.5$ . De même pour la loi citée dans [Shikhmursaev, 1995], le meilleur accord est obtenu pour  $k = 1.3 \cdot 10^{-8}$ . Enfin, pour la loi de [Sciffer, 2000], la meilleure corrélation est obtenue pour une valeur de 80 de la constante. En comparant ces représentations, notons que les restrictions sur le dépôt restent vraies dans le cas de l'impact. En conséquence, la loi de [Sciffer, 2000] est la représentation la mieux adaptée bien qu'elle sous estime l'angle de contact pour les nombres capillaires supérieurs à 0.04 (figure III.39).

### Mouillabilité intermédiaire

La figure III.40 présente le cas de l'impact d'une goutte d'eau distillée à  $U = 0.35\text{m/s}$  sur une surface d'angle d'équilibre  $30^\circ$ . Dans ces conditions, l'étalement maximum est suffisamment élevé pour que le diamètre obtenu soit compris entre  $d_a$  et  $d_r$ . En conséquence, la ligne triple ne se déplace plus une fois le diamètre maximum atteint et la goutte présente des oscillations sur sa hauteur. L'angle de contact oscille également et converge vers sa position d'équilibre

(figure III.34). La représentation  $\theta_d = f(Ca)$  est donc particulièrement inadaptée dans ce cas de figure et aucune des lois classiques ne permet de traduire correctement l'évolution de l'angle de contact dynamique ([Vadillo et al, 2006]).

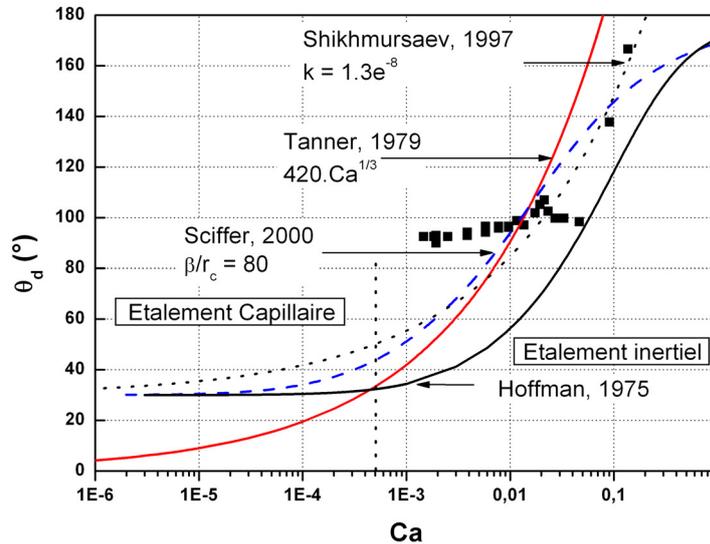


Figure III.40 : Evolution de l'angle de contact dynamique moyenne en fonction du nombre capillaire dans le cas d'une goutte d'eau distillée impactant à 0.35m/s sur surface de type 1,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 5^\circ$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ .

Modèle de [Bayer & Megaridis, 2006]

Comme nous l'avons montré, le cas partiellement mouillant n'est pas correctement représenté par les lois classiques. Celles-ci ne permettent pas non plus de relier les vitesses négatives (lors du démouillage) avec cet angle dynamique. Une représentation plus fine de rapport entre la vitesse de la ligne triple et l'angle de contact dynamique est donc nécessaire. [Bayer & Megaridis, 2006] proposent une représentation du problème sous la forme de la combinaison d'effets moléculaires et cinétiques. Ils relient l'angle de contact dynamique à la fois à la « fréquence  $\kappa$  et la longueur  $\lambda$  » du déplacement des molécules d'après la formule proposée par [Blake & Haynes, 1969].

$$U_{CL} = 2\kappa_w \lambda \sinh \left[ \frac{\sigma}{2nkT} (\cos \theta_{\text{eq}} - \cos \theta) \right] \quad (\text{III.25})$$

où  $k$  et  $T$  sont respectivement la constante de Boltzmann et la température absolue,  $n$  correspond au nombre de sites d'absorption sur la surface et est proportionnel à  $\frac{1}{\lambda^2}$ . Ils relient

la fréquence de déplacement  $\kappa_w$  à l'énergie molaire d'activation découpée en une contribution  $\Delta G_s$  liée à l'influence de la surface et une contribution  $\Delta G_v$  liée aux interactions moléculaires dans le liquide.

$$\kappa_w = \frac{kT}{h} \exp\left(\frac{-\Delta G_s - \Delta G_v}{N_A kT}\right) \quad (\text{III.26})$$

avec  $N_A$  le nombre d'Avogadro et  $h$  la constante de Planck.

En définissant la fréquence d'interaction  $\kappa_s$  et en calculant  $\Delta G_v$  à partir de [Glasstone, 1941], on a :

$$\begin{aligned} \kappa_s &= \frac{kT}{h} \exp\left(\frac{-\Delta G_s}{N_A kT}\right) \\ \mu &= \frac{h}{\nu} \exp\left(\frac{\Delta G_v}{N_A kT}\right) \end{aligned} \quad (\text{III.27})$$

avec  $\mu$  la viscosité du liquide et  $\nu$  le volume spécifique de la goutte.

On obtient donc :

$$U_{CL} = \frac{2\kappa_s \lambda h}{\mu \nu} \sinh\left[\frac{\sigma \lambda^2}{2kT} (\cos \theta_{eq} - \cos \theta)\right] \quad (\text{III.28})$$

Ce modèle donne un très bon accord quelles que soient les configurations d'impacts. A titre d'exemple, la figure III.41 présente le cas de l'évolution de l'angle de contact dynamique en fonction de la vitesse de la ligne triple pour deux cas de mouillabilité différente. Nous observons notamment la forte influence de la mouillabilité de la surface sur la valeur de  $\kappa_s$ . En effet, pour un facteur 17 sur l'angle d'équilibre final (de  $90^\circ$  à  $5^\circ$ ), on a une multiplication par 77 de l'interaction entre le liquide et la surface. Nous montrons ici la dépendance des coefficients du modèle en fonction de la mouillabilité de la surface. Toutefois, d'autres paramètres influencent l'évolution de la ligne triple (rugosité, d'hystérésis d'angle de contact) mais ne sont pas pris en considération dans le modèle. Des travaux supplémentaires restent donc à effectuer.

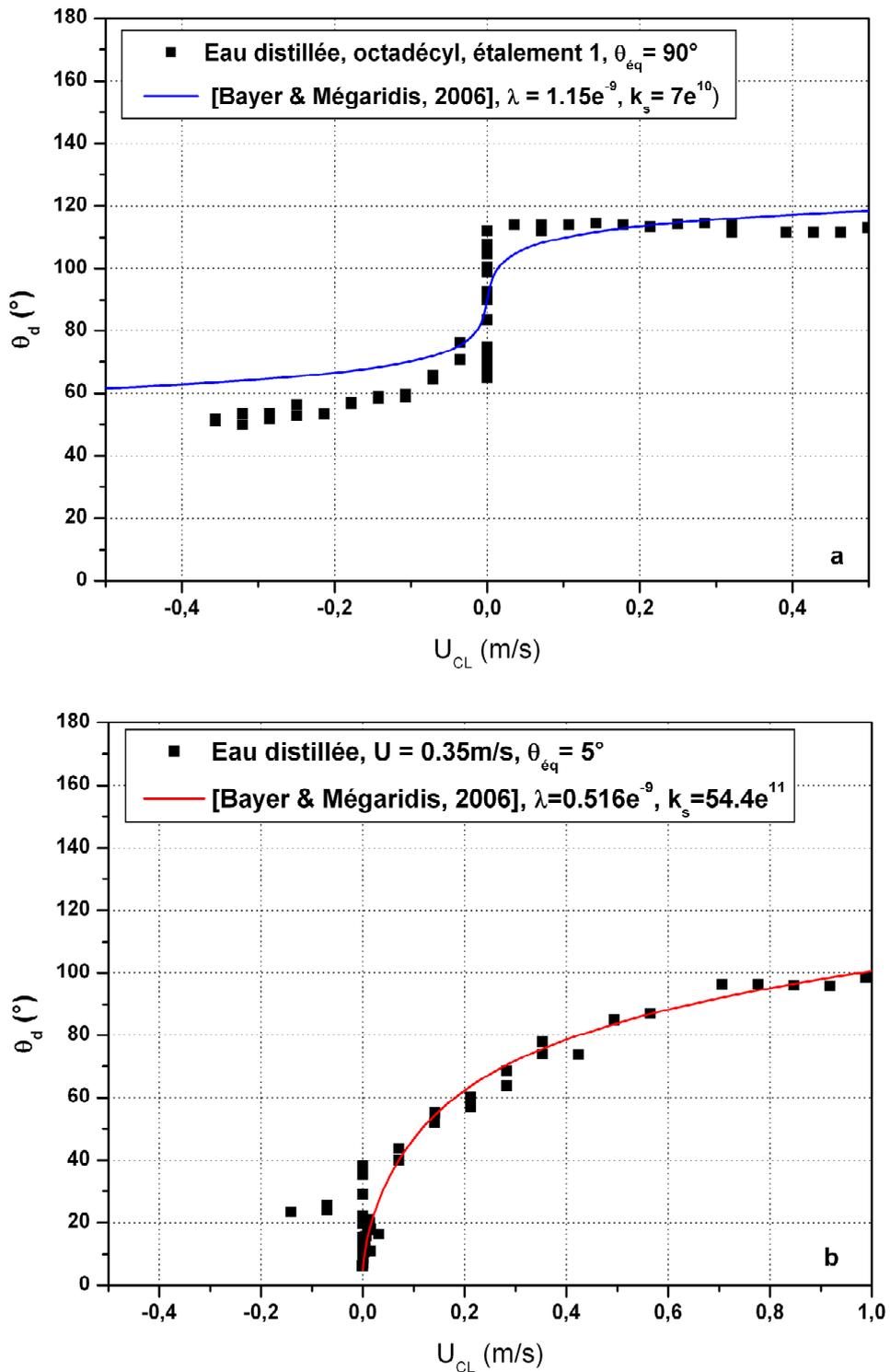


Figure III.41 : Modèle de [Bayer & Megaridis, 2006] appliqué au cas de l'impact d'une goutte d'eau distillée (a) à  $U = 1 \text{ m/s}$  sur une surface à  $\theta_{\text{éq}} = 90^\circ$  et (b) à  $U = 0.35 \text{ m/s}$  sur une surface à  $\theta_{\text{éq}} = 5^\circ$ .

En résumé, nos travaux montrent que l'angle d'équilibre entre le liquide et la surface est un paramètre important dans l'étude des mécanismes d'impacts et d'étalements de gouttes. Le tableau III.3 fait la synthèse des différentes lois utilisées pour représenter l'évolution de l'angle de contact dynamique en fonction de la vitesse de la ligne triple ainsi que leur validité en fonction du caractère totalement ou partiellement mouillant.

Formulation des lois	Paramètre	Coefficient	Configuration	Accord avec l'expérience	
				Totalement mouillant	Partiellement mouillant
[Hoffman, 1975]	$\theta_{\text{éq}}$	sans	Dépôt	Oui	Oui
			Impact	Non	Non
[Tanner, 1979]	sans	C	Dépôt	Oui	Non
			Impact	Oui	Non
[Sciffer, 2000]	$\theta_{\text{éq}}$	$\beta/r_c$	Dépôt	Oui	Oui
			Impact	Oui	Oui
[Bayer & Megaridis, 2006]	$\theta_{\text{éq}}$	$\lambda, k_w$	Dépôt	Oui	Oui
			Impact	Oui	Oui

Tableau III.3 : Lois d'évolution de l'angle de contact en fonction de la vitesse de la ligne de contact et accord avec l'expérience.

### Prédiction de l'étalement

Ce paragraphe a pour objectif de présenter la comparaison de plusieurs modèles aussi bien sur l'évolution du diamètre de contact au cours du temps que sur la prédiction de l'étalement maximum ou encore de l'instant auquel celui-ci est atteint. Nous comparons tout d'abord plusieurs modèles géométriques qui décrivent l'évolution du diamètre de contact jusqu'à l'étalement maximum. Dans un second temps, nous comparons trois modèles de prédiction de cet étalement maximum et nous apportons une amélioration au modèle de [Ukiwe & Kwok, 2005] en y intégrant à la fois le temps auquel le diamètre maximum est atteint et l'angle dynamique de contact  $\theta_d$ . Enfin, nous présentons la comparaison entre nos résultats expérimentaux et des simulations à partir de la méthode Variationnelle et une méthode d'intégrale de frontière (chapitre I).

### Evolution du diamètre au cours du temps

Plusieurs lois simples basées sur des considérations géométriques sur la forme de la goutte durant l'impact ([Pasandideh-Fard et al, 1996 ; Kim et al, 2000]) sont présentes dans la littérature et permettent de décrire l'évolution du diamètre de contact au cours du temps.

Les modèles géométriques sont simples et rapides à résoudre et ils conduisent à des résultats intéressants. En reprenant les travaux de [Pasandideh-Fard et al, 1996] mais en procédant un peu différemment, le diamètre de contact est relié à la hauteur au centre. L'évolution de cette hauteur est proche d'une fonction exponentielle et dépendante de l'étalement maximum. Ces éléments conduisent à l'équation suivante :

$$D^* = \sqrt{4t^* + \left(\frac{2}{h'(t)} - 4\right)t^{*2} - \frac{4}{3} \frac{t^{*3}}{h'(t)}} \quad \text{avec} \quad h'(t) = \frac{h(t)}{D_0} = \frac{2}{3} \frac{1}{\beta_{\max}^2 \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{t_c}\right)\right)} \quad (\text{III.29})$$

où  $D^* = \frac{D}{D_0}$ ,  $t^* = \frac{t}{t_c}$ ,  $t_c = \frac{D_0}{U}$  et  $\beta_{\max} = \frac{D_{\max}}{D_0}$ .

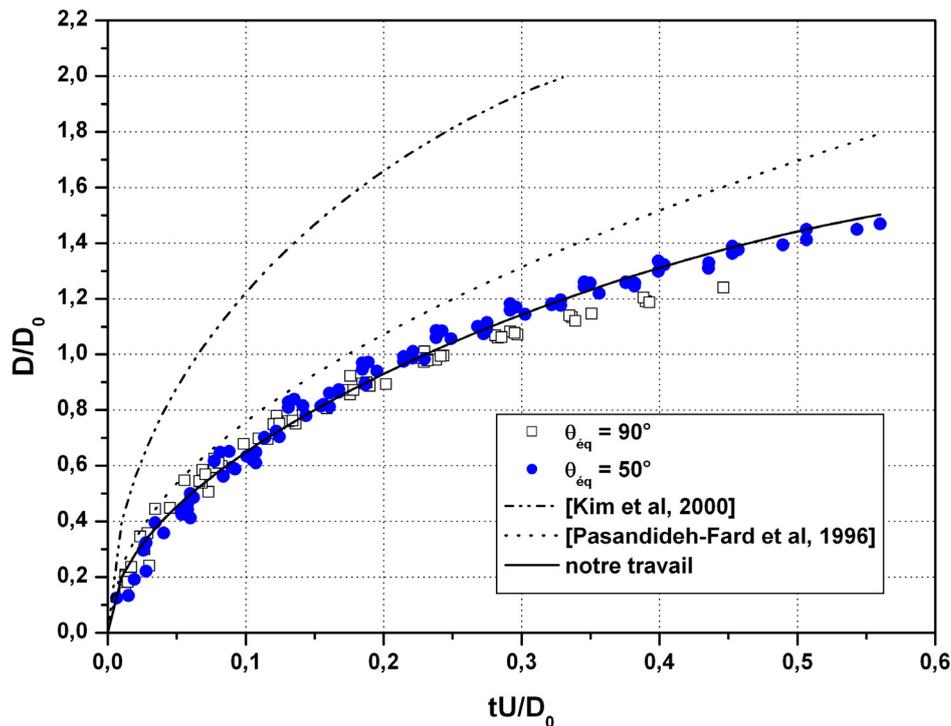


Figure III.42 : Comparaison de l'évolution du diamètre dans la phase d'étalement d'une goutte d'eau distillée sur deux surfaces de mouillabilité différentes ((□) 90° et (●) 50°) avec des modèles de la littérature,  $D_0 = 2.3\text{mm}$ ,  $U = 1\text{m/s}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$  et  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ .

Aucun coefficient d'ajustement n'est nécessaire et le diamètre de contact n'est dépendant que du diamètre de la goutte, de la vitesse d'impact (par l'utilisation du temps caractéristique inertiel) et de l'étalement maximum. Par ailleurs, sur les temps courts, les termes d'ordre 2 et 3 du temps sont négligeables devant le terme d'ordre 1. L'équation III.29 se résume donc à une équation de la même forme que l'équation III.4. Cette formulation, tout comme celle de [Kim et al, 2000], montre que l'évolution du diamètre ne s'effectue pas uniquement en racine carré du temps, ce qui est cohérent avec nos mesures expérimentales et certaines simulations ([Khatavkar, 2005]).

Sur la figure III.42, nous comparons divers modèles tels que [Pasandideh-Fard et al, 1996] et l'équation III.29 en utilisant le diamètre maximal mesurée expérimentalement. L'accord est excellent entre notre modèle semi empirique et les points expérimentaux. De plus, notre modèle est ajustable en fonction des conditions expérimentales puisque dépendant de l'étalement maximum. Il est donc très important d'être capable de prédire avec précision la valeur de cet étalement.

### **Prédiction de l'étalement maximum**

Comme nous l'avons déjà explicité, plusieurs comportements sont possibles (mouillage, démouillage ou stagnation) lors de l'impact d'une goutte sur une surface sèche en fonction des paramètres physico-chimiques du liquide, de la surface d'impact et de la vitesse à laquelle la goutte atterrit sur la surface. C'est la combinaison du couple « diamètre de contact maximum / angle à l'équilibre » qui indique la configuration dans laquelle nous nous trouvons. Si la mesure de l'angle statique est relativement simple à réaliser, les moyens expérimentaux de visualisation et de traitement à mettre en œuvre, sont beaucoup plus importants pour obtenir le diamètre maximum. Ces raisons ont motivé le développement de nombreux modèles parmi lesquels nous retiendrons plus particulièrement ceux de [Asai et al, 1993], [Roisman et al, 2001], [Pasandideh Fard et al, 1996] et [Ukiwe & Kwok, 2005] qui ont été décrits dans le chapitre I. Dans cette partie, nous présentons les modifications que nous proposons à ce dernier modèle.

#### Modifications au modèle de Kwok ([Ukiwe & Kwok, 2005])

Le modèle de [Ukiwe & Kwok, 2005] est une utilisation directe du modèle de [Pasandideh-Fard et al, 1996]. Ce dernier est construit à partir de la conservation de l'énergie entre l'instant de l'impact et celui de l'étalement maximum appliqué à une goutte dont la forme

durant l'impact est celle d'une sphère tronquée pénétrant dans un cylindre. La principale différence entre ces deux modèles, outre le fait que [Pasandideh-Fard et al, 1996] négligent l'énergie de surface provenant des faces latérales de la goutte sous sa forme de cylindre, se situe au niveau du choix de l'angle de contact. Dans ces deux cas, la détermination du diamètre maximum se fait à partir de la résolution de l'équation I.31. Elle tient compte à la fois de l'étalement maximum  $\beta_{\max}$  et de l'angle de contact  $\theta$ . Pour [Pasandideh-Fard et al, 1996] il faut considérer l'angle de contact dynamique à l'instant de l'étalement maximum. L'argument de [Ukiwe & Kwok, 2005] consiste à dire qu'il existe plusieurs états métastables qui sont également des angles d'équilibre, aussi, seul l'angle de contact d'avancée traduit les véritables interactions solide / liquide.

Deux remarques importantes sont à formuler sur ces deux différents points de vue. Tout d'abord, le temps pour obtenir l'équilibre entre forces cinétiques et forces visqueuses est un élément important dans la prédiction du diamètre maximum. Pour obtenir la quantification de la dissipation visqueuse, et par suite le temps d'étalement, la goutte est considérée durant l'impact comme étant une sphère tronquée qui pénètre dans un cylindre au travers d'un disque de diamètre « d » (chapitre I).

Dans [Pasandideh-Fard et al, 1996], le flux de liquide qui passe de la calotte sphérique au cylindre est estimé en réalisant une moyenne simple sur le diamètre « d » (il varie entre 0 et  $D_0$ ) de la surface de contact circulaire entre les deux parties de la goutte (figure I.13). Cela conduit à un étalement qui s'effectue en  $\frac{8}{3}t_i$ , alors qu'expérimentalement des temps 2 à 3 fois plus courts sont très souvent mesurés.

En faisant l'hypothèse que la goutte n'est pas freinée verticalement durant la phase d'étalement, nous pouvons écrire que la hauteur au centre varie au cours du temps comme :

$$L = \frac{D_0}{2} - Ut \quad (\text{III.30})$$

La variation du diamètre « d » du disque d'intersection au cours du temps est estimée à partir du théorème de Pythagore et de l'équation III.30 comme étant, en grandeurs sans dimensions :

$$d^2 = D_0^2 - 4L^2 \quad (\text{III.31})$$

$$\frac{d}{D_0} = 2\sqrt{t^*(1-t^*)} \quad (\text{III.32})$$

En suivant le même raisonnement que dans [Pasandideh-Fard, 1996], nous arrivons à :

$$\beta_{\max} = \frac{D(t)}{D_{\max}} = \sqrt{3t^{*2} - 2t^{*3}} \quad (\text{III.33})$$

Dans ce cas, le diamètre maximum est obtenu lorsque  $\beta_{\max} = 1$  soit à  $t = t_i$ . Le choix d'une valeur moyenne pour « d » permet de tenir compte d'un maximum de configuration possible et de ne pas restreindre le modèle aux cas où la goutte a effectivement la forme d'une sphère tronquée surmontant un cylindre. Toutefois, il apparaît que le diamètre maximum peut être atteint entre  $t_i$  et  $\frac{8}{3}t_i$  ce qui n'est pas sans effet sur le calcul de l'énergie dissipée et par suite sur la valeur du diamètre maximum. Cette durée doit donc être déterminée avec précision.

Dans un second temps, il faut remarquer que l'ensemble des expériences présentées dans [Ukiwe & Kwok, 2005] concerne des surfaces sur lesquelles les liquides forment des angles forts. Ainsi, l'angle d'avancée est également fort et supérieur à l'angle d'équilibre. Toutefois, aucune comparaison entre expérience et modèle n'est effectuée avec des systèmes liquides / solides de forte mouillabilité ( $\theta_{\text{éq}}$  de l'ordre de 10 à 20°). Pour de tels couples, les angles d'avancée sont généralement faibles.

Nos modifications du modèle de [Ukiwe & Kwok, 2005] portent essentiellement sur ces deux observations.

#### Temps pour atteindre l'étalement maximum $t_{\max}$

Le diamètre maximum  $\beta_{\max}$  et le temps  $t_{\max}$  pour l'atteindre sont intimement liés. Les grandeurs physiques qui influent sur le premier paramètre ont donc des répercussions sur le second. Ainsi, l'augmentation de la vitesse d'impact  $U$  a pour conséquence la diminution linéaire de  $t_{\max}$  jusqu'à une valeur limite (figure III.43.a). A partir d'une vitesse seuil, mesurée environ à 2m/s,  $t_{\max}$  devient constant et est compris entre 2.5ms et 3ms et cet effet est indépendant de la mouillabilité ou de la viscosité du liquide.

La mouillabilité de la surface, tout comme pour  $\beta_{\max}$ , influence la valeur de  $t_{\max}$ . Plus elle est forte et plus  $t_{\max}$  sera important. Dans le cas d'une goutte d'eau distillée impactant à 3m/s, sur deux surfaces ayant respectivement comme angle de contact 5° et 180°,  $t_{\max}$  sera respectivement de 12ms et 3ms. L'écart entre  $t_{\max}(5^\circ)$  et  $t_{\max}(180^\circ)$  diminuera fortement avec l'augmentation de la vitesse d'impact, et atteindra 0ms à partir de  $U = 2\text{m/s}$ .

La représentation adimensionnelle,  $t_{\max}/t_i$ , montre que dans le cas de l'eau distillée et pour des angles de contact supérieurs à 50°,  $t_{\max}$  est indépendant de la surface (figure III.43.b) ; tous les

points sont regroupés suivant une seule courbe maîtresse. Toutefois, sur la surface non mouillante, à  $U = 1\text{m/s}$ , le rapport  $t_{\text{max}}/t_i$  ne correspond pas à la courbe maîtresse. De la même manière, les courbes portant sur les expériences sur des surfaces très mouillantes (ici silicium à  $\theta_{\text{eq}} = 5^\circ$  et le verre) sont parfaitement superposées entre elles mais décorréliées du reste des expériences (largement au dessus). En prenant la surface à  $5^\circ$  comme référence, la pente et l'ordonnée à l'origine diminuent respectivement de 42% et 84% (tableau III.4) lorsque le même angle d'équilibre passe de  $5^\circ$  à  $90^\circ$ . Cela peut s'expliquer par l'écart de comportement du mouillage de la surface par la lamelle. Les surfaces de verre ou de silicium à  $\theta_{\text{eq}} = 5^\circ$  sont quasiment totalement mouillantes pour l'eau distillée, ce qui se traduit par un angle de contact pendant l'étalement de la lamelle plus faible. Dans ce cas, la viscosité contribue majoritairement à dissiper l'énergie liée à l'impact.

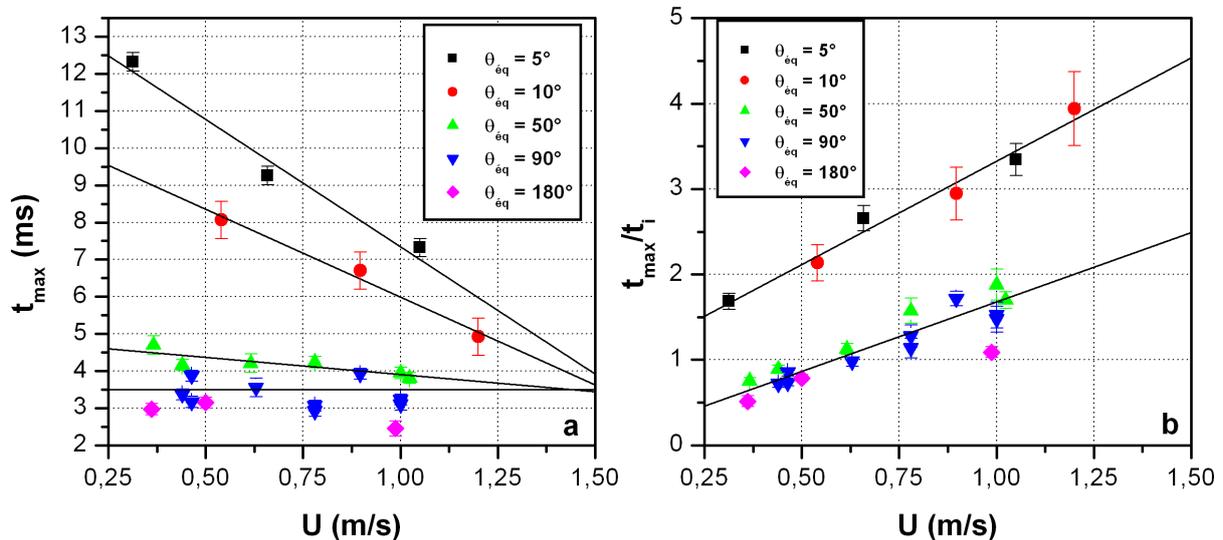


Figure III.43 : Evolution de  $t_{\text{max}}$  en fonction de la mouillabilité de la surface et de la vitesse d'impact pour une goutte d'eau distillée de 2.28mm de diamètre (a) en dimensionnelle et (b) en adimensionnelle.

La différence entre les surfaces avec un angle d'équilibre inférieur à  $10^\circ$  et les surfaces avec un angle d'équilibre supérieur à  $10^\circ$  peut s'expliquer par la différence entre surface partiellement ou totalement mouillantes. Il est également possible d'aborder ce point en considérant l'angle de contact dynamique durant la propagation de la lamelle avec dans un cas un angle « d'avancée » constant pour les surfaces partiellement mouillantes et dans un autre cas un angle qui diminue régulièrement pour les surfaces « totalement mouillantes ».

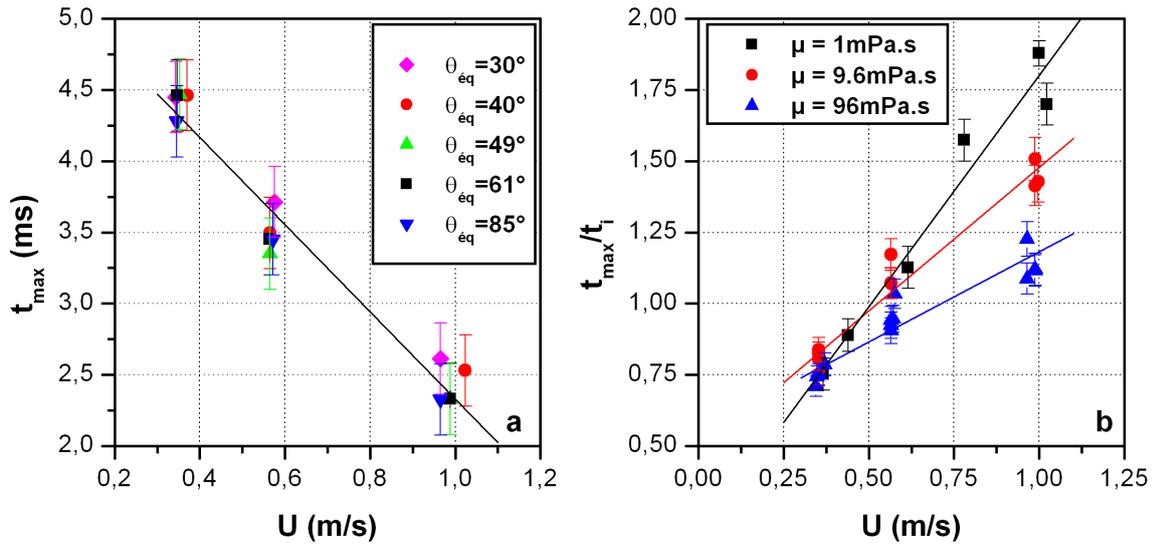


Figure III.44 : Evolution de  $t_{\max}$  pour une goutte d'un mélange d'eau distillée + 85% de glycérol,  $\sigma = 68 \text{ mN/m}$ ,  $\mu = 96 \text{ mPa.s}$ ,  $\rho = 1210 \text{ kg/m}^3$ , (b) effet de la viscosité sur l'évolution de  $t_{\max}$  en fonction de la vitesse d'impact.

La viscosité influence également la valeur de  $t_{\max}$  qui diminue au fur et à mesure qu'elle augmente. A une viscosité de  $96 \text{ mPa.s}$ ,  $t_{\max}$  varie toujours linéairement avec la vitesse d'impact  $U$  mais indépendamment de la surface (figure 44.a). De plus, on constate que le rapport  $t_{\max}/t_i$  est indépendant du fluide tant que les vitesses d'impact sont inférieures à  $0.5 \text{ m/s}$  (figure 44.b). Cela correspond également à la zone où  $t_{\max} < t_i$ . L'augmentation de la vitesse d'impact entraîne une augmentation linéaire de  $t_{\max}/t_i$  mais les pentes observées dépendent de la viscosité du liquide.

Fluide	$\sigma$ (mN/m)	$\mu$ (mPa.s)	$\theta_{\text{eq}}$ ( $^\circ$ )	a	b
Eau distillée	73	1	$5^\circ - 10^\circ$	2.4235	0.9028
Eau distillée	73	1	$50^\circ$	1.6241	0.1736
Eau distillée	73	1	$> 90^\circ$	1.3903	0.148
Eau distillée + 59% de glycérol	68	9.6	$50^\circ$	1.0076	0.4705
Eau distillée + 85% de glycérol	67	96	$50^\circ$	0.6337	0.5481

Tableau III.4: Valeurs des coefficients dans la loi  $t_{\max}/t_i = aU + b$  dans différents cas.

Pour deux gouttes de viscosité respectivement 1 et 96mPa.s, impactant à 1m/s,  $t_{\max}/t_i$  sera réduit de 34% (1.8 à 1.18). Précisons que ce rapport ne varie pas linéairement avec le couple ( $U, \mu$ ). Le tableau III.4 regroupe l'ensemble des coefficients obtenus. Ces observations permettent de conclure que  $t_{\max}$  est un paramètre dépendant à la fois de la vitesse d'impact, de la viscosité du liquide et de la mouillabilité de la surface.

Remarque : La zone où  $t_{\max} < t_i$  correspond à des nombres de Reynolds compris respectivement entre 320 et 570, 33 et 60 et 3 et 6 pour des fluides de viscosités respectives de 1, 9.6 et 96 mPa.s. Dans le cas des microgouttes,  $Re$  est compris entre 20 et 50. Pour le modèle d'étalement maximum, il faudra donc considérer un temps de dissipation de  $1t_i$  environ.

#### Angle d'avancée dynamique

La seconde remarque concernant ces modèles d'étalement maximum porte sur le choix de l'angle de contact. La valeur préconisée dans [Ukiwe & Kwok, 2005] est physiquement rigoureuse mais l'écriture de l'énergie potentielle au niveau des faces latérales de la goutte à l'étalement maximum fait apparaître un angle de contact dynamique différent qu'il faut mesurer. Quel choix s'impose ?

Pour répondre à cette question, il faut rappeler que, bien que les modèles se basent sur deux instants précis de l'impact, il faut tenir compte des états intermédiaires. C'est la courbure de la surface libre au niveau de la surface qui traduit la dissipation due à la ligne de contact. La prédiction de cette dissipation est importante pour le modèle. Expérimentalement, la lamelle se développe avec un angle de contact quasi constant et qui dépend des conditions opératoires. Il est également possible d'argumenter que la valeur de l'angle de contact à l'étalement maximum est très peu différent de  $\theta_{\text{dyn}}$  (supposé constant ou quasi constant sur la phase d'étalement). Seulement, pour un liquide peu visqueux s'étalant sur des surfaces mouillantes, l'écart peut être important. Lorsque la goutte arrive à son étalement maximum, dans les tous derniers instants de la phase d'étalement, la ligne de contact se déplace très légèrement. Cet effet, bien que « résiduel », modifie la valeur de l'angle de manière importante (entre 15 et 20°). Par ailleurs, c'est l'angle dynamique  $\theta_d$  qu'il faut considérer dans la caractérisation de la dissipation visqueuse. Sa valeur évolue peu pour une expérience donnée (de quelques degrés pour un fluide peu visqueux à 20 degrés pour un fluide de viscosité 96mPa.s). Une traduction correcte de l'ensemble de la dissipation visqueuse consiste donc à utiliser une moyenne des valeurs de cet angle sur la phase d'étalement, soit  $\theta_{\text{dyn}}$ . Rappelons également que cet angle est

différent de l'angle d'avancés (au sens thermodynamique) ou de l'angle à l'étalement maximum (voir précédemment).

We	Re	$\theta_{\text{éq}}$	$\theta_{\text{av}}$	$\theta_{\text{dyn}}$	$\beta_{\text{max}}$	$t_{\text{max}}$ (ms)	[Ukiwe & Kwok, 2005]	Modèle modifié
3.8	791	90	107	116	1.48	4.64	1.55	1.45
12.4	1434	90	107	114	1.66	3.55	1.98	1.91
31	2273	90	107	115	2.28	2.92	2.48	2.40
4.1	824	61	72	99	1.64	4.82	2.17	1.67
9.9	1282	61	72	95	1.90	4.7	2.42	2.03
30.7	2267	61	72	93	2.46	3.7	2.93	2.63
4.2	836	48	60	87	1.63	4.7	2.50	1.86
11.9	1413	48	60	86	1.87	4.2	2.76	2.24
32.9	2348	48	60	87	2.40	3.8	3.17	2.75
3.1	715	5	15	58	2.05	12.3	4.90	2.52
13.7	1514	5	15	55	2.75	9.3	3.96	2.92
34.7	2412	5	15	63	2.87	7.3	3.91	3.15
4.4	9.02	87	92	147	1.15	4.28	0.84	1.08
12.2	15	87	92	147	1.279	3.45	0.99	1.33
34.3	25.1	87	92	145	1.55	2.33	1.11	1.62
4.4	9	50	60	149	1.06	2.7	1.12	1.07
12.2	15	50	60	149	1.29	3.7	1.09	1.33
34.1	25	50	60	146	1.5	2.6	1.17	1.62

**Tableau III.5: Comparaison entre étalements maximum expérimentaux et étalement prédit, suivant le modèle de [Ukiwe & Kwok, 2005] et le modèle modifié à partir de nos travaux.**

Dans [Ukiwe & Kwok, 2005], les surfaces choisies sont toutes peu mouillantes ( $\theta_{\text{éq}} > 70^\circ$ ) et dans ce cas,  $\theta_{\text{av}}$  et  $\theta_{\text{dyn}}$  sont proches ; le modèle reste valable. C'est sur les substrats avec des angles de contact plus faibles que les écarts sont les plus importants. Pour une goutte d'eau impactant sur un substrat à  $\theta_{\text{éq}} = 5^\circ$ , l'angle d'avancée est de  $15^\circ$  alors qu'expérimentalement un angle moyen de  $55^\circ$  est mesuré lors du déplacement après contact.

Le modèle de [Ukiwe & Kwok, 2005] modifié est donc :

$$(We+12)\beta_{\max} = 8 + \beta_{\max}^3 \left[ 3(1 - \cos \theta_{\text{dyn}}) + \frac{3}{2} \delta \frac{We}{\sqrt{Re}} \right] \quad (\text{III.34})$$

avec  $\delta$  le temps adimensionnalisé pour atteindre l'étalement maximum et  $\theta_d$  l'angle dynamique.

Le tableau III.5 et la figure III.48 présentent la comparaison d'étalements expérimentaux avec le modèle de [Ukiwe & Kwok, 2005] et le modèle en tenant compte des modifications que nous avons proposées. Pour illustrer, dans le cas d'une goutte d'eau de 2.28mm de diamètre impactant à 0.35m/s sur un substrat de type 7 à  $\theta_{\text{éq}} = 90^\circ$ , nous observons un étalement maximum de 1.48 expérimental, 1.55 avec le modèle initial et de 1.45 avec le modèle modifié. Dans le cas d'une goutte d'eau de 2.28mm de diamètre impactant à 0.35m/s sur une surface à  $\theta_{\text{éq}} = 5^\circ$ , les valeurs obtenues sont, dans le même ordre, 2.05, 4.9 et 2.52.

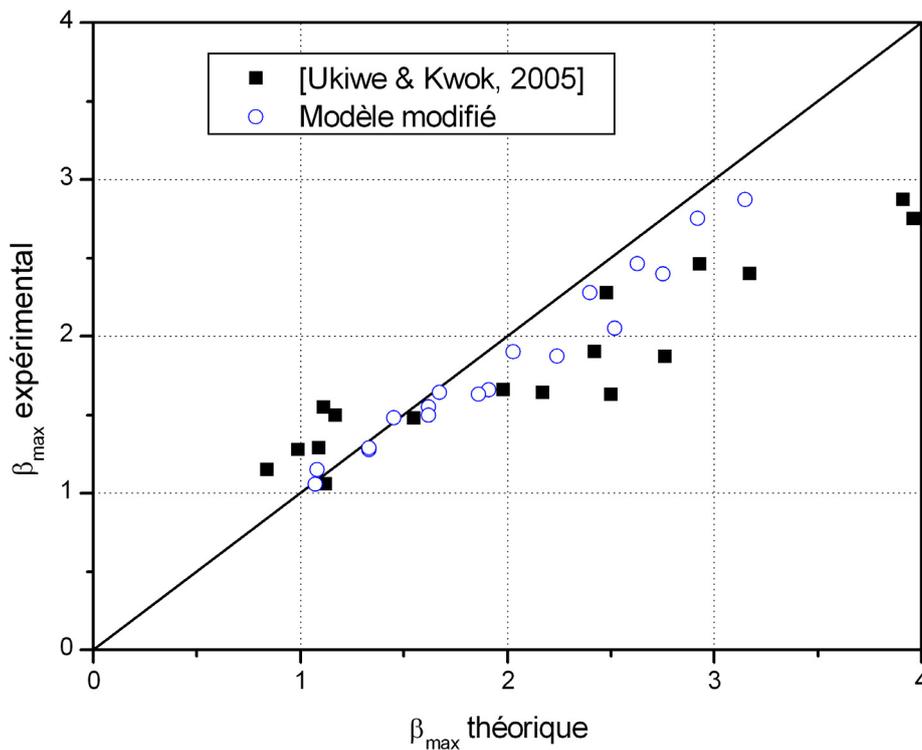


Figure III.45 : Comparaison entre mesures expérimentales et le modèle de [Ukiwe & Kwok, 2005] et le modèle modifié proposé ici.

La connaissance de  $\theta_{\text{dyn}}$  est alors nécessaire. La figure III.46 regroupe l'ensemble des valeurs mesurées pour  $\theta_{\text{dyn}}$  en fonction de la mouillabilité de surface d'impact (supports modèles et industriels) et de la viscosité (eau distillée, eau distillée + glycérol, formamide et encres

industrielles). Deux éléments sont remarquables. Premièrement, dès qu'un liquide présente un angle d'équilibre avec une surface supérieure ou égal à  $150^\circ$ , l'angle d'avancée dynamique  $\theta_d$  de la lamelle n'excèdera pas  $150^\circ$ , y compris dans le cas de non mouillage et indépendamment de la vitesse. De la même manière, lorsque la viscosité du fluide augmente, la lamelle se développe moins (voir plus du tout) et  $\theta_{dyn}$  augmente en se rapprochant également de  $150^\circ$ . L'effet de la mouillabilité de la surface sera d'autant moins visible que la viscosité sera forte (voire être nul à viscosité importante). A  $96\text{mPa.s}$ , c'est la viscosité qui contrôle l'écoulement, l'effet de la mouillabilité de la surface est inexistant. Le point de coordonnées  $(150, 150)$  est donc un point fixe de l'espace  $(0, \theta_{\text{eq}}, \theta_{\text{dyn}})$  et il nous servira de repère dans la suite. En second lieu, pour une viscosité donnée,  $\theta_d$  varie linéairement avec la mouillabilité de la surface. Cela est parfaitement visible dans le cas de l'eau distillée où cette tendance est très prononcée. En effectuant une régression linéaire, et en forçant son passage par le point fixe  $(150 ; 150)$ , nous obtenons une équation de droite pour chaque viscosité.

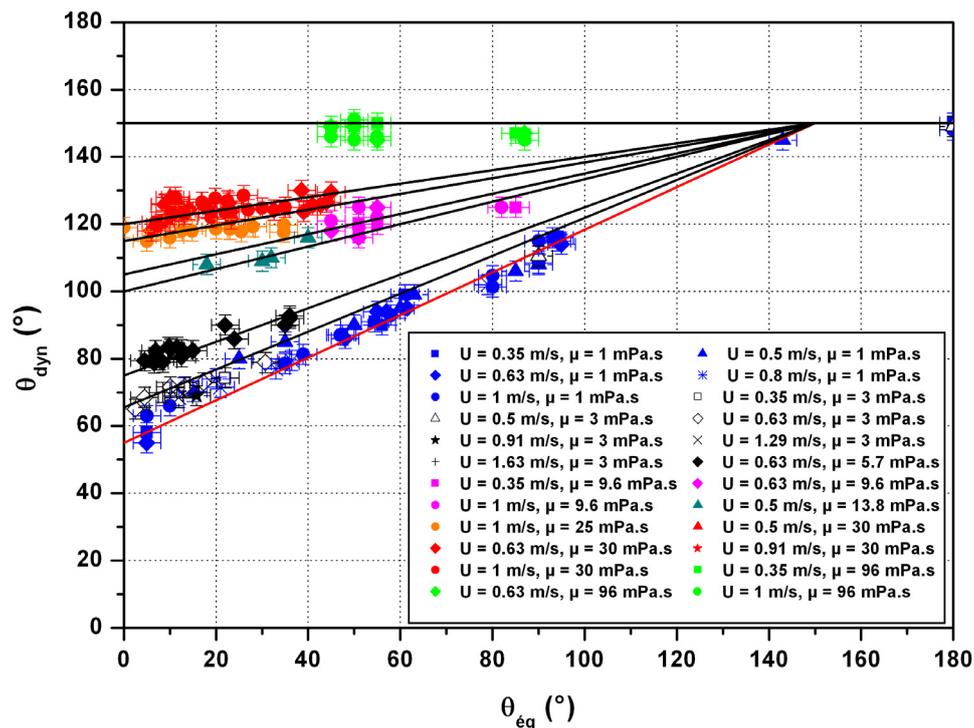


Figure III.46 :  $\theta_{\text{dyn}}$  en fonction de la mouillabilité de la surface pour des liquides de différentes viscosités.

En extrapolant ces droites au cas de mouillage total ( $\theta_{\text{eq}} = 0^\circ$ ), l'ordonnée à l'origine  $\theta_{\text{dyn}}(0)$  pour chaque viscosité est retrouvée. L'ensemble de ces ordonnées à l'origine est reporté sur la

figure III.47. Un comportement linéaire est observé mais avec l'existence de deux zones distinctes et séparées à environ  $\mu = 10\text{mPa.s}$ . Les équations pour ces deux zones sont :

$$\begin{aligned} \theta_{\text{dyn}}(0) &= 5.4217\mu + 48.34 \quad \text{pour } \mu < 10\text{mPa.s} \\ \theta_{\text{dyn}}(0) &= 0.5213\mu + 100.95 \quad \text{pour } \mu > 10\text{mPa.s} \end{aligned} \quad (\text{III.35})$$

Dans la première zone, la mouillabilité est prépondérante devant la viscosité et contrôle l'étalement. La dissipation est assurée par ce paramètre en modifiant de manière importante l'angle de contact dynamique en fonction de la nature du support. Dans la zone où  $\mu > 10\text{mPa.s}$ , la viscosité prend le pas sur les autres effets et réalise l'essentiel de la dissipation. Ces viscosités étant importantes, l'angle de contact dynamique le sera également et ce, durant toute la phase d'étalement.

Dans une gamme de viscosité allant de 1 à 100mPa.s, pour une expérience particulière à viscosité et angle de contact connus, il est possible d'avoir la valeur de  $\theta_{\text{dyn}}$  durant la phase d'étalement.

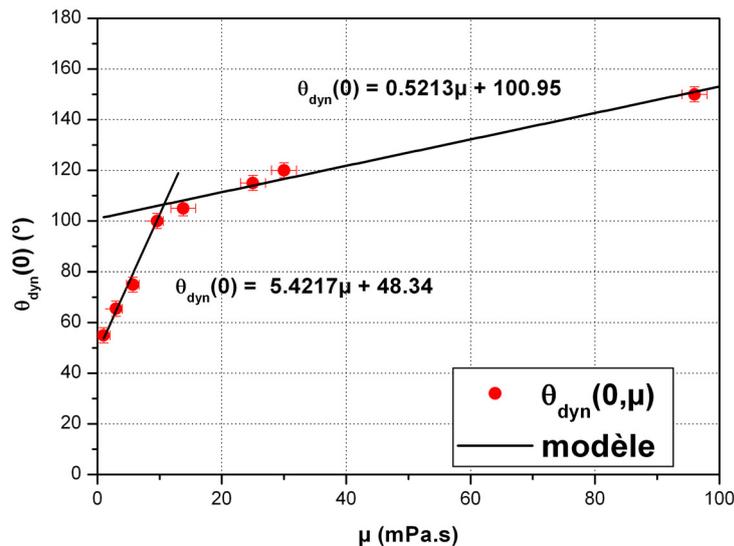


Figure III.47 : Evolution de  $\theta_a$  prédit sur des supports parfaitement mouillants en fonction de la viscosité du fluide.

Il est également intéressant de regarder l'évolution de  $\theta_{\text{dyn}}$  en fonction du nombre d'Ohnesorge  $Oh$  qui compare les effets visqueux aux effets capillaires. Dans ce cas, nous retrouvons l'enveloppe obtenue sur la figure III.46 à savoir que plus  $Oh$  augmente et moins l'intervalle de  $\theta_{\text{dyn}}$  est important (figure III.48). Ceci est vrai indépendamment de la vitesse d'impact et de la mouillabilité de la surface. La figure III.48 met clairement en évidence que

lorsque la viscosité domine les forces capillaires, la dissipation au niveau de la ligne de contact est principalement contrôlée par cette viscosité. A titre d'exemple, pour  $Oh = 0.00245$ ,  $\theta_{dyn}$  varie de  $55^\circ$  à  $150^\circ$ . En multipliant  $Oh$  par 9.5,  $\theta_{dyn}$  varie de  $5^\circ$  (ce qui correspond aux incertitudes de mesures) soit une division par 19.

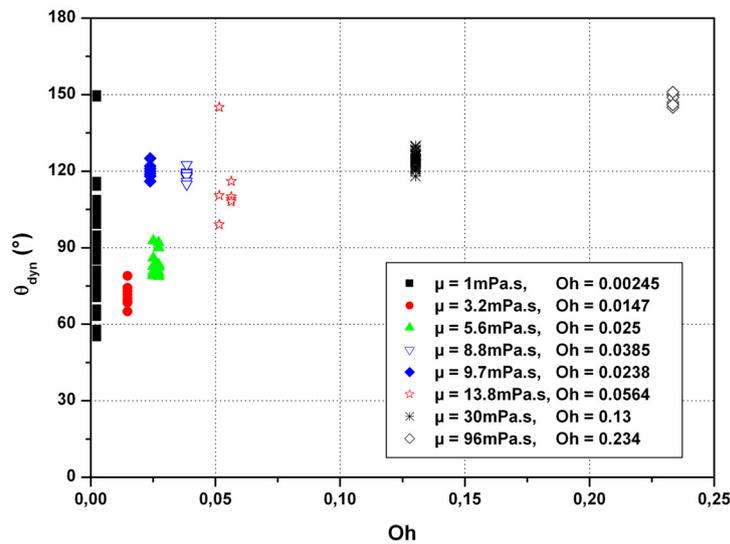


Figure III.48 : évolution de  $\theta_{dyn}$  en fonction du nombre d'Ohnesorge

### Méthode Variationnelle

La méthode variationnelle ([Bechtel et al, 1981 ; Kim & Chun, 2001]), présentée dans le chapitre I, est une méthode de simulation qui s'appuie sur la conservation d'énergie entre deux pas de temps sur une géométrie préférentielle pour la goutte de sphère tronquée. Cette méthode simple ne permet pas d'accéder aux profils transitoires mais conduit rapidement à l'évolution du diamètre et de la hauteur de contact. De plus, ce modèle n'utilise qu'un coefficient d'ajustement  $F_d$  et cela uniquement pour limiter l'étalement maximum. A partir du modèle de [Ukiwe & Kwok, 2005] que nous avons modifié combiné à la méthode variationnelle,  $F_d$  est modifié ce qui rend le modèle indépendant des mesures expérimentales.

Dans ce paragraphe, nous présentons quelques résultats de simulation avec cette méthode et nous les comparons aux observations expérimentales.

Sur les substrats mouillants, la corrélation entre diamètre de contact expérimental et diamètre simulé par la Méthode Variationnelle (MV) donne des résultats intéressants, que ce soit sur les gouttes de quelques dizaines de micromètres ou de quelques millimètres. La figure III.49 présente la comparaison entre le modèle variationnel et l'expérience dans le cas de

microgouttes d'encre à base d'eau ( $\mu = 3.21\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 33.2\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 64.7\mu\text{m}$ ,  $U = 1.21\text{m/s}$  et  $\rho = 996\text{kg/m}^3$ , obturation de  $2\mu\text{s}$ ). Sous chaque profil expérimental de cette figure est représentée la sphère tronquée correspondante à la simulation en conservant la mesure de diamètre.

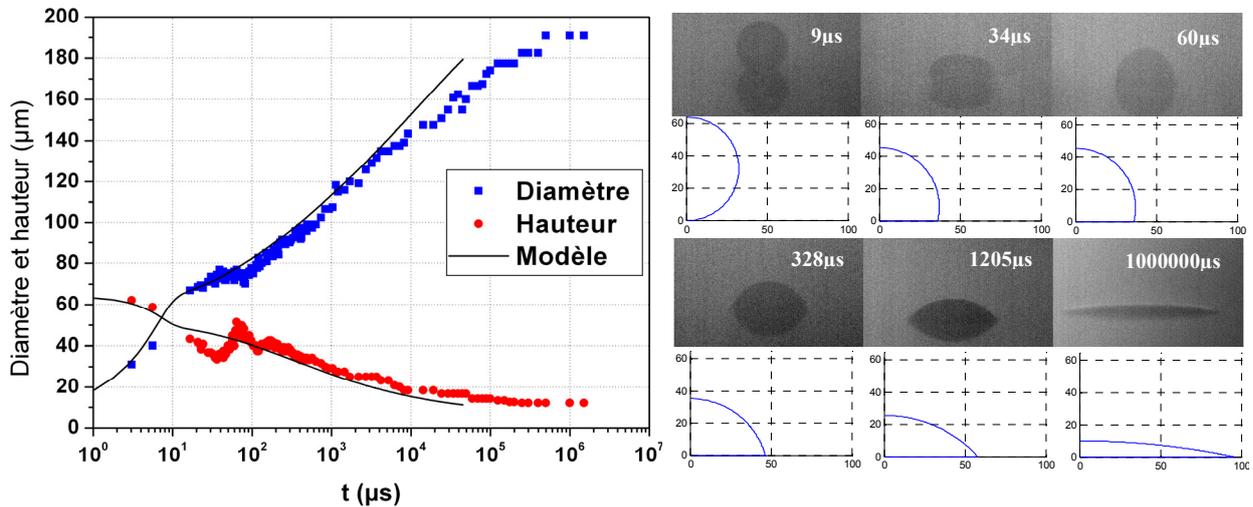


Figure III.49 : Impact d'une goutte d'encre base eau sur du verre,  $D_0 = 64.7\mu\text{m}$ ,  $U = 1.21\text{ m/s}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 10^\circ$ ,  $\mu = 3.2\text{ mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 33.2\text{ mN/m}$ ,  $\rho = 996\text{ kg/m}^3$ ,  $We = 2.85$ ,  $Re = 24$ ,  $F_d = 55$ .

La correspondance avec les profils théoriques est correcte sur la quasi-totalité de l'étalement excepté durant la phase de transition, où de légères différences sont visibles. Ce bon accord est principalement dû aux faibles déformations des microgouttes durant leur impact.

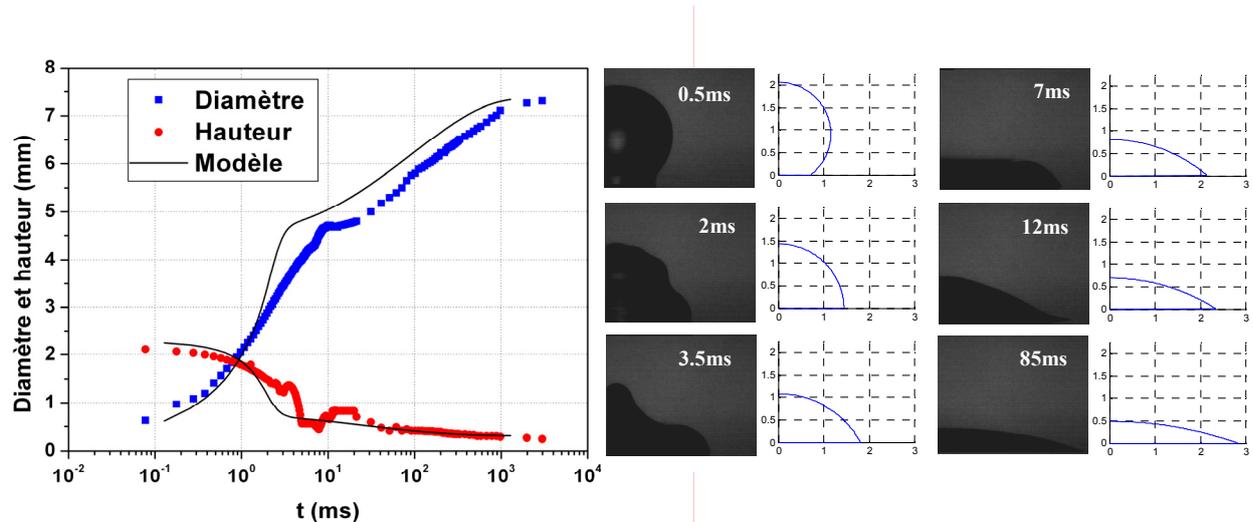


Figure III.50 : Impact d'une goutte d'eau distillée sur un support type 1,  $D_0 = 2.28\text{ mm}$ ,  $U = 0.35\text{ m/s}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 5^\circ$ ,  $\mu = 1\text{ mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 72\text{ mN/m}$ ,  $\rho = 1000\text{ kg/m}^3$ ,  $We = 3.8$ ,  $Re = 798$ ,  $F_d = 6$ , échelle identique entre les profils expérimentaux et les profils théoriques (mm).

Dans le cas des macrogouttes (figure III.50), les écarts sont plus importants entre les profils transitoires de la goutte et la forme de sphère tronquée. En particulier à  $t = 2\text{ms}$ , la goutte a la forme d'une sphère tronquée surmontant un cylindre.

Dans la phase d'étalement et la phase capillaire, les pentes théoriques d'évolution du diamètre, obtenues à partir des simulations sont en bon accord avec les pentes expérimentales. Le plus gros écart se situe dans le cas des macrogouttes pour lesquelles le diamètre maximum est atteint théoriquement à 4ms contre 10ms expérimentalement. Malheureusement, « l'avance » que prend le modèle sur l'expérience n'est pas compensée et les temps auxquels l'état final est atteint est beaucoup plus court théoriquement qu'expérimentalement. Enfin, dans les deux cas présentés ici, la phase de transition est effectivement observée bien que sa durée soit écourtée par le modèle.

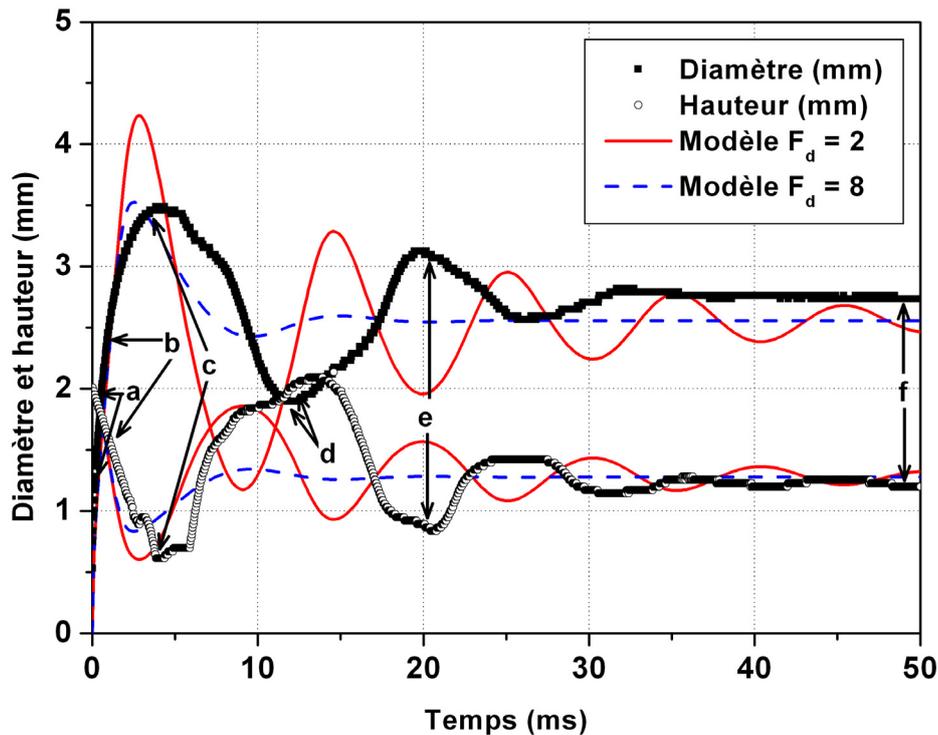


Figure III.51 : Comparaison de la méthode variationnelle avec une expérience pour deux coefficients de dissipation  $F_d$  différents (2 et 8 représentés respectivement en rouge et en traits discontinus bleu), fluide : eau distillé, Surface de type ( $\theta_{eq} = 80^\circ$ ),  $D_0 = 2.03\text{mm}$ ,  $U = 0.46\text{m/s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $We = 8$ ,  $Re = 944$ .

La Méthode Variationnelle présente les écarts les plus importants dans le cas d'une expérience d'impact sur une surface hydrophobe. En effet, si  $F_d$  est fixé pour atteindre

exactement l'étalement maximum, on n'observera peu ou pas de rebond du diamètre de contact. Le diamètre n'évoluant plus, la hauteur n'oscillera pas, contrairement à ce qui est observé expérimentalement. Le fait d'utiliser une géométrie particulière fait la force de cette méthode (temps de calcul, mise en œuvre simple etc...) mais dans les configurations où de fortes déformations sont observées, ce modèle ne peut rendre fidèlement le diamètre de contact ou la hauteur. Une solution consiste à diminuer le coefficient de dissipation  $F_d$ . Le diamètre maximum sera supérieur et le démouillage « théorique » suffisant pour observer les oscillations.

La figure III.51 présente les résultats expérimentaux pour une goutte d'eau distillée impactant à 0.56m/s sur une surface d'angle de contact  $80^\circ$  et deux simulations utilisant la Méthode Variationnelle pour respectivement  $F_d = 2$  et  $F_d = 8$ . Pour  $F_d = 2$ , le diamètre maximum est surestimé de 20% environ alors que pour  $F_d = 8$ , aucune oscillation n'est observable et le diamètre se stabilise à sa valeur d'équilibre immédiatement après le premier rebond. De plus,

et toujours dans le cas  $F_d = 2$ , l'amplitude et la fréquence des oscillations  $f = \sqrt{\frac{\sigma}{\rho D_0^3}}$  sont

légèrement inférieures aux observations expérimentales. Ce dernier point n'est pas surprenant à la vue des résultats précédents sur la fréquence d'oscillation des gouttes. La figure III.52 présente une comparaison entre les profils expérimentaux à des temps particuliers de l'impact (noté par ordre croissant a, b, c, d, e et f sur la figure III.51) et les sphères tronquées obtenues à partir du modèle variationnel pour respectivement  $F_d = 2$  et  $F_d = 8$ . Les diamètres prévus par le modèle sont utilisés pour dessiner la sphère tronquée correspondante à chaque profil expérimental.

De forts écarts entre profils expérimentaux et la forme de sphère tronquée sont observés, en particulier aux temps 1.5, 3 et 12 ms. Ceci explique la déviation entre la courbe théorique et les points expérimentaux dans la phase d'étalement et le régime de transition.

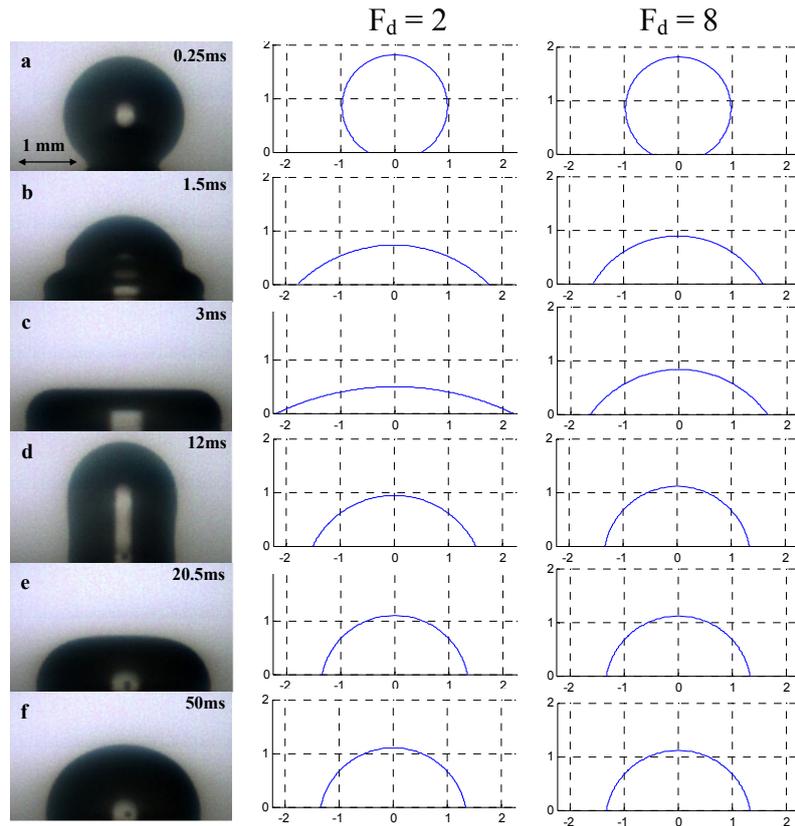


Figure III.52 : Comparaison entre les profils expérimentaux (colonne de gauche) et les sphères tronquées prévues par la méthode variationnelle pour  $F_d = 2$  (colonne centrale) et  $F_d = 8$  (colonne de droite), les indices notés sur les profils expérimentaux correspondent aux mêmes indices notés sur la figure III.52. L'échelle est le millimètre sur les profils expérimentaux et  $We = 6$  et  $Re = 944$ .

Nous avons également utilisé, dans ce modèle, une évolution dynamique pour l'angle de contact obtenue à partir de mesures expérimentales. Malheureusement les résultats ne sont pas concluants même si dans la partie capillaire de l'étalement, la courbe de simulation se rapproche plus de la courbe expérimentale. Dans les équations, l'angle de contact n'intervient que dans le terme dissipatif et pour fixer la valeur du diamètre de contact à l'équilibre. Il ne modifie en rien l'écoulement à l'intérieur de la goutte ni au niveau de la ligne de contact. Dès lors que l'inertie est importante (phase d'étalement, oscillation), le terme dissipatif (et donc l'angle de contact) ne modifie que très peu l'évolution du diamètre de contact.

Pour conclure, bien que les hypothèses géométriques de ce modèle soient très importantes et contraignantes, il rend des phénomènes fin de l'interaction fluide/substrat en prédisant l'existence des oscillations, la présence d'une phase de transition et les pentes des régimes asymptotiques sont correctement rendues. Toutefois, en raison des diverses limitations

développées précédemment, ce modèle ne peut être utilisé que pour obtenir rapidement et simplement des ordres de grandeurs cohérents.

### **Méthode d'intégrales de frontières**

L'une des principales limites de la Méthode Variationnelle est la nécessité d'avoir une géométrie fixée à priori, toute variation se faisant en respectant cette géométrie initiale. Elle ne permet donc pas d'obtenir les profils complexes des gouttes pendant les régimes transitoires contrairement, par exemple, à la méthode d'intégrales de frontières. L'utilisation de cette méthode de simulation a fait l'objet d'un travail particulier au début de la thèse. Nous reprenons donc ici le travail effectué (chapitre I).

Le principal apport que nous avons effectué se situe au niveau du mouvement de la ligne de contact en intégrant une des lois approximatives citées dans [Shikhmursaev, 1997] (équation I.51). Malheureusement, aucun apport n'a été effectué ensuite.

Cette méthode de simulation permet de prédire l'intégralité des profils transitoires comme illustré sur la figure III.53 dans la cas d'une microgoutte d'encre à base d'eau ( $\rho = 996\text{kg/m}^3$ ,  $\mu = 3.2\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 33.2\text{mN/m}$ ) de  $50\mu\text{m}$  de diamètre, impactant à  $4\text{m/s}$  sur une surface hydrophobe ( $70^\circ$ ) soit  $We = 24$  et  $Re = 62$ . Précisons que l'angle d'équilibre n'est pas atteint sur ces simulations car le temps de calcul était limité à  $50t^*$ . En outre, plus l'angle dynamique est proche de l'angle d'équilibre et moins les mouvements de la ligne de contact sont rapides, d'autant qu'il n'y a plus d'inertie après  $t^* = 2.5$ . Notons toutefois que l'angle d'avancée dynamique sur les profils simulés correspond effectivement à la valeur mesurée expérimentalement et à la valeur prévue par le diagramme de la figure III.46, à savoir  $110^\circ$  environ. Ce modèle tient bien compte de la relation vitesse / angle de contact obtenue à partir de mesures expérimentales dans l'évolution du diamètre de contact.

Ceci étant, les profils sont en bon accord qualitatif avec les résultats expérimentaux présentés dans le cas de la figure III.17 où les conditions expérimentales sont proches. Ce bon accord est à porter au crédit de la très forte influence de la viscosité. Pour des nombres de Reynolds plus importants, les prévisions de ce modèle restent cohérentes avec d'autres méthodes de simulations mais les résultats ne sont plus en accord avec l'expérience. En effet, la comparaison des profils obtenus à l'aide de la MIF avec les résultats de [Fukai et al, 1993] ( $We = 10$  et  $Re = 500$ ), où d'autres méthodes sont utilisées pour résoudre les équations de Navier et Stokes, montre un accord correct. Dans ce cas limite, les deux modèles prédisent la scission de la goutte en deux gouttes identiques (l'interface fluide/gaz touche l'interface

fluide/solide). Toutefois, ceci n'arrive pas en pratique et constitue donc une limitation sérieuse à la MIF.

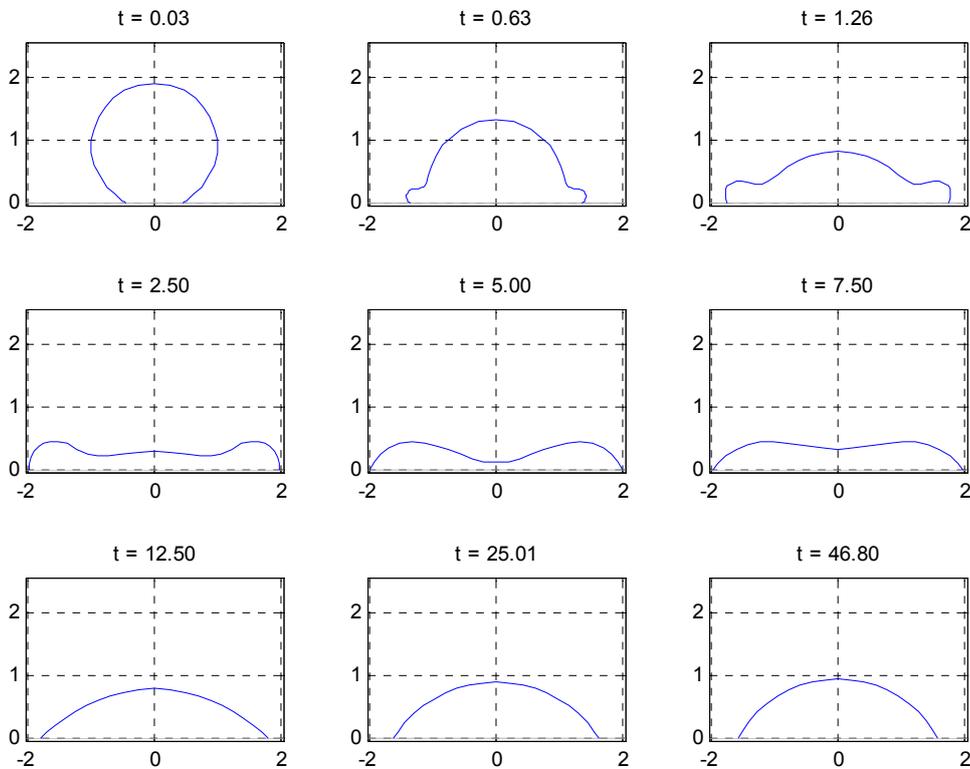


Figure III.53 : Simulation avec la MIF sur l'impact d'une goutte de  $50\mu\text{m}$ , impactant à  $4\text{m/s}$  sur une surface hydrophobe ( $\theta_{\text{eq}}=70^\circ$ ) en temps adimensionnel,  $We = 24$ ,  $Re = 62$ .

En définitive, pour des nombres de Weber supérieurs à 60 et à partir des nombres de Reynolds proches de 150, le modèle n'est plus représentatif de la réalité. Plusieurs configurations sont observables d'un point de vue numérique et ne correspondent pas aux observations expérimentales. A titre d'exemple, ce modèle prédit que l'interface liquide/gaz s'approche fortement de l'interface liquide/solide provoquant la scission en deux de la goutte (cas  $We = 10$ ,  $Re = 200$ ) ou encore qu'une goutte résiduelle soit éjectée au sommet de la goutte dans les premiers instants de l'impact (cas  $We = 2.8$ ,  $Re = 684$ ). Si l'on augmente encore  $We$  et  $Re$ , un problème lié à la ligne de contact se pose. Comme nous l'avons dit par ailleurs, la vitesse initiale sert à adimensionnaliser la loi de variation d'angle de contact et lorsque l'on s'approche d'une vitesse critique de  $4\text{ m/s}$ , on observe un décrochement d'une couronne de liquide. Ce phénomène est dû à l'inexistence de frottement à l'intérieur de la goutte. Dans le cas contraire, la viscosité empêcherait un développement trop rapide de la lamelle et l'apparition

de gouttes éjectées. Ces limitations montrent la nécessité de travailler à l'amélioration de ce modèle dans le cas précis de l'impact de goutte sur surface solide. Par exemple, l'intégration dans le modèle d'une loi complète de  $\theta_d$ , tenant compte de l'ensemble des conditions expérimentales, des paramètres physico-chimiques du liquide et de l'interaction liquide / solide, devrait permettre d'améliorer sensiblement le modèle. En l'état actuel, seuls les problèmes axisymétriques peuvent être considérés ce qui est naturellement une limitation dans beaucoup de nos applications.

## Chapitre IV

### Substrats Hétérogènes

#### Hétérogénéités chimiques

Dans cette partie, nous étudions les aspects liés aux hétérogénéités des surfaces d'impact, ce qui constitue un problème relativement courant ([Michel et al, 2005]). Ces surfaces restent les plaques de silicium sur lesquelles un traitement chimique est réalisé mais à l'aide des procédés de masquage, démasquage et silanisation. Différentes configurations géométriques sont réalisées, à savoir une plaque partagée en deux parties égales mouillante / non mouillante (figure IV.1.a) et une surface sur laquelle des cercles mouillants sont entourés d'une zone non mouillante (figure IV.1.b). Cette dernière est séparée en différentes zones, elles mêmes constituées de cercles mouillants. Le diamètre des cercles des différentes zones est respectivement de 4mm, 3mm, 2mm, 1mm, 500 $\mu$ m, 250 $\mu$ m, 150 $\mu$ m, 120 $\mu$ m, 80 $\mu$ m, 60 $\mu$ m et enfin 40 $\mu$ m. Pour chacune des deux configurations de la figure IV.1, la surface mouillante est de l'oxyde de silicium ( $\theta_{\text{eq}} = 50^\circ$  environ avec de l'eau distillée) et la surface non mouillante est obtenue en greffant la fonction 7 (tableau II.1, ( $\theta_{\text{eq}} = 95^\circ$  environ avec de l'eau distillée)).

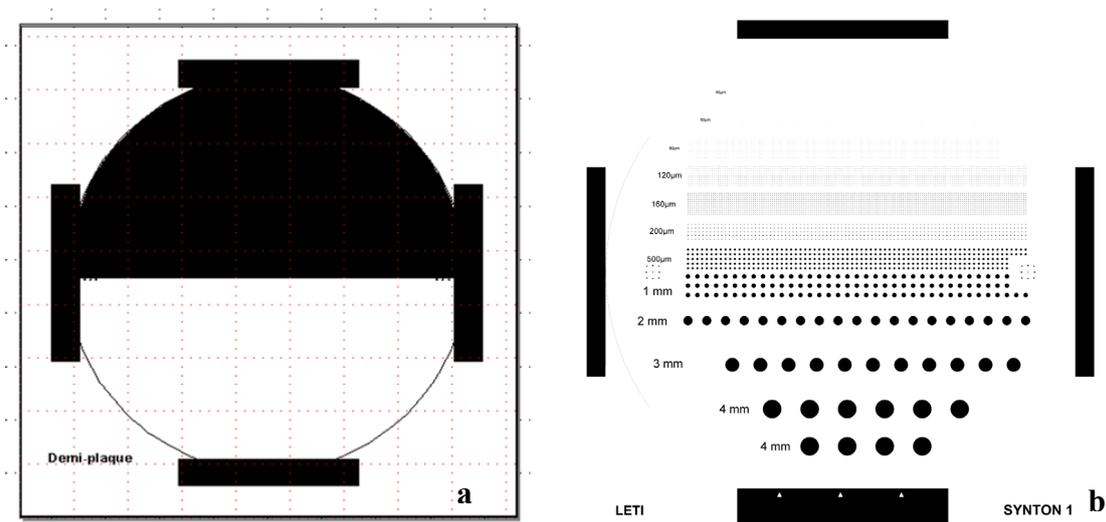


Figure IV.1: Configuration géométrique des substrats silicium chimiquement hétérogènes, partie mouillante en noir, partie non mouillante en blanc.

## Confinement de fluide par variation de mouillabilité

Dans le chapitre consacré aux applications (chapitre V), une partie du procédé consiste à confiner un volume donné dans une zone particulière de la surface. Pour satisfaire à cette application, une surface du type de la figure IV.1.b peut, par exemple, être utilisée. Nous présentons dans un premier temps le comportement en statique avant de nous intéresser au cas d'une goutte arrivant sur la surface avec une vitesse initiale. Dans un premier temps, nous nous focalisons sur le cas centré (dans ce paragraphe), par la suite nous nous intéressons au cas où la goutte est en contact avec les deux mouillabilités dès l'instant de l'impact. Par ailleurs, deux liquides sont utilisés, de l'eau distillée comme référence et du Diméthyl Sulfoxyde (DMSO) par cohérence avec l'application de synthèse in situ (chapitre V).

### Comportement en statique

La première approche consiste à observer l'état statique du liquide sur la surface. Pour cela, nous déposons, avec un système Digidrop® un volume de liquide parfaitement connu et contrôlé sur des sites fonctionnalisés circulaires et mouillants de respectivement 3 et 4mm,. Sur la surface non mouillante, une goutte d'eau distillée possède un angle de  $95^\circ$  et le DMSO a quant à lui, un angle de  $77^\circ$ . Nous augmentons progressivement le volume de liquide par palier de  $1\mu\text{l}$ , les profils obtenus sont enregistrés afin de mesurer les angles de contact. En fonction de la mouillabilité de la partie hydrophile et de la partie hydrophobe, du diamètre de la zone et du volume de liquide déposé, 4 configurations différentes apparaissent.

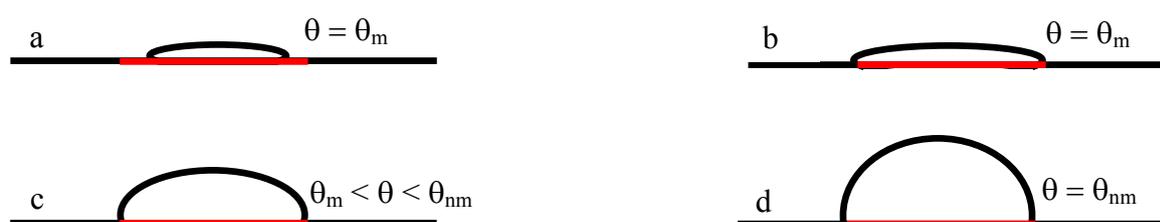


Figure IV.2 : Les 4 configurations différentes et angles de contact observables (partie mouillante en rouge, partie non mouillante en noire).

Précisons que la goutte conserve toujours sa forme de sphère tronquée. Dans le cas d'un volume de liquide trop peu important, l'intégralité de la surface n'est pas recouverte et la goutte n'est en interaction qu'avec une seule surface homogène. L'angle de contact mesuré

correspond donc à l'angle de contact sur la surface mouillante  $\theta_m$  (figure IV.2 configuration a). A chaque augmentation du volume, l'angle de contact excède la valeur de l'angle d'avancée, la ligne de contact se déplace pour que la goutte retrouve une position d'équilibre. Le diamètre croît ainsi jusqu'à atteindre la taille  $D_s$  du site fonctionnalisé. L'angle de contact reste celui du liquide avec la surface mouillante (figure IV.2 configuration b), mais en augmentant encore le volume, la goutte se trouve dans une phase intermédiaire. En effet, la zone extérieure hydrophobe retient le fluide à l'intérieur du site mouillant. La ligne de contact ne peut ni avancer ni reculer, du fait de la présence de ces deux mouillabilités ; la goutte est dans un état d'équilibre de force. L'angle de contact sur la surface mouillante est supérieur à l'angle d'avancée sur cette même surface mais il reste inférieur à l'angle d'avancée sur la surface non mouillante  $\theta_{nm}$ . Enfin, l'augmentation du volume se traduit par l'augmentation à la fois de la hauteur de la goutte et de l'angle de contact (compris entre  $\theta_m$  et  $\theta_{nm}$ ) alors que le diamètre reste égal à  $D_s$  (figure IV.2 configuration c). Cette configuration correspond à un état spécifique.

La dernière configuration correspond au cas où le volume de liquide permet d'obtenir une goutte dont le diamètre est  $D_s$  et avec un angle d'équilibre égal à  $\theta_{nm}$  (figure IV.2 configuration d). Par la suite, tout ajout de liquide conduit à augmenter le diamètre de contact et par conséquent à excéder la taille du site mouillant.

Dans le cadre de nos applications, les gouttes utilisées sont éjectées sur la surface et elles sont sphériques avant l'impact. Par conservation volumique, il est possible de ramener le volume de liquide déposé, à une goutte unique et « équivalente » en vol, et par conséquent au calcul de son diamètre  $D_0$ . Cela nous permet simplement de suivre l'évolution du volume et de déterminer ainsi le diamètre maximum de la goutte que peut contenir le site mouillant.

A titre d'exemple, un volume maximum  $V = 15 \mu\text{l}$  peut être contenu sur un site de 4mm. Le

$$\text{diamètre de la goutte fictive en vol est } D_0 = \left( \frac{6V}{\pi} \right)^{\frac{1}{3}} = 3.06 \text{ mm}$$

Le diamètre fictif est calculé en inversant l'équation II.21 et en remplaçant  $D_{\text{moy}}$  par  $D_s$  (cela sous-entend que la goutte sur le support est toujours considérée comme une sphère tronquée). Nous obtenons alors la relation suivante :

$$D_0 = \left[ \frac{(1 - \cos(\theta))^2 (2 + \cos(\theta))}{4 \sin(\theta)^3} \right]^{\frac{1}{3}} D_s \quad (\text{IV.1})$$

où  $\theta$  est l'angle de contact avec la surface.

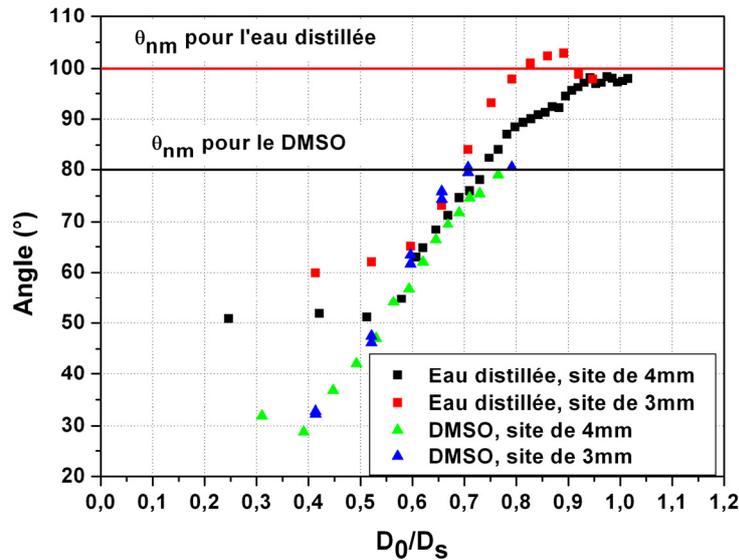


Figure IV.3 : Angle de contact d'équilibre pour différents volumes de fluide.

Dans cette configuration de surface hétérogène, l'échelle de longueur caractéristique du problème est le diamètre du site. En rapportant le diamètre en vol « équivalent » à ce diamètre du site, nous obtenons un comportement indépendant de la taille de la goutte. Les résultats sont alors extrapolables au cas des microgouttes, qui sont les gouttes utilisées dans l'application.

La figure IV.3 présente l'évolution de l'angle de contact en fonction du rapport  $D_0/D_s$  (ou autrement dit, la variation du volume déposé rapporté à  $D_s$ ). Sur cette figure, les quatre configurations présentées précédemment sont également repérables.

Pour les deux liquides de référence, un palier est observable au début de la courbe. Pour l'eau distillée, tant que  $D_0/D_s$  est inférieur à 0,55 environ, l'angle est constant et égal à l'angle sur la surface mouillante. De la même manière, la valeur est de 0,45 pour le DMSO. Ces deux valeurs correspondent au volume d'une goutte dont le diamètre sur la surface est  $D_s$  et dont l'angle correspond à l'angle sur la partie mouillante pour chacun des deux liquides. Ces valeurs sont en accord avec le calcul théorique réalisé à partir de l'équation IV.1 sous sa forme sans dimension. En utilisant les angles mesurés initialement sur la surface mouillante, respectivement  $50^\circ$  et  $30^\circ$  pour l'eau distillée et le DMSO, le rapport  $D_0/D_s$  vaut 0,57 et 0,47. A partir de ces valeurs, le diamètre de contact a atteint les bords du site fonctionnalisé, la zone non mouillante va contenir le fluide. La goutte se trouve dans la zone intermédiaire

d'équilibre entre les deux surfaces et durant laquelle l'angle de contact va augmenter. La croissance de cet angle est quasi linéaire, indépendamment du diamètre du site et du fluide considéré. Expérimentalement, la croissance de l'angle de contact s'interrompt pour un rapport de  $D_0/D_s$  respectivement de 0.7 et 0.85 pour le DMSO et l'eau distillée (figure IV.3). En comparant ce résultat avec le suivi de l'évolution du diamètre de contact, un effet similaire est constaté (figure IV.4). Dès que le diamètre augmente à nouveau, cela signifie que la goutte a excédé la zone mouillante, et qu'elle se trouve en contact avec les deux surfaces. Une fois de plus, les valeurs expérimentales correspondent aux valeurs prédites théoriquement à partir de l'équation IV.1. En prenant comme angles de contact  $77^\circ$  et  $95^\circ$ , nous obtenons 0.71 et 0.83 pour respectivement le DMSO et l'eau distillée.

L'ensemble de ces résultats montre que le problème du confinement est uniquement contrôlé par la mouillabilité de la surface extérieure hydrophobe. Plus l'angle de contact entre le liquide et cette surface sera fort, plus le volume de fluide contenu sur le site sera important.

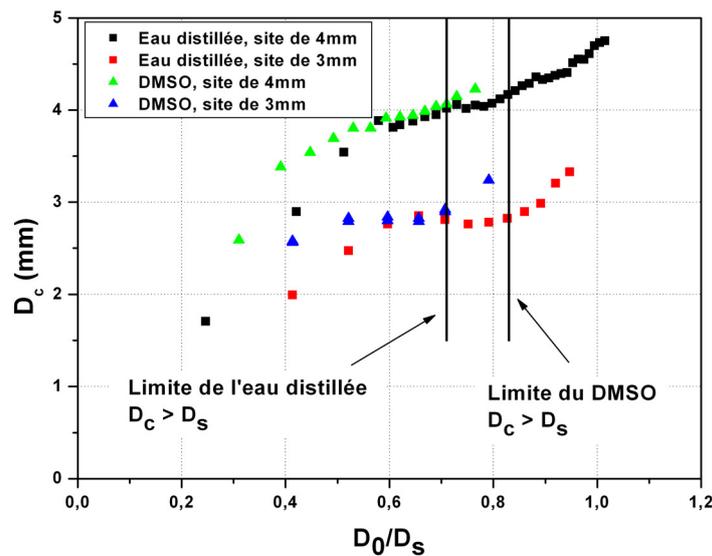


Figure IV.4 : Angle de mouillage en fonction de la taille du site et du volume de fluide.

## Comportement dynamique

Dans certains cas, la surface sur laquelle la goutte vient impacter, n'est pas parfaitement homogène. De la même manière, la taille et la forme de ces hétérogénéités sont variables. Enfin, la goutte n'atterrit pas toujours au centre d'une hétérogénéité, mais peut être en contact à la fois avec une zone hydrophile et une zone hydrophobe. Dans de telles situations, et en fonction du positionnement de la goutte à l'instant de l'impact (impact centré ou décentré),

plusieurs comportements sont observables. Nous nous intéressons dans ce paragraphe à l'influence de la discontinuité de mouillabilité sur le comportement dynamique de la goutte dans les configurations particulières d'impact centré ; le problème de la configuration décentrée sera abordé dans le point 2. Précisons que lors de l'impact d'une goutte de manière centrée sur un site mouillant et entouré d'une zone non mouillante, deux configurations sont envisageables. Elles dépendent des conditions expérimentales de taille de site, de vitesse d'impact et de volume de liquide, de tension de surface et de viscosité. En effet, si le diamètre maximum de l'étalement est supérieur à la taille du site mouillant, la goutte se trouve en interaction dynamique avec les deux types de surfaces. Dans le cas contraire, le mécanisme est identique au cas de l'impact présenté dans le chapitre précédent. Nous étudions dans ce paragraphe ces deux configurations en utilisant pour les essais, les surfaces chimiquement texturées présentées sur la figure IV.1.b.

$$\beta_{max} \cdot D_0 < D_s$$

La configuration idéale correspond à l'impact parfaitement centré d'une goutte. Les conditions expérimentales sont telles que le diamètre maximal est inférieur ou égal à la taille du site. La goutte s'étale sur une partie de la zone mouillante uniquement (volume de fluide insuffisant et/ou angle d'équilibre trop important), ou sur sa totalité. Pour cette dernière possibilité, cela peut être le cas directement après l'étalement maximum ( $\beta_{max} = D_s$ ) ou via une phase d'étalement sous l'action des forces capillaires ( $\beta_{max} < D_s$  et  $\theta_d > \theta_{\acute{e}q}$ ). La figure IV.5 représente schématiquement les états d'équilibres possibles. La goutte n'est en interaction qu'avec une seule surface. La configuration est identique à celle largement présentée dans le chapitre III, à savoir « impact et étalement sur une surface homogène ».

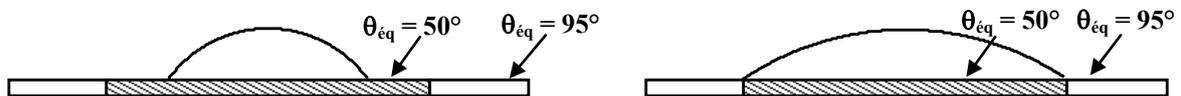


Figure IV.5 : Vue de côté schématique des deux types d'état final lors de l'impact centré sur une surface mouillante (zone hachurée,  $\theta_{\acute{e}q} = 50^\circ$ ) de forme circulaire entourée d'une surface non mouillante ( $\theta_{\acute{e}q} = 95^\circ$ ), dans le cas où le diamètre maximum est insuffisant pour excéder le site mouillant.

$$\beta_{max} \cdot D_0 > D_s$$

Dans un second cas, la goutte impacte toujours au centre du site fonctionnalisé. Cependant son volume, sa vitesse et ses caractéristiques physiques sont tels que le diamètre maximal excède la surface mouillante. La goutte interagit avec deux surfaces, dont la mouillabilité est différente. Dans les premiers instants de l'impact, elle ne voit que la surface mouillante. Dès que le diamètre de contact devient supérieur au diamètre du site, la goutte se trouve en partie sur une surface non mouillante et l'angle d'avancée de la surface augmente fortement. Ce changement brusque de l'interaction au niveau de la ligne de contact modifie également l'état d'équilibre de la goutte : l'angle de contact final (pour une goutte d'eau distillée) est passé de 50° à 95°. Dans cette configuration, les éléments prépondérants qui contrôlent les mécanismes au niveau de la ligne de contact et fixent les limites pour les états admissibles de la goutte, sont les angles d'équilibre, d'avancée et de reculée sur la partie non mouillante de la surface.

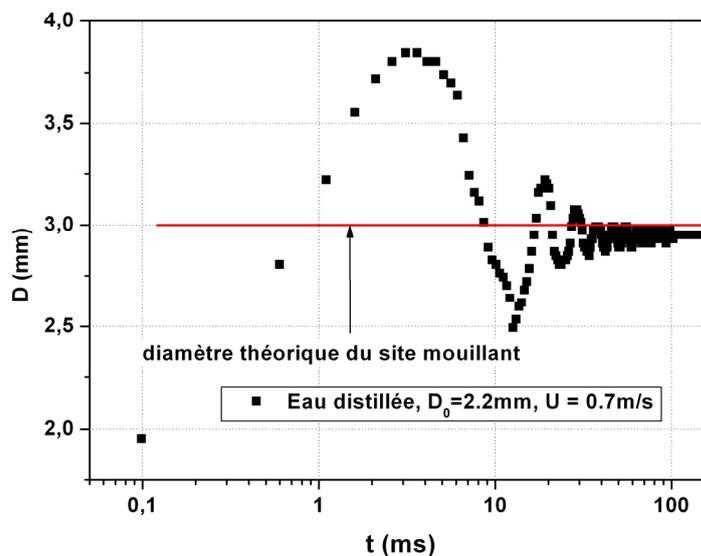


Figure IV.6 : Impact d'une goutte d'eau distillée sur une surface hétérogène, site de 3mm de diamètre

Si les conditions expérimentales le permettent (volume et vitesse d'impact suffisants, etc...), le diamètre de contact maximum avec la surface non mouillante est à la fois supérieur au diamètre du site et au diamètre d'équilibre sur cette surface. Un démouillage de la ligne de contact est observé, la goutte est finalement complètement contenue à l'intérieur du site (configuration de la figure IV.7.a). L'angle de contact est supérieur à l'angle d'avancée sur la surface mouillante, mais inférieur à l'angle d'avancée sur la surface non mouillante. L'état d'équilibre obtenu est un état intermédiaire ; précisons d'une part que le diamètre de contact

obtenu est équivalent à la taille du site mouillant, d'autre part que l'angle d'équilibre est mesuré à  $83^\circ$  (contre  $95^\circ$  normalement sur la surface non mouillante). Dans cet exemple d'une goutte d'eau distillée impactant sur une surface hétérogène, un démouillage de la ligne de contact est effectivement observé sur la partie non mouillante.

Pour des conditions expérimentales particulières (volume, vitesse etc...), l'étalement maximum peut être équivalent au diamètre final de la goutte de volume  $V$  sur une surface d'angle d'équilibre  $\theta_{nm}$  (angle de contact compris dans la zone d'hystérésis). La goutte se trouve dans un état d'équilibre stable et ne se déplacera plus (figure IV.7.b).



**Figure IV.7 : Vues de côté schématisques des deux types d'état final lors de l'impact centré sur une surface mouillante (zone hachurée,  $\theta_{\text{eq}} = 50^\circ$ ) de forme circulaire entourée d'une surface non mouillante (zone blanche,  $\theta_{\text{eq}} = 95^\circ$ , dans le cas où l'étalement maximum est supérieur au diamètre du site mouillant**

Enfin, dans le cas où l'étalement maximum excède l'état d'équilibre de la goutte sur la surface non mouillante mais avec cette fois un diamètre d'équilibre supérieur au diamètre de l'hétérogénéité ( $D_{\text{eq}} > D_s$ ), un démouillage de la ligne de contact est également observé. La goutte excèdera toujours la taille du site et le diamètre final sera compris entre le diamètre d'avancée  $d_a$  et le diamètre de reculée  $d_r$  sur la surface non mouillante (figure IV.8). Nous nous trouvons de nouveau dans la configuration présentée sur la figure IV.7.b avec  $\theta_m = 50^\circ$  et  $\theta_{nm} = 95^\circ$ .

Le diamètre maximum sur la surface hétérogène est compris entre le diamètre maximum sur la surface homogène mouillante et la surface homogène non mouillante. Nous mesurons respectivement pour ce diamètre maximum, dans le même ordre, 3.1mm, 3.8mm et 2.97mm. La mouillabilité de la surface est le seul paramètre variable dans cette expérience (aux incertitudes de reproduction de l'expérience), la ligne de contact est freinée en fonction de la surface sur laquelle elle se déplace. En conséquence, et d'après ce que nous avons montré préalablement dans le chapitre III, l'étalement maximum est plus important sur la surface homogène à  $\theta_{\text{eq}} = 50^\circ$  (et donc la ligne de contact est moins freinée) que sur la surface

homogène à  $\theta_{\text{éq}} = 95^\circ$ . La surface hétérogène étant composée des deux zones distinctes, la ligne de contact est freinée en fonction de la mouillabilité de la partie sur laquelle elle s'étend. L'influence de la surface est observée à partir de  $0.1t_i$  (cf Chapitre III), soit 0.45ms après l'impact. A cet instant, le diamètre dans l'expérience de la figure IV.8 est de 1.5mm. La partie mouillante ne peut influencer l'étalement que sur 0.5mm soit sur 16.6% en temps de l'étalement. Ceci explique en grande partie le faible écart entre l'étalement maximum sur la surface non mouillante et l'étalement sur la surface hétérogène (< 5%). Finalement, et uniquement pour une surface du type de la figure IV.1.b, l'étalement maximum sur une surface hétérogène est composite entre celui des deux surfaces homogènes.

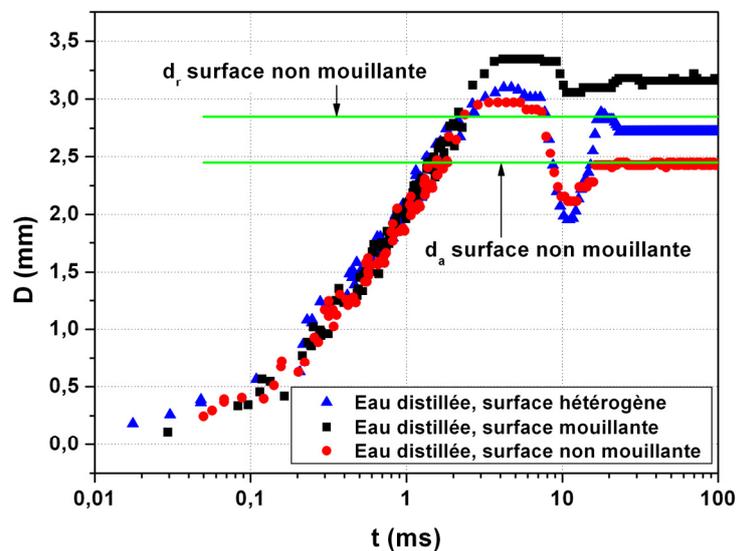


Figure IV.8 : Comparaison de l'évolution du diamètre de contact lors de l'impact à  $U = 0.44\text{m/s}$  d'une goutte d'eau distillée de 2mm de diamètre sur une surface homogène non mouillante ( $\theta_{\text{éq}} = 95^\circ$ ) ( $\bullet$ ), une surface homogène mouillante ( $\theta_{\text{éq}} = 50^\circ$ ) ( $\blacksquare$ ) et une surface hétérogène ( $D_s = 2\text{mm}$ ) composée des deux premières surfaces ( $\blacktriangle$ ),  $We = 5.3$ ,  $Re = 880$ .

Cette expérience montre que la surface extérieure au site (surface non mouillante) contrôle en grande partie l'étalement. Cela indique (mais on ne peut pas l'affirmer avec certitude) que le comportement global de la goutte, et plus précisément le diamètre final (lorsque la goutte excède la taille du site), est uniquement contrôlé par la surface non mouillante. La zone centrale de la goutte accepte l'étalement alors qu'à sa périphérie, la surface s'y oppose. Le diamètre maximal sur la surface non mouillante est 4.3% plus faible que celui de la surface hétérogène, ce qui est proche des incertitudes de mesures. Il est impossible d'en être certain,

d'autant plus que s'il y a une influence de la zone mouillante, elle se situe pour cette expérience durant la phase cinématique et nous avons montré précédemment que dans cette phase, la mouillabilité n'était pas un paramètre de contrôle du problème (chapitre III). Pour se convaincre de l'influence effective de cette zone, il suffit de comparer le démouillage entre surface homogène et surface hétérogène. En effet, le démouillage et le rebond sont plus prononcés sur la surface hétérogène (jusqu'à atteindre la taille du site). Dans chacun de ces cas, le déplacement de la ligne de contact nécessite normalement une quantité identique d'énergie puisque l'ensemble de son déplacement se situe sur la zone non mouillante. Toutefois, le démouillage sur la surface hétérogène est 35% plus prononcé (différence d'amplitude du rebond entre les deux types de surface rapportée à l'amplitude sur la surface hétérogène) pour un étalement maximum à peine 4.3% plus élevé. Cet élément indique que la partie centrale de la surface hétérogène participe à la dissipation de l'énergie utilisée par la goutte pour démouiller. Pour s'assurer de l'influence exacte de la partie mouillante, des expériences complémentaires sont nécessaires, particulièrement avec une surface hydrophobe sur laquelle l'hystérésis de l'angle de contact est faible (pour obtenir un écart entre  $d_a$  et  $d_r$  faible). De la même manière, l'effet du gradient de mouillabilité n'est pas étudié. Quel serait le résultat de tels essais avec une zone centrale plus mouillante encore ? Pour des sites de tailles différentes ? (notamment avec une taille de site atteinte au-delà de  $0.1t_i$  pour bien observer l'influence de la partie mouillante sur l'étalement maximum et le démouillage).

## **Simulation**

Comme précédemment, la prédiction des mécanismes de l'impact est un point important. De plus, l'impact centré sur un site circulaire est un problème qui est axisymétrique et les profils expérimentaux montrent que la forme de sphère tronquée reste également une forme privilégiée dans cette configuration. En conséquence, nous sommes en mesure de reprendre les méthodes de simulations utilisées précédemment, à savoir la Méthode Variationnelle et la Méthode d'Intégrale de Frontière, et de les adapter à ce cas particulier.

La principale différence avec le cas de l'impact sur surface homogène est l'existence de deux zones disjointes de mouillabilité très différentes. Dans le cas de la MV, le problème se résume à modifier l'angle d'équilibre sur la surface, en fonction de la valeur du diamètre de contact au cours du temps. Pour la MIF, une relation entre la vitesse de la ligne de contact et l'angle dynamique est encore nécessaire en fonction de la surface sur laquelle se trouve la ligne de contact, c'est-à-dire une relation pour chacune des mouillabilités. Ces relations sont obtenues

à partir d'expériences sur les surfaces homogènes ; l'aspect hétérogène n'est donc pas pris en compte globalement mais par succession de deux surfaces homogènes.

### Méthode Variationnelle

La figure IV.9 présente la comparaison entre l'expérience et la méthode variationnelle pour le cas d'une goutte d'eau distillée de 2.26mm de diamètre impactant à 0.7m/s sur une surface présentant une hétérogénéité chimique circulaire de 3mm et de 50° d'angle d'équilibre. La surface autour de ce site est non mouillante et l'angle d'équilibre est de 90°. Les simulations du cas d'un site de 1mm de diamètre et de 3mm de diamètre pour les mêmes conditions d'angle d'équilibre sur les deux zones de la surface expérimentale sont également représentées. Dans le cas présent, le coefficient de dissipation  $F_d$  est fixé pour atteindre un diamètre maximum équivalent à celui mesuré expérimentalement.

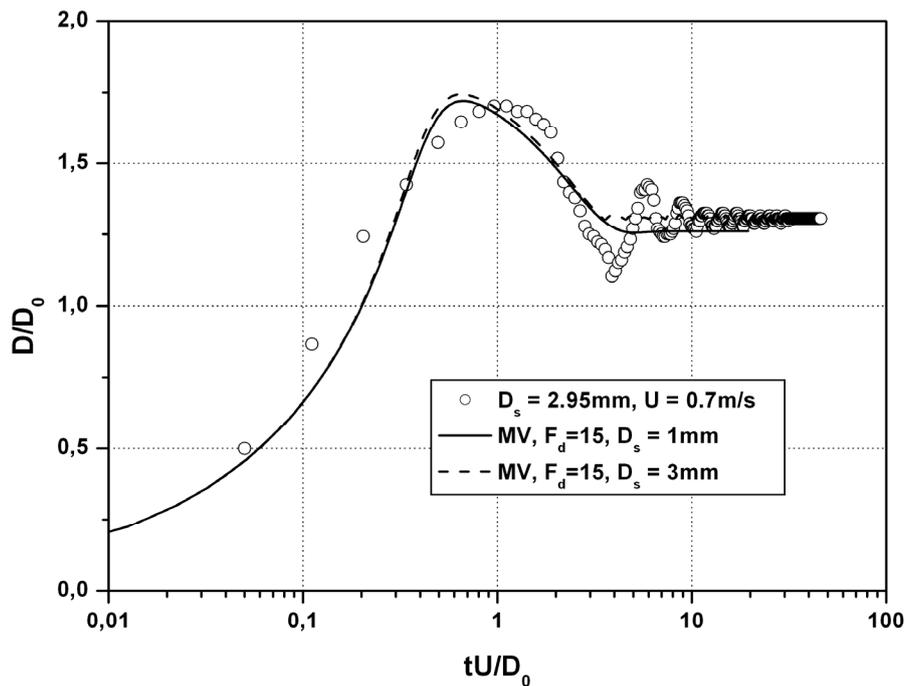


Figure IV.9 : Impact d'une goutte sur une surface avec une hétérogénéité circulaire, (○) mesures expérimentales,  $D_s = 3\text{mm}$  (--) modélisation variationnelle  $D_s = 3\text{mm}$  et (—) modélisation variationnelle  $D_s = 1\text{mm}$  ;  $D_0 = 2.26\text{mm}$ ,  $U = 0.7\text{m/s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $We = 15$ ,  $Re = 1582$ ,  $\theta_m = 50^\circ$ ,  $\theta_{nm} = 90^\circ$ .

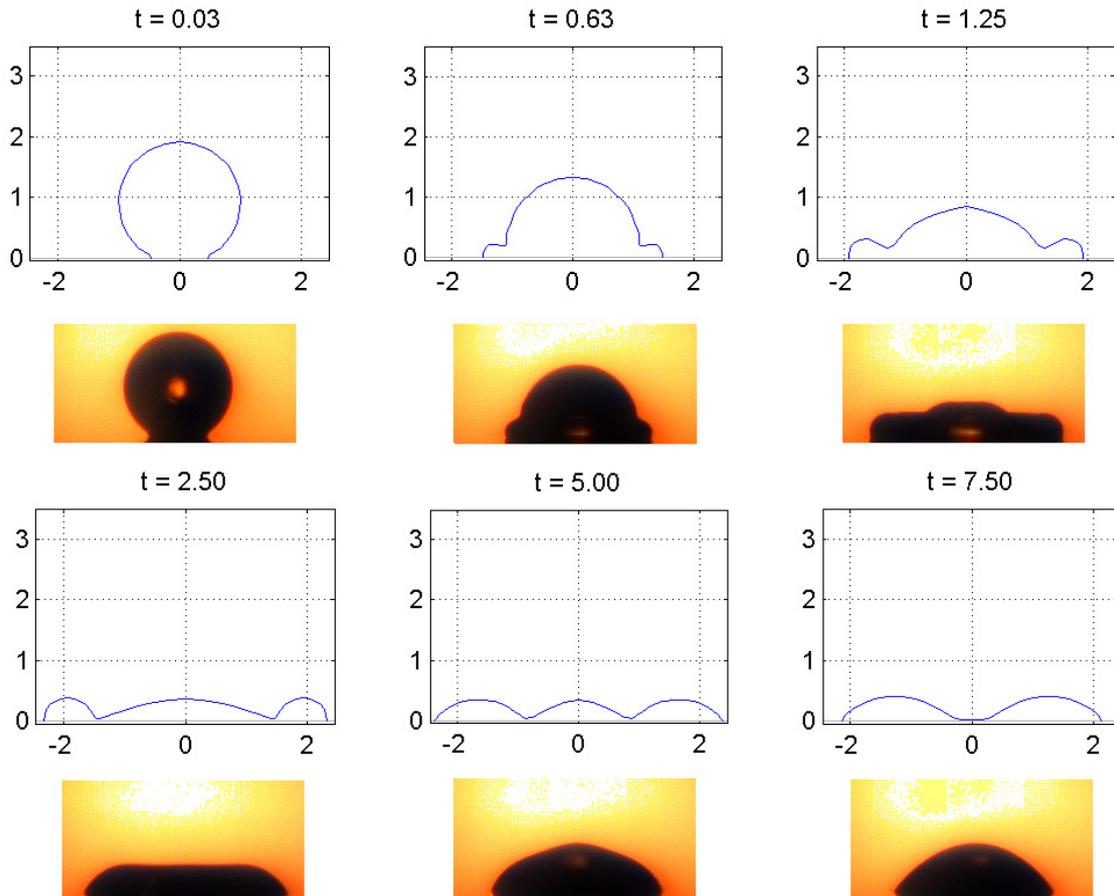
Sur cette figure, nous constatons que le démoillage sur la surface non mouillante est bien prédit par la simulation, mais pas dans sa globalité. En effet, dès que le diamètre atteint la taille du site mouillant, le démoillage est stoppé. De la même manière, aucune oscillation n'est visible sur la courbe simulée. En réalité, en diminuant suffisamment  $F_d$ , il est possible d'observer ces oscillations ; toutefois, ni l'amplitude ni la fréquence (toujours équivalente à  $\sqrt{\frac{\sigma}{\rho D_0^3}}$ ) ne correspondent aux valeurs mesurées expérimentalement. Ces écarts ne sont pas surprenants, sachant que pour la simulation de l'impact sur surface homogène, cela était déjà le cas. Suite à la phase de démoillage, le diamètre n'évolue quasiment plus, si ce n'est pour osciller autour de la position d'équilibre de 3mm. Ces instabilités sont uniquement dues au calcul ; ils traduisent l'état instable de la ligne de contact en présence de deux mouillabilités différentes. En effet, sur la surface à 50°, 3mm est inférieur au diamètre normal d'équilibre ; la MV prévoit donc un étalement. Cependant, immédiatement après cet étalement, la ligne de contact se trouve sur la partie non mouillante sur laquelle le diamètre d'équilibre est inférieur à 3mm, ce qui provoque de nouveau un démoillage.

De plus, notons qu'en conservant la valeur du coefficient de dissipation  $F_d$  entre simulation sur surface homogène et sur surface hétérogène, une légère déviation est visible, à environ 0.3t\*, entre les deux diamètres simulés. Le changement de surface est donc bien pris en compte, bien que les écarts ne soient pas significatifs (de même que ce qui a été constaté sur la figure IV.8). De plus, le diamètre final est donné uniquement par la surface non mouillante (diamètre final de 2.85mm, soit un angle de contact de 90°), comme observé dans le cas du dépôt (figure IV.3).

#### Méthode d'Intégrales de Frontière

La simulation de l'impact de macrogouttes sur des surfaces homogènes ne conduit pas toujours à des profils parfaitement en accord avec l'expérience (chapitre III, [Vadillo et al, 2003]). La non-traduction des effets de cisaillement sur la paroi en est une des causes principales, particulièrement dans le cas de macrogouttes de liquides à faibles viscosités. De même, la très forte influence de l'effet de tension superficielle ( $We < 20$ ) n'est pas suffisamment atténuée par la viscosité dans le volume puisqu'elle n'est pas prise en compte dans ce modèle. De plus, les profils transitoires simulés présentent de très fortes déformations (et donc de très forts rayons de courbures) qui empêchent le calcul de converger.

Toutefois, pour la simulation de l'impact de macrogouttes de fluide plus visqueux ou l'extrapolation au cas des microgouttes, la MIF conduit à de meilleurs résultats. La diminution du nombre de Reynolds (par la diminution du diamètre en vol de la goutte ou l'augmentation de la viscosité) permet d'augmenter l'influence de la viscosité et de se rapprocher ainsi des résultats expérimentaux.

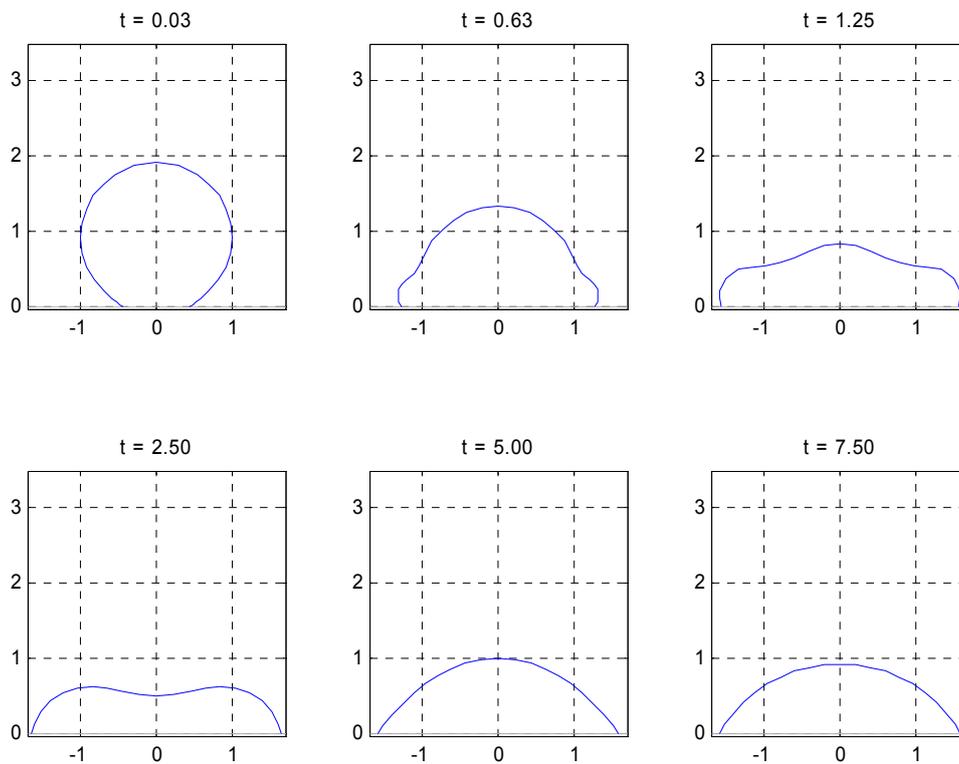


**Figure IV.10 : Comparaison entre profils expérimentaux et simulés par MIF lors de l'impact d'une goutte de 2mm de DMSO à  $U = 0.6\text{m/s}$  sur une surface hétérogène (site mouillant circulaire de 2mm),  $\theta_m = 27^\circ$ ,  $\theta_{nm} = 77^\circ$ ,  $\sigma = 43\text{mN/m}$ ,  $\mu = 5\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1100\text{ kg/m}^3$ ,  $We = 18$ ,  $Re = 260$ .**

La figure IV.10 compare les profils transitoires expérimentaux et la simulation avec la MIF lors de l'impact d'une goutte DMSO de 2mm de diamètre sur une surface hétérogène (site circulaire de 2mm, impact centré) à 0.6m/s. Sur cette figure, les profils simulés sont en accord dans les premiers instants de l'impact. En revanche, en fin de simulation ( $t^* = 7.5$ ), l'accord n'est plus satisfaisant. Aucun rebond au centre de la goutte n'est observable, le drainage du film de fluide à la paroi (chapitre III) ne suffit pas pour conduire à une forme de calotte

sphérique. Ces résultats ne sont pas surprenants aux vues des simulations sur surface homogène.

En revanche, sur la figure IV.11, qui présente le cas d'une microgoutte de fluide impactant sur la même surface (le rapport 1 entre le diamètre de la goutte en vol et le diamètre du site hydrophile est conservé) pour  $We = 10.8$  et  $Re = 33$ , les profils simulés sont plus proches de ce qui est attendu expérimentalement. Les limitations de la MIF dans le cas de l'impact sur surface homogène restent vraies dans le cas hétérogène bien que la nature de la surface, en fonction de la position de la ligne de contact, soit bien prise en compte.



**Figure IV.11 : Simulation par la MIF de l'impact à  $U = 2.8\text{m/s}$  d'une microgoutte d'eau distillée sur une surface hétérogène ( $D_0/D_s = 1$ ),  $\theta_m = 27^\circ$ ,  $\theta_{nm} = 77^\circ$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $We = 10.8$ ,  $Re = 33$ .**

En conclusion, les limitations de chacune de ces deux méthodes de simulation de l'impact sur surface homogène (voir chapitre III) restent vraies dans la configuration hétérogène (pour le cas d'impact centré). De plus, une limitation supplémentaire, liée à la gestion de la nature de la surface, apparaît. Chacune des deux méthodes prend uniquement en compte l'interaction avec la surface au niveau de la ligne de contact. Dès que le diamètre de contact excède le

diamètre du site mouillant, la présence de la zone mouillante n'est plus prise en compte dans les simulations. Les mesures expérimentales montrent au contraire que l'interaction liquide / solide, dans le cas où le fluide est en contact avec les deux types de surfaces, modifie le comportement global de la goutte, notamment au niveau des dissipations par cisaillement sur la surface au cours du mouillage et du démouillage. Ces méthodes de simulations conservent donc leur principaux atouts dans le cas hétérogène (vitesse de calcul, temps de mise en œuvre), permettent de prendre en compte (localement au moins) la nature de la surface et prédisent certaines interactions liquide / solide fines. Toutefois, ces résultats ne sont pas suffisants et des simulations plus fines à partir de méthodes de calculs plus élaborées sont nécessaires en vue d'obtenir des résultats quantitatifs cohérents avec les observations expérimentales.

### **Déplacement radial d'une goutte par gradient de mouillabilité**

Les configurations de l'impact sur surface hétérogène ne sont pas restreintes au cas de l'impact centré d'une goutte sur une surface présentant une hétérogénéité circulaire. En considérant la surface utilisée au paragraphe précédent, ou pour des hétérogénéités de formes différentes, il est possible de voir apparaître un déplacement radial de la goutte sur la surface. Ce déplacement est dû à l'action des angles d'avancée et de reculée du liquide sur chacune des zones en présences. Dans cette partie, nous allons donc étudier deux cas particuliers de l'impact sur surface hétérogène. Dans un premier cas, nous étudions l'impact d'une goutte sur la surface définie sur la figure IV.1.a. Dans un second temps, nous reprenons la surface de la figure IV.1.b mais dans le cas d'un impact décentré.

### **Demie plaque**

#### Comportement général

La figure IV.12 présente les profils transitoires observés lors de l'impact d'une goutte d'eau distillée, à la limite entre une zone hydrophile et une zone hydrophobe (figure IV.1.a). Sur cette figure, où les temps sont donnés en haut à droite des images en milliseconde, nous observons l'apparition rapide d'une dissymétrie de la goutte, en particulier au niveau de l'angle de contact dynamique. Ainsi, à  $t = 1.7\text{ms}$  (soit  $t^* = 0.22$ ), l'angle de contact sur la partie mouillante est proche de  $90^\circ$  alors que sur la partie non mouillante, cet angle est largement supérieur à  $90^\circ$  (figure IV.13.a). Cette dissymétrie s'accroît au cours du temps et,

à l'étalement maximum ( $t = 4.7\text{ms}$ ), la forme de cylindre habituellement visible n'est pas réellement respectée. A  $t = 8.3\text{ms}$ , nous notons à la fois que plus de la moitié du volume de la goutte s'est déjà déplacée sur la zone la plus mouillante et la hauteur de la goutte atteint un maximum (rebond) également localisé sur cette partie de la surface. A  $t = 11.7\text{ms}$ , le liquide localisé sur la partie gauche de la surface ne se déplace pas, alors qu'un démouillage de la ligne de contact sur la surface non mouillante est observé. Ceci s'explique par un angle de contact dynamique  $\theta_{d,nm}$  supérieur à l'angle de reculée  $\theta_{r,nm}$  sur cette même surface.

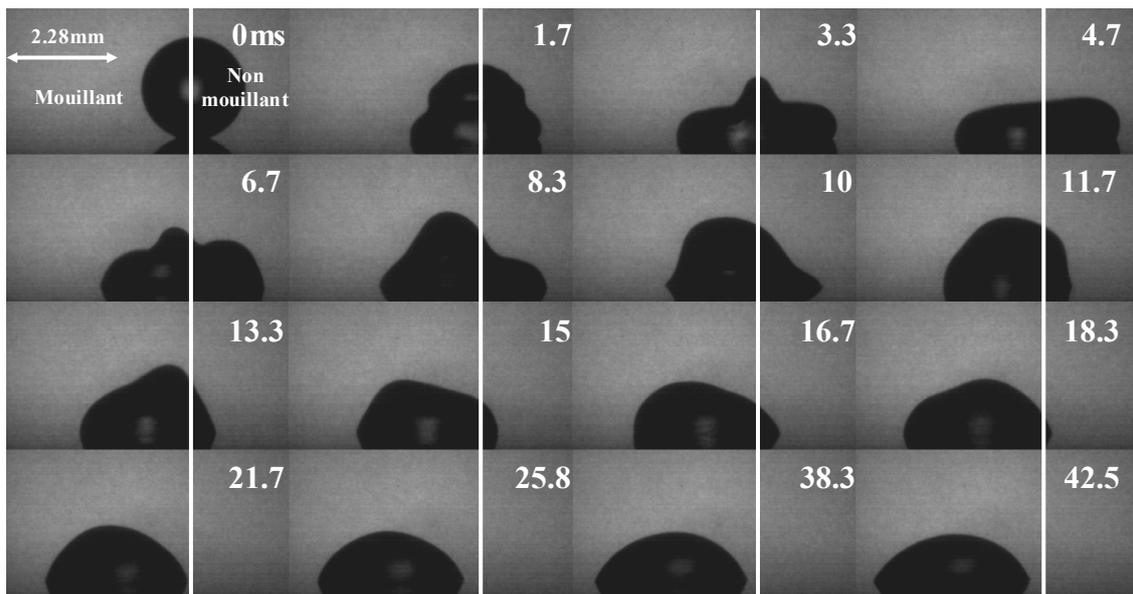


Figure IV.12 : Impact d'une goutte d'eau distillée sur une demie plaque hétérogène à l'intersection des zones mouillante / non mouillante,  $\theta_m = 40^\circ$ ,  $\theta_{nm} = 90^\circ$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $U = 0.3\text{m/s}$ ,  $We = 2.8$ ,  $Re = 684$ . Les traits blancs symbolisent la séparation entre les deux zones.

Cet effet de « stick and slip » (figure IV.13.b) se poursuit en alternance sur les deux zones jusqu'à ce que l'intégralité du liquide soit en contact avec la surface mouillante ( $t = 21.7$ ). Ensuite, un étalement capillaire apparaît sur la partie gauche de la goutte (zone mouillante). En revanche, la partie de la goutte à proximité de la surface non mouillante ne se déplace plus. L'angle à droite diminue lentement avec le temps mais sans pour autant atteindre l'angle d'équilibre à gauche. La goutte obtenue est alors dissymétrique (figure IV.13.c). Afin de comparer l'évolution de la ligne de contact en fonction de la nature de la zone sur laquelle la goutte s'étale, la figure IV.13.a représente, en valeur positive, l'évolution des lignes de contact sur les deux surfaces au cours du temps. Plusieurs choses sont notables. D'une part, le

rayon de contact ne suit pas la même évolution sur la partie mouillante et la partie non mouillante, d'autre part une séparation intervient à environ  $t^* = 0.2$ .

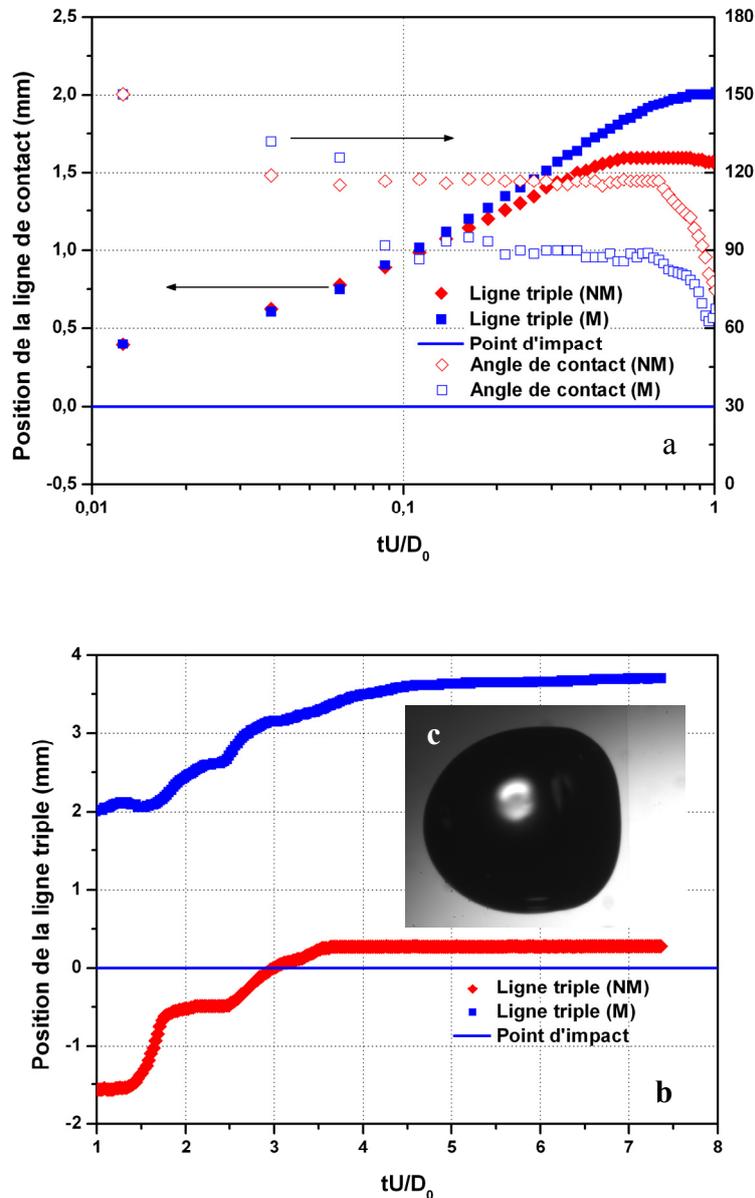


Figure IV.13 : (a) Position de la ligne de contact, en valeurs positives, et de l'angle de contact dynamique en fonction de la zone de la surface sur les temps courts, (b) position de la ligne de contact en fonction de la zone de la surface sur les temps longs et (c) vue de dessus en fin d'étalement.  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $U = 0.35\text{m/s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ .

Ce temps correspond également à celui obtenu sur la figure III.13 qui présente l'effet de la mouillabilité de la surface sur l'évolution du diamètre de contact. De la même manière, le rayon maximum obtenu sur chacune des deux zones est respectivement de 1.58mm et 2mm

sur la surface hétérogène contre 1.67 et 1.85mm dans le cas d'une surface homogène, soit 5.7% et 7.5% d'écart respectivement. Cet écart, bien que faible, est légèrement supérieur aux incertitudes de mesures, ce qui traduit un léger effet des deux surfaces l'une sur l'autre. A ce sujet, il faut rappeler qu'à l'étalement maximum, la goutte a déjà une dissymétrie forte. Enfin, l'angle d'avancée dynamique mesuré sur chacune des zones correspond lui aussi exactement à la valeur mesurée sur la surface homogène de mouillabilité identique. Dans les premiers instants de l'impact (régime cinématique), l'aspect hétérogène de la surface ne modifie en rien le mécanisme d'étalement et aucune influence de la présence de deux zones de mouillabilité importante n'est observée. En revanche, dans la phase d'étalement, des différences apparaissent.

La figure IV.13.b présente l'étalement à partir de  $t^* = 1$  et jusqu'à l'état d'équilibre. Entre  $t^* = 1$  et 5, l'effet de « stick and slip » de la ligne de contact en alternance sur chacune des deux zones est observé (les lignes de contacts se déplacent en alternance à droite et à gauche, [Frassy et al, 2006]).

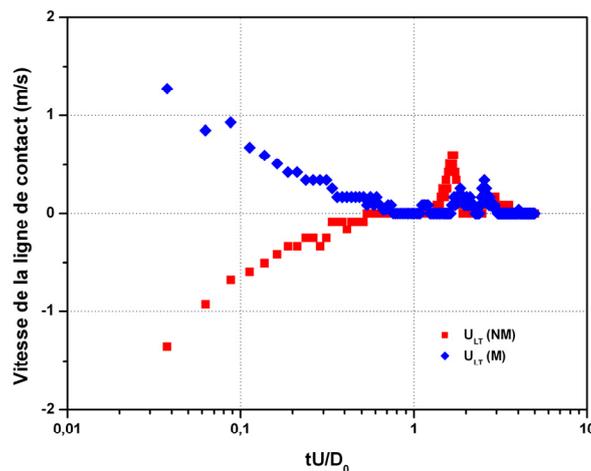


Figure IV.14 : Vitesse de la ligne de contact sur chacune des deux surfaces.

Remarquons que le démouillage sur la partie non mouillante est systématiquement supérieur au mouillage sur la partie mouillante. De la même manière, la reculée de la ligne de contact sur la partie hydrophobe est immédiatement suivie d'un étalement sur la zone hydrophile. Cet aspect est bien visible sur la figure IV.14 qui présente la vitesse de la ligne de contact de part et d'autre de la ligne de séparation des deux zones de la surface. Cela s'explique simplement par les jeux d'angles d'avancée et de reculée sur chacune des deux zones. En effet, suite au rebond sur la hauteur de la goutte, les angles de contact, de part et d'autre du point d'impact,

diminuent. Toutefois, l'angle de reculée sur la zone non mouillante est supérieur à l'angle de reculée sur la zone mouillante et est, par conséquent, atteint plus rapidement. Au cours du déplacement de la ligne de contact qui s'en suit, l'angle à droite est de nouveau plus important que l'angle sur la partie gauche. Le liquide cherche à se placer sous la forme d'une sphère tronquée sous l'action de la tension de surface, ce qui induit un transfert de liquide de la droite vers la gauche, augmentant ainsi l'angle à gauche. Dès lors, ce dernier excède la valeur de l'angle d'avancée sur la partie mouillante et le liquide s'étend. Le mécanisme de « stick and slip » se répète ainsi jusqu'à obtenir une forme d'équilibre proche de la sphère tronquée. Dans le cas présenté ici, cela survient à  $t^* = 5$  et correspond également à l'étalement à l'équilibre.

#### Effet de la viscosité

Un essai identique est réalisé avec une goutte d'un mélange d'eau distillée et de glycérol (à 59% en masse). La viscosité est ainsi multipliée par un facteur 10. La vitesse et la surface d'impact restent identiques à l'expérience précédente et les profils obtenus sont beaucoup moins déformés. La dissymétrie de la goutte existe ici aussi mais de manière bien moins prononcée que dans le cas de l'eau distillée. Ainsi, l'angle d'avancée sur la surface mouillante (à gauche sur les images de la figure IV.15) est de  $115^\circ$  environ contre  $125^\circ$  sur la partie non mouillante.

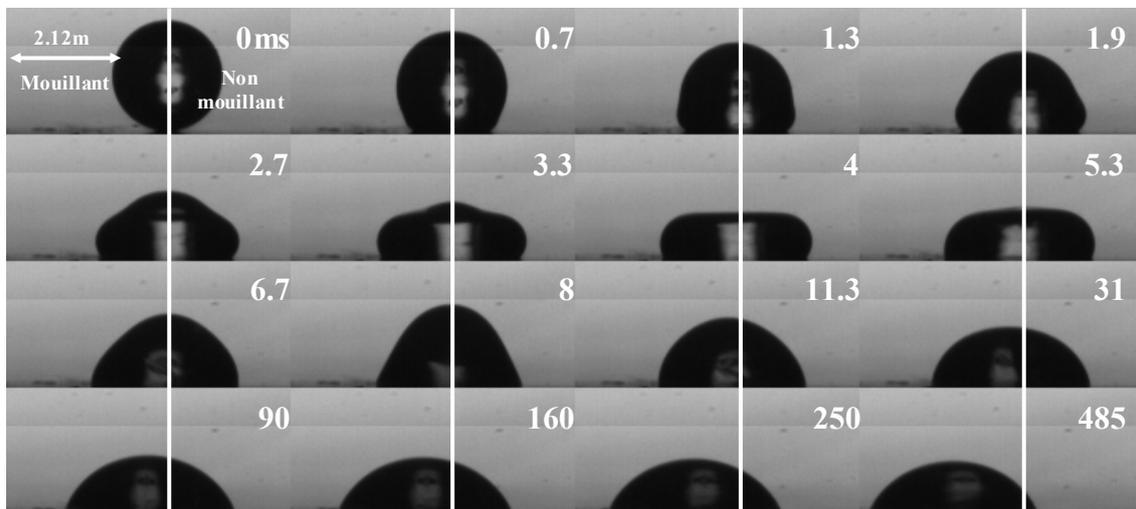


Figure IV.15 : Impact d'une goutte d'eau distillée sur une demie plaque hétérogène à l'intersection de la zone mouillante / non mouillante,  $\theta_m = 40^\circ$ ,  $\theta_{nm} = 90^\circ$ ,  $\mu = 9.6\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 69\text{mN/m}$ ,  $\rho = 1100\text{ kg/m}^3$ ,  $D_0 = 2.12\text{mm}$ ,  $U = 0.3\text{m/s}$ ,  $We = 3$ ,  $Re = 73$ . Les traits blancs symbolisent la séparation entre les deux zones.

Comme précédemment, ces valeurs sont en accord avec les résultats de la figure III.46 obtenus dans le cas de l'impact sur surfaces homogènes. Notons également sur cette figure que malgré les variations de l'angle de contact à droite et à gauche suite aux oscillations de la hauteur, la ligne de contact ne se déplace pas. L'effet de « stick and slip » n'a pas lieu.

Le cisaillement sur la surface est trop important et les diverses déformations sont rapidement atténuées par la viscosité du liquide. La figure IV.16.a présente l'évolution de la ligne de contact et l'angle de contact dynamique sur chacune des deux zones de la surface et confirme les observations que nous venons de faire. L'évolution des deux rayons est représentée dans le même cadran pour faciliter la comparaison. La séparation des deux rayons intervient à  $t^* = 0.5$ , soit quasiment au moment d'atteindre l'étalement maximum. De la même manière, les angles de contacts dynamiques à droite et à gauche ne se séparent qu'à  $t^* = 0.4$  et l'écart maximal entre ces deux angles n'excède pas  $10^\circ$  et ce, sur une durée de  $0.25t^*$  uniquement (soit 1.5ms environ). Toutefois, les valeurs mesurées de part et d'autre de la ligne de séparation des zones mouillante et non mouillante, correspondent une fois encore aux résultats obtenus précédemment dans le cas homogène (figure III.10 et III.46).

A partir de  $t = 11.3\text{ms}$ , la goutte prend la forme d'une calotte sphérique et l'étalement débute du côté mouillant. En effet, la ligne de contact sur la partie mouillante commence à s'étaler sous l'action des forces capillaires plus tôt, mais moins rapidement que la ligne de contact sur la surface non mouillante (figure IV.16.b). Le déplacement sur la partie mouillante débute à partir de  $t^* = 2$  environ, contre  $t^* = 10$  sur la partie non mouillante. De plus, en utilisant une corrélation de type fonction puissance (par analogie avec le régime capillaire dans le cas d'une goutte seule), nous obtenons respectivement dans le même ordre, une valeur de puissance 0.673 et 1.233 (les coefficients de corrélation sont, dans ces deux cas, supérieurs à 0.99). Précisons cependant que ce type de régime n'est pas observé avec l'eau distillée. Le démouillage sur la partie droite de la surface a donc une puissance environ deux fois supérieure au mouillage sur la partie gauche. En outre, cette dernière s'étale avec une puissance 6.7 fois supérieure aux valeurs observées dans le cas de l'étalement capillaire sur surface homogène. Nous pouvons supposer que la répulsion de la surface vis-à-vis du liquide sur la partie non mouillante contribue au déplacement de la ligne de contact. Enfin, la distinction entre le mouillage sous l'action des forces capillaires, et le déplacement dû à l'action du liquide en présence de la surface non mouillante n'est pas possible. La superposition de ces deux effets (en opposition ou en addition) peut expliquer, en partie au moins, les écarts mesurés.

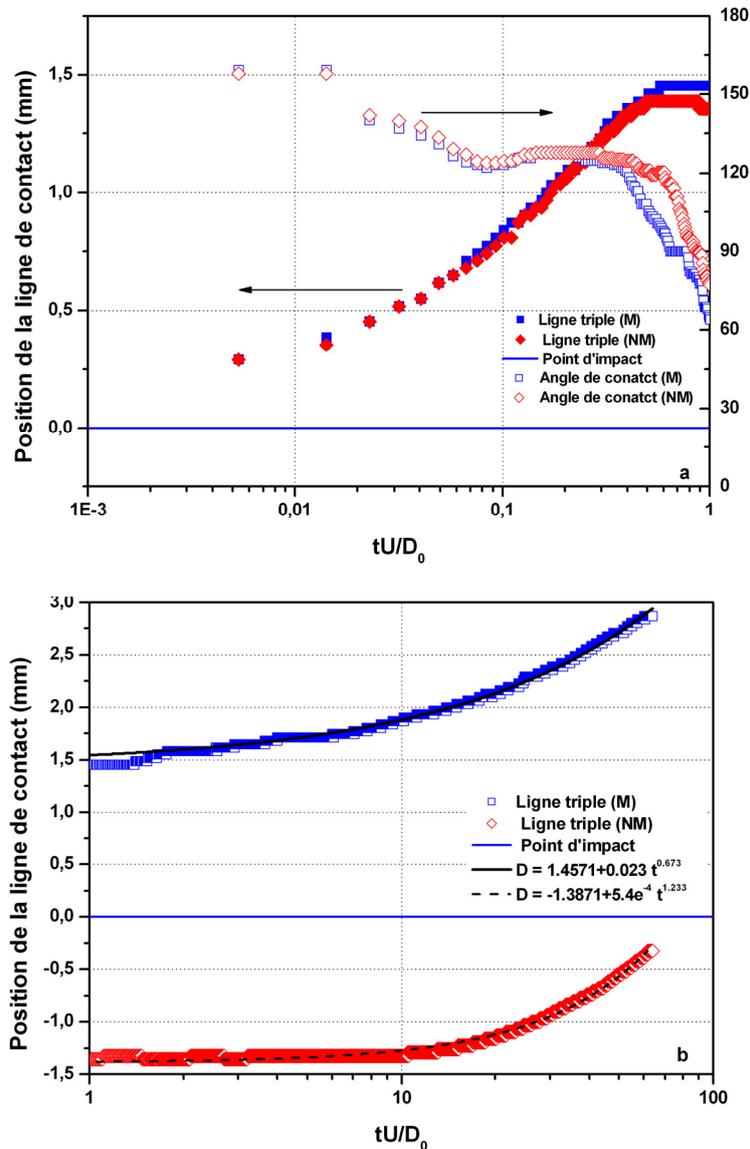


Figure IV.16 : (a) Position de la ligne de contact, en valeurs positives, et de l'angle de contact dynamique en fonction de la zone de la surface sur les temps courts et (b) position de la ligne de contact, en fonction de la zone de la surface sur les temps longs.  $D_0 = 2.12\text{mm}$ ,  $U = 0.35\text{m/s}$ ,  $\sigma = 69\text{mN/m}$ ,  $\mu = 9.6\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1100\text{kg/m}^3$ .

### Site circulaire : recentrage automatique

Afin de nous rapprocher des applications en relation avec une partie du travail (chapitre V), nous étudions une dernière configuration qui correspond à un impact décentré sur la zone mouillante de forme circulaire entourée d'une zone non mouillante. En effet, il peut être nécessaire de vouloir déposer une goutte sur un point précis et utiliser les gradients de

mouillabilité pour la maintenir en position. Toutefois, les instabilités des générations peuvent modifier la trajectoire de la goutte et par suite son point d'impact. Si la déviation  $\Delta$  est suffisamment importante, la goutte n'entrera jamais en contact avec la partie mouillante et nous nous retrouvons dans la configuration d'un impact sur substrat homogène non mouillant. Si la déviation est suffisamment faible ( $\beta_{\max} > \Delta$ ), la goutte s'étalera sur deux surfaces différentes et le gradient de mouillabilité permettra de drainer le fluide de la partie non mouillante vers la partie mouillante ([Mock et al, 2005 ; Michel et al, 2005]). Les profils transitoires seront influencés à la fois par le phénomène d'impact mais également par le déplacement radial de la goutte (figure IV.17)

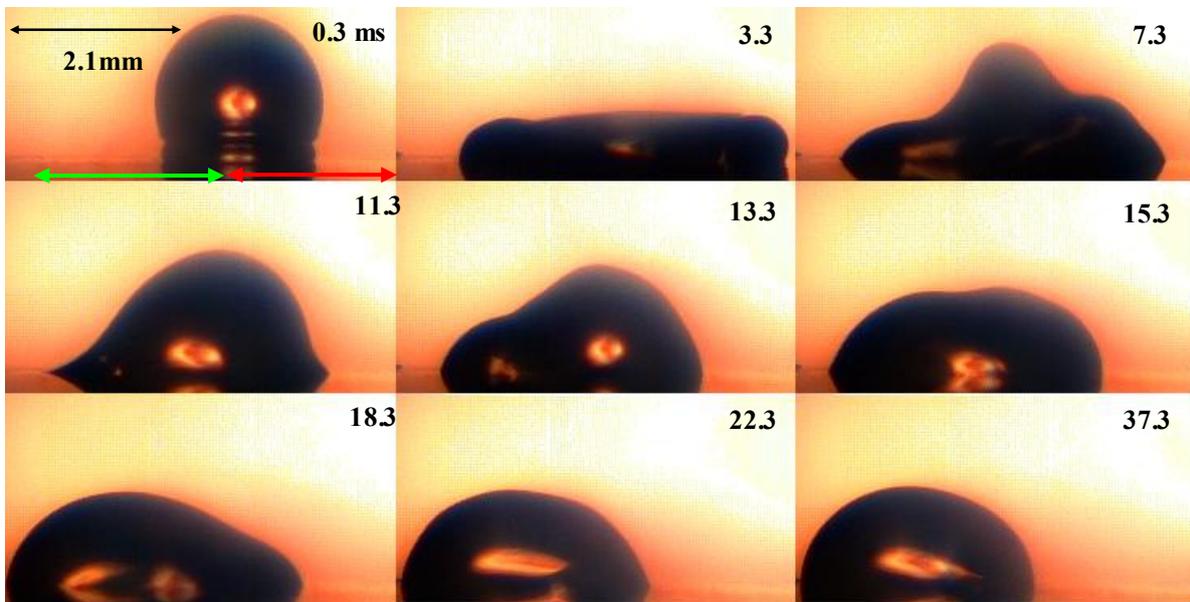


Figure V.17 : Impact à la limite d'une hétérogénéité chimique de 3mm de diamètre d'une goutte d'eau distillée de 2.1mm de diamètre, à  $U = 0.6\text{m/s}$  ( $\theta_{\text{nm}} = 90^\circ$ ,  $\theta_{\text{m}} = 30^\circ$ ),  $We = 10$ ,  $Re = 1260$ .

Dans la phase d'étalement, la goutte peut être séparée en une partie en contact avec la surface mouillante (à gauche) et une partie en contact avec la surface non mouillante (à droite). La lamelle sur chacune de ces deux parties évolue en fonction du support sur laquelle elle se trouve et indépendamment de l'autre. La seconde image de la figure IV.17 ( $t = 3.3\text{ms}$ ), qui correspond à l'instant de l'étalement maximum, montre clairement, et comme précédemment, la différence d'angle de contact en fonction de la zone sur laquelle le fluide se situe. Les mécanismes observés ici sont similaires à ceux obtenus dans le cas d'une goutte d'eau impactant sur la demie plaque (cas traité dans ce chapitre). Du côté mouillant, l'étalement n'est pas terminé et les forces capillaires forcent l'étalement sur cette partie de la surface. Du

côté non mouillant, lorsque le centre de la goutte rebondit, l'angle de contact devient inférieur à l'angle de reculée. Un démouillage apparaît et la goutte se déplace vers le centre de la zone mouillante. Toutefois, si le mouvement global se fait de la partie non mouillante vers la partie mouillante, les mouvements ne s'effectuent pas simultanément. De nouveau un effet de « stick and slip » apparaît ([Frassy et al, 2006]) c'est-à-dire des mouvements de mouillage (à gauche) et de démouillage (à droite) par à coup et en alternance (côté droit puis côté gauche) (figure IV.17). Cette alternance de mouvements est également visible sur la figure V.18 qui représente l'évolution de la ligne de contact sur la surface mouillante (à gauche) et sur la partie non mouillante (à droite). L'origine est repérée au point d'impact et un sens positif est défini en direction de la partie mouillante. Nous représentons néanmoins les résultats de ces déplacements en valeur absolue afin de comparer l'évolution de la ligne de contact de part et d'autre du point d'impact. Les flèches noires indiquent l'axe vertical de lecture. La position de la ligne de contact sur la partie non mouillante reste fixe sur les intervalles de temps adimensionnels  $[0.25 ; 0.5]$  et  $[1 ; 1.8]$ . Il en est de même pour la ligne de contact sur la partie mouillante sur  $t^* \in [0.5 ; 1]$ , les rayons de contact sur chaque surface se séparent à environ  $0.2t^*$  aux incertitudes de mesures près (elles ne sont pas représentées sur la figure), comme observé à la fois dans le cas de l'impact sur des surfaces homogènes et de l'impact sur demie plaque.

L'angle de contact dynamique varie fortement en fonction du côté de la surface considérée. Un écart d'environ  $35^\circ$ , qui apparaît dès les premiers instants, est visible entre la zone mouillante et la surface non mouillante. Précisons que cette expérience a été réalisée avec la caméra Kodak HG2000 à 1000 images par seconde. Cette faible cadence ne permet pas de s'assurer du positionnement précis du premier point de mesure, cependant les angles mesurés sur chaque partie de la surface sont en accord avec les résultats de la figure III.46. Nous rappelons que cette figure correspond à l'angle de contact dynamique en fonction de la viscosité du liquide et de la mouillabilité de la surface. Les différences apparaissent principalement dans la phase d'étalement (i.e. en quelques millisecondes pour une macrogoutte) comme ce qui a été observé dans le cas d'impacts homogènes.

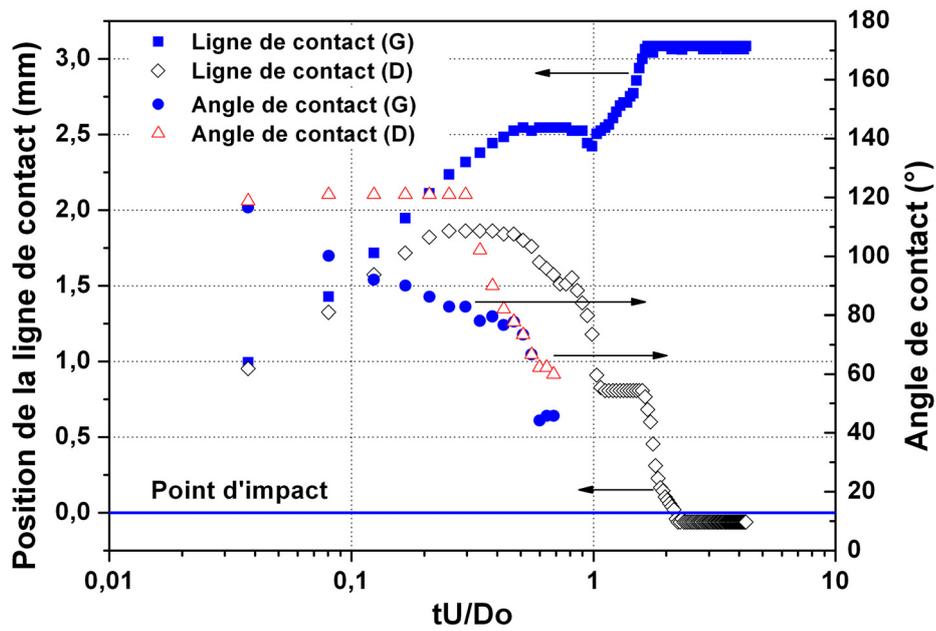


Figure V.18 : Evolution de la ligne de contact à droite et à gauche (en valeur absolue) lors de l'impact à la limite d'une hétérogénéité chimique de 3mm de diamètre d'une goutte d'eau distillée de 2.1mm de diamètre, à  $U = 0.6\text{m/s}$  ( $\theta_{nm} = 90^\circ$ ,  $\theta_m = 30^\circ$ ),  $We = 10$ ,  $Re = 1260$ .

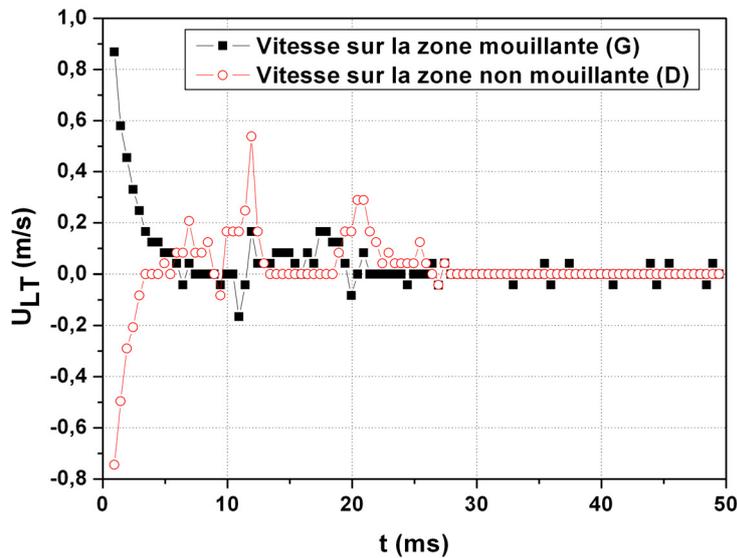


Figure V.19 : Evolution de la vitesse de la ligne de contact à droite et à gauche (en valeur absolue) lors de l'impact à la limite d'une hétérogénéité chimique de 3mm de diamètre d'une goutte d'eau distillée de 2.1mm de diamètre, à  $U = 0.6\text{m/s}$  ( $\theta_{nm} = 90^\circ$ ,  $\theta_m = 30^\circ$ ),  $We = 10$ ,  $Re = 1260$ .

En procédant de la même manière que dans le chapitre III pour le calcul de la vitesse, l'effet de « stick and slip » est également visible (figure V.19). Les vitesses sont représentées en tenant compte du sens réel de déplacement de la ligne de contact, nous remarquons ainsi qu'elles sont à la fois systématiquement positives (déplacement vers la partie mouillante) et que les pics de vitesse sont alternés. Par ailleurs, les mouvements les plus importants se situent sur la surface non mouillante, du fait de sa forte répulsion vis-à-vis du liquide. Enfin, l'intégralité du fluide se situe, à la fin de l'expérience, sur le site mouillant, en opposition au cas de surface hétérogène en demie plaque, où la ligne de contact poursuivait son étalement jusqu'à atteindre son angle d'équilibre. Cette configuration présente un intérêt important pour toutes applications ayant pour but de contrôler une quantité de liquide dans une zone spécifique.

### **Modèle de [Daniel et al, 2005]**

En 2004, [Daniel et al, 2004] proposent un modèle pour le déplacement global de la goutte sur la surface hétérogène. Dans leurs travaux, une goutte de liquide est déposée sur une surface présentant un gradient de mouillabilité « continu ». La goutte subit une excitation sinusoïdale afin qu'elle franchisse ses états métastables. Le modèle se construit à partir du fait que le déplacement de la goutte de liquide sur la surface est uniquement dû à l'action des forces non compensées de Young (minimisation de l'énergie d'interface). Une vitesse constante est obtenue sous l'action de ces forces (qui augmentent également linéairement avec la surface de contact) et est compensée par l'action des forces visqueuses. Par ailleurs, cette vitesse peut être exprimée à partir de l'équation suivante :

$$Ca = \alpha R \frac{d \cos \theta}{dx} \quad (IV.2)$$

où  $Ca$  est le nombre capillaire,  $R$  le rayon de contact entre la surface et le liquide,  $\alpha$  est un coefficient d'ajustement et  $x$  la position de la goutte.

Pour une goutte se déplaçant sur une surface avec une expansion minimale de son diamètre, les forces non compensées de Young peuvent s'exprimer comme suit :

$$\sigma(\cos \theta_a - \cos \theta) = \sigma(\cos \theta - \cos \theta_r) \quad (IV.3)$$

soit

$$\cos \theta = \frac{\cos \theta_a - \cos \theta_r}{2} \quad (IV.4)$$

où  $\theta_a$  et  $\theta_r$  sont les angles d'avancée et de reculée de la goutte sur la surface.

L'angle de contact, au centre de la goutte peut être estimé par la valeur moyenne entre l'angle d'avancée et de reculée ([Smith & Lindberg, 1978 ; Deckerg & Garoff, 1996]). La mesure de l'angle de contact dynamique à différentes positions sur la surface hétérogène (aux deux extrémités dans notre cas) est une bonne estimation du gradient de mouillabilité. Cela conduit à :

$$\cos \theta_a - \cos \theta_r = \frac{\pi R}{2} \frac{d \cos \theta}{dx} \quad (IV.5)$$

En combinant les équations (IV.2) et (IV.5), l'expression suivante est obtenue :

$$Ca = \frac{2}{\pi} \alpha (\cos \theta_a - \cos \theta_r) \quad (IV.6)$$

Les auteurs précisent que le gradient de mouillabilité influence la valeur du coefficient  $\alpha$ . Dans le cas d'une surface présentant une discontinuité de mouillabilité de l'ordre de  $50^\circ$  (écart entre les angles d'équilibre du liquide sur chacune des zones de la surface), avec une goutte d'eau distillée de 2.5mm, le coefficient obtenu est de 0.0055 ([Daniel et al, 2004]).

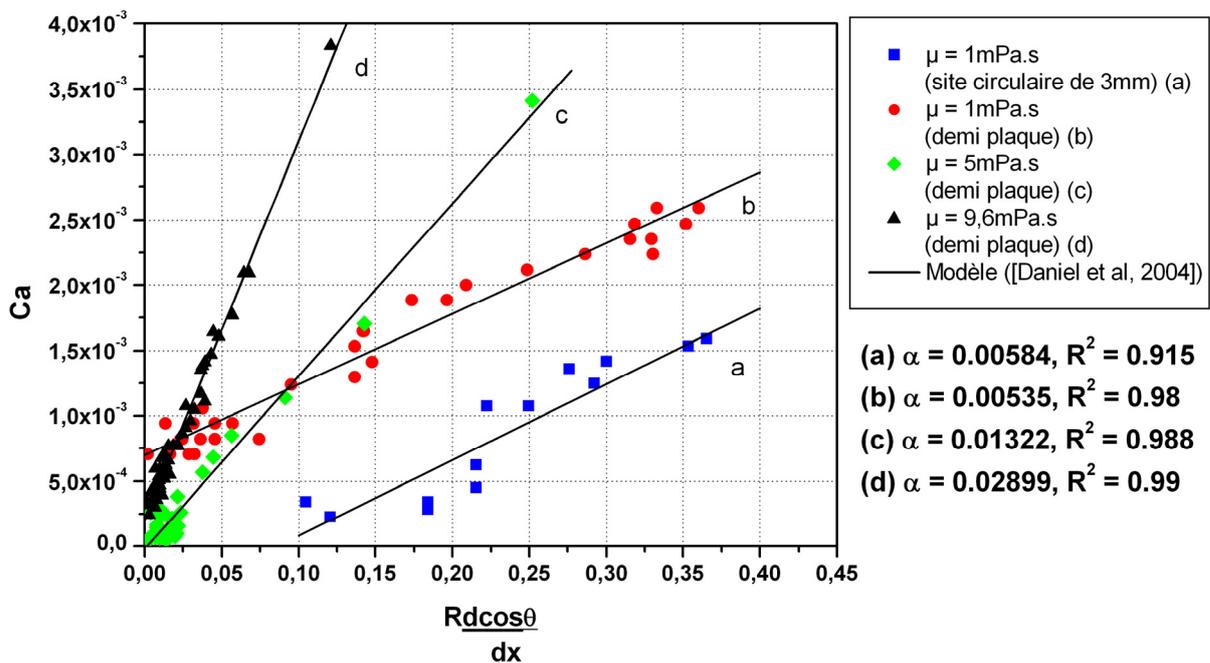


Figure IV.20 : Evolution de la vitesse de déplacement de la goutte sur une surface présentant un gradient de mouillabilité en fonction du gradient d'angle de contact dynamique sur chacune des zones.

Nos mesures sont comparées à ce modèle pour différentes situations d'impact (ce qui ne correspond pas au mode opératoire présenté dans [Daniel et al, 2004] où la goutte est posée). La première situation concerne le cas de l'impact sur une demi plaque hétérogène (avec une

discontinuité de mouillabilité de l'ordre de  $50^\circ$  dans tous les cas). La vitesse d'impact est de 0.35m/s et les fluides sont de l'eau distillée (figure IV.20.b) ainsi que des mélanges d'eau distillée et de glycérol afin d'obtenir des viscosités de 5 et 10 mPa.s (respectivement figure IV.20.c et figure IV.20.d), sans modifier la tension de surface (mesurée à 69mN/m dans le cas le plus visqueux). Enfin, des mesures sont effectuées sur une surface présentant la même discontinuité de mouillabilité, mais avec une zone mouillable circulaire et entièrement entourée par une zone non mouillante (figure IV.20.a). Dans cette dernière configuration, le fluide est également de l'eau distillée et la vitesse d'impact est de 0.7m/s.

Précisons que nos surfaces ne sont constituées que de deux zones. La mouillabilité de chaque partie des surfaces hétérogènes est caractérisée par une mesure d'angle de contact avec le liquide utilisé pour l'expérience. Comme évoqué précédemment, les surfaces sont préparées à partir d'une silanisation par zone et des jeux de masquage/démasquage. Dans les travaux de [Daniel et al, 2004], un gradient d'énergie de surface est obtenu à partir d'une diffusion contrôlée de silane decyltrichlorosilane.

Sur cette figure, plusieurs éléments sont notables. Tout d'abord, les mesures expérimentales sont en bon accord avec le modèle (mesures effectuées sous la condition que la forme de la goutte soit proche d'une sphère tronquée, donc après relaxation des effets inertiels). Le comportement du nombre capillaire avec le gradient de l'angle de contact à droite et à gauche de la goutte est bien linéaire. Ensuite, le coefficient d'ajustement du modèle obtenu par [Daniel et al, 2004] correspond à la valeur obtenue dans nos travaux, malgré des méthodes expérimentales complètement différentes. Ceci sous-entend que les hypothèses du modèle sont valables et que la méthode pour passer les états métastables importe peu. Il faudrait néanmoins connaître la valeur des angles d'avancée et de reculée sur l'ensemble de la surface utilisée par [Daniel et al, 2004] pour les comparer à ceux que nous avons pu obtenir au cours de nos expériences. Notons également que le coefficient d'ajustement n'est pas influencé par la forme de l'hétérogénéité ou la répartition du gradient de mouillabilité, puisqu'une valeur de 0.00584 est obtenue dans le cas d'un site hydrophile circulaire. Sur la demie plaque nous obtenons 0.00535. Dans leur configuration de gradient continu [Daniel et al, 2004] mesurent 0.0055. Cela correspond à un écart inférieur à 6%. Enfin, la valeur de ce coefficient d'ajustement est influencée par la viscosité du liquide. Plus ce dernier est visqueux et plus le cisaillement sur la surface lors de l'étalement et du déplacement l'est. En conséquence  $\alpha$  augmente avec la viscosité (dans nos expériences, la tension de surface a été peu modifiée au contraire de la viscosité). Par ailleurs, dans notre cas, un comportement linéaire est observé

pour des viscosités comprises entre 1 et 10mPa.s et la loi empirique ci-dessous peut être proposée :

$$\begin{aligned}\alpha &= 2.6323\mu + 0.0019 \\ R^2 &= 0.9829\end{aligned}\tag{IV.7}$$

Une nuance doit cependant être apportée. Dans le cas d'une goutte de liquide de viscosité 96mPa.s et de tension de surface de 68mN/m, aucun écart sur la valeur des angles de contact n'est mesurable et aucun déplacement du liquide sur la surface n'est visible. Cela correspond à une pente très prononcée sur la figure IV.20, c'est-à-dire que pour une vitesse importante de la ligne de contact (donc nombre capillaire important), le gradient d'angle de contact sera très faible et difficilement mesurable. Ceci est en accord avec les observations expérimentales de l'angle de contact dynamique, présentées dans le chapitre III, où pour une viscosité de 96mPa.s, l'angle de contact dynamique semblait indépendant de la surface sur laquelle s'étalait le liquide.

De plus, l'ordonnée à l'origine des courbes de corrélation linéaires varie entre nos résultats et ceux présentés par [Daniel et al, 2004]. Un écart est observé entre le cas de la demie plaque et du site circulaire. Cette différence peut s'expliquer par la différence du pourcentage de surface de la goutte en contact avec les différentes zones dans les premiers instants du déplacement. Toutefois, il faut noter que la viscosité du liquide modifie également cette ordonnée à l'origine.

Enfin, précisons que la présence d'une vitesse initiale n'intervient pas sur les mécanismes de déplacement le long de la surface (le comportement linéaire et la valeur de  $\alpha$  ne sont pas modifiés). Des travaux complémentaires sont nécessaires pour caractériser complètement la dépendance des deux coefficients et pour valider ce modèle dans le cas de l'impact.

## Hétérogénéités topographiques

Les surfaces réelles ne sont pas toujours très lisses comme le silicium, mais présentent des rugosités de l'ordre de plusieurs micromètres. De plus, si cette structuration topographique de surface est judicieusement effectuée, il est possible de rendre la surface super hydrophile ou super hydrophobe. Dans cette partie, nous rappelons les modèles de référence utilisés pour caractériser le caractère mouillant d'une surface en fonction de sa rugosité, dans le cas du dépôt. Dans un second temps, nous présenterons les premiers résultats d'impacts sur une surface super hydrophobe réalisés pour cette étude.

### Modèle de Cassie Baxter et de Wenzel

Théoriquement, pour un système donné, seul un angle de contact est possible. Toutefois, les mesures expérimentales montrent l'existence d'une plage d'angles de contact admissibles. Cet hystérésis s'étend de l'angle d'avancée  $\theta_a$  à l'angle de recul  $\theta_r$  et provient de l'ensemble des hétérogénéités chimiques et géométriques présentes sur la surface, voir de l'absorption du liquide sur la surface ([Lam et al, 2001]). La rugosité notamment, a fait l'objet d'études poussées dans le cas du dépôt d'une goutte et deux approches sont à retenir. En 1936, Wenzel ([Wenzel, 1936]) proposa un argument thermodynamique pour modifier l'équation de Young et y inclure la rugosité. L'hypothèse consiste à considérer que les rugosités augmentent la surface en contact avec le liquide. Pour traduire cet effet, il introduit un facteur correctif  $k_w$  sans dimension et strictement supérieur à 1 (la surface de contact est plus importante pour une surface rugueuse) qui permet de relier l'angle statique  $\theta_{\text{éq}}$  à l'angle apparent  $\theta_w$  suivant la relation IV.8 :

$$\cos\theta_w = k_w \cos\theta_{\text{éq}} \quad (\text{IV.8})$$

La seconde approche est celle proposée par Cassie et Baxter en 1944 ([Cassie & Baxter, 1944]). Les auteurs considèrent qu'une partie des aspérités est mouillée par le fluide (la partie supérieure) mais que l'air est toujours localisé entre la surface et la base de la goutte. On a donc un problème composé de trois phases. Ils définissent l'angle apparent par la relation suivante :

$$\cos\theta_{CB} = \alpha_p \cos\theta_{\text{éq}} - \alpha_b \quad (\text{IV.9})$$

où  $\theta_{CB}$  est l'angle de Cassie Baxter,  $\theta_{\text{éq}}$  est ici aussi l'angle statique,  $\alpha_p$  est la fraction d'aire de surface mouillée par le fluide et  $\alpha_b$  est la fraction d'aire entre les rugosités. Les auteurs précisent que la somme des deux fractions d'aires est égale à 1. Ces deux modèles peuvent

être utilisés pour déterminer les hystérésis d'angles de contact. Il suffit pour cela de remplacer l'angle d'équilibre dans chacune des équations par l'angle d'avancée ou l'angle de reculée. Toutefois, les variations calculées ne correspondent pas souvent aux variations mesurées. Ces deux approches montrent théoriquement que la présence de rugosité amplifie le caractère hydrophile ou hydrophobe de la surface. La limite entre les deux régimes se situe pour un angle de contact sur surface plane, à  $90^\circ$ . Les modèles de [Wenzel, 1936] et de [Cassie & Baxter, 1944] ne tiennent pas compte de l'aspect « escarpé » des rugosités. De plus, dans ces deux approches, les auteurs ne considèrent que la surface d'interaction liquide / solide alors que l'angle de contact est normalement défini au niveau de la ligne triple, soit au niveau de l'interaction gaz / liquide / solide.

### Modèle d'Extrand

En 2002, [Extrand, 2002] proposa des considérations géométriques pour définir des critères théoriques permettant de prédire si une goutte va mouiller une surface rugueuse ou si elle sera suspendue. Les surfaces considérées ne sont pas aléatoires mais constituées de rugosité de forme, de taille et de position contrôlées (figure IV.21).

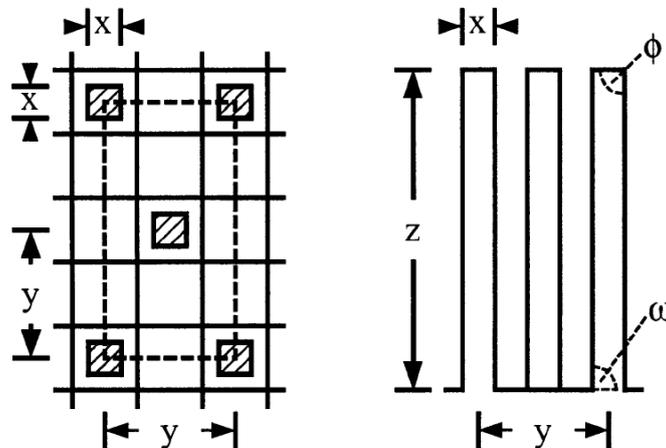


Figure IV.21 : Représentation schématique d'une surface couverte par un remplissage hexagonal de rugosités de formes carrées ( $x$  est la largeur des aspérités,  $y$  l'entraxe,  $z$  la hauteur,  $\phi$  est l'angle en haut des aspérités et  $\omega$  à la leur base), schéma tiré de [Extrand, 2002].

Les critères sont fonction de la densité de ligne en contact entre le fluide et les rugosités. Elles sont définis par :

$$\Lambda = p\delta \tag{IV.10}$$

avec  $p$  le périmètre d'intersection entre le fluide et les aspérités et  $\delta$  la densité de recouvrement de la surface par les rugosités (dans le cas de la figure I.3,  $\delta = y^2/2$ ). Une

comparaison entre les forces de volumes et les forces de surfaces lui permet d'obtenir le critère limite (ou critique) de suspension qui est défini par :

$$\Lambda_c = -\rho g V^{\frac{1}{3}} \frac{\left\{ \left( \frac{1 - \cos \theta_a}{\sin \theta_a} \right) \left[ 3 + \left( \frac{1 - \cos \theta_a}{\sin \theta_a} \right)^2 \right] \right\}^{\frac{2}{3}}}{(36\pi)^{\frac{1}{3}} \sigma \cos(\theta_{a,0} + \varpi + 90^\circ)} \quad (\text{IV.11})$$

avec  $\rho$  la masse volumique du fluide,  $g$  la gravité,  $V$  le volume du fluide,  $\sigma$  la tension de surface,  $\theta_a$  et  $\theta_{a,0}$  respectivement l'angle d'avancée apparent et l'angle d'avancée réel défini par la représentation de Wenzel dans l'équation IV.10. Si  $\Lambda$  est supérieure à  $\Lambda_c$  alors la goutte sera suspendue et la surface sera super hydrophobe. Dans le cas contraire, la goutte mouille la surface qui est alors super hydrophile. Extrand ne donne cependant pas l'influence de la hauteur des rugosités. C'est chose faite depuis 2004 ([Extrand, 2004]), toujours dans le cas de rugosités carrées réparties de manière hexagonale sur la surface. Pour cela, il tient compte du volume de liquide suspendu par le biais d'un facteur  $(1-k)$  qu'il multiplie à l'équation IV.11 où  $k$  est défini, en gardant les mêmes notations que précédemment, tel que :

$$k = \frac{\alpha_p \left[ 96 \left( \frac{1 - \cos \theta_a}{2 + \cos \theta_a} \right) \right]^{\frac{1}{3}}}{\left[ \tan \frac{\theta_a}{2} \left( 3 + \left( \tan \frac{\theta_a}{2} \right)^2 \right) \right]^{\frac{2}{3}}} \quad (\text{IV.12})$$

où  $\alpha_p$  est la fraction d'aire de contact entre l'interface solide et liquide. Dans le cas présenté ici,  $\alpha_p$  est estimé à  $(x/y)^2$ . Il rajoute également un second critère  $z_c$ , qui doit être respecté (sur la hauteur des rugosités) pour que la goutte soit suspendue. Il donne que la profondeur d'avancée du fluide entre les aspérités est dépendant de l'angle d'avancée réel  $\theta_{a,0}$  et de l'espace maximum  $2b$  entre les aspérités.

La figure IV.22 présente schématiquement le comportement de la ligne triple entre deux aspérités. Ce critère est défini par l'équation IV.15 suivante :

$$z_c = b \tan[(\theta_{a,0} + \varpi - 180^\circ)/2] \quad (\text{IV.13})$$

avec  $2b = 2^{1/2}(y-x)$  dans notre cas.

De la même manière que pour  $\Lambda$  et  $\Lambda_c$ , si  $z$  est supérieur à  $z_c$ , la goutte sera suspendue ; elle mouillera la surface dans le cas inverse. Dans son modèle, les angles d'avancée et de reculée sont définis par l'équation suivante :

$$\theta_i = \lambda_p \theta_{p,i} + \lambda_b \theta_{b,i} \quad (\text{IV.14})$$

où  $i = a$  dans le cas de l'angle d'avancée et  $i = r$  dans le cas de l'angle de reculée.  $\theta_{p,i}$  et  $\theta_{b,i}$  sont les angles réels respectivement sur et entre les aspérités.  $\lambda_p$  représente la fraction linéaire de contact du fluide sur les rugosités et  $\lambda_b$  est la fraction de la ligne de contact entre les rugosités. Nous obtenons alors  $\lambda_p + \lambda_b = 1$ .

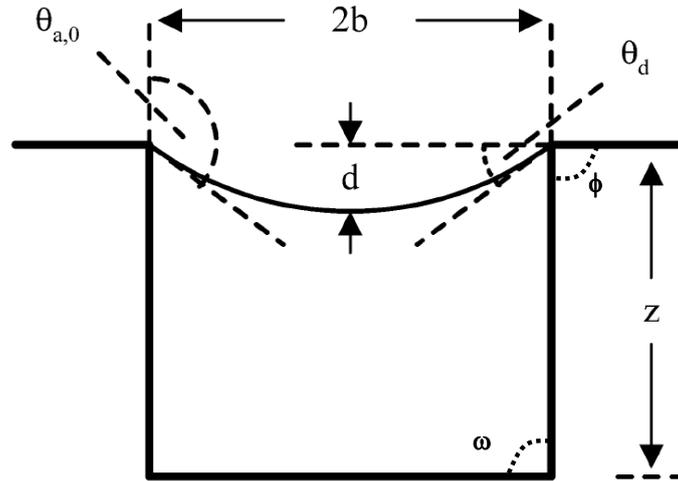


Figure IV.22 : Représentation en vue de côté d'une rugosité de forme rectangulaire ; schéma tiré de [Extrand, 2004].

Dans le cas de la figure IV.21 (répartition hexagonale de plot de forme carrée) :

$$\lambda_p = \frac{x}{y} \left( \sqrt{\frac{5}{4} - 2\frac{x}{y} + \left(\frac{x}{y}\right)^2} + \frac{x}{y} \right) \quad (IV.15)$$

Pour des plots de formes géométriques particulières (carré, hexagone etc...), les formules théoriques des critères importants pour définir la nature de la surface étudiée sont données dans le tableau suivant en conservant les notations précédentes :

Forme du plot	$\delta$	$\Lambda$	$\alpha_p$	$2b$
Carré	$1/y^2$	$4x/y^2$	$(x/y)^2$	$2^{1/2}(y-x)$
Hexagone	$1/y^2$	$4x/y^2$	$2(x/y)^2/[7/4+(x/y)^2]$	$[(5/4)x^2-3xy+2x^2]^{1/2}$
Circulaire	$1/y^2$	$\pi x/y^2$	$(\pi/4)(x/y)^2$	$2^{1/2}y-x$

Tableau IV.1 : Paramètres géométriques pour la suspension ou le mouillage d'une goutte de liquide sur une surface micro rugueuse super hydrophobe ([Extrand, 2004]).

A titre d'exemple, une surface où  $x = 2\mu\text{m}$ ,  $y = 2\mu\text{m}$ ,  $z = 40\mu\text{m}$ ,  $\theta_{a,0} = 117^\circ$  et  $\omega = 90^\circ$  suspendra une goutte d'eau distillée de 2mm environ. Si l'on modifie  $x$  et  $y$  tel que  $x = 64\mu\text{m}$  et  $y = 128\mu\text{m}$ , la goutte mouillera la surface.

Quelques résultats sont donnés à titre d'exemple dans le tableau IV.2 ainsi que l'extrapolation au cas des microgouttes pour le cas de l'eau distillée déposée sur une surface où  $\theta_{a,0} = 108^\circ$  et  $\omega = 90^\circ$ .

Plot	$D_0$	$x$ ( $\mu\text{m}$ )	$y$ ( $\mu\text{m}$ )	$z$ ( $\mu\text{m}$ )	$\Lambda$	$z_c$ ( $\mu\text{m}$ )	$\Lambda_c$	résultats
carré	2mm	2	4	40	$5 \cdot 10^5$	0.22	$1.9 \cdot 10^4$	suspendu
carré	2mm	32	64	40	$3.1 \cdot 10^4$	3.58	$1.9 \cdot 10^4$	suspendu
carré	2mm	64	128	40	$1.56 \cdot 10^4$	10.6	$1.9 \cdot 10^4$	mouillage
carré	2mm	32	64	3	$3.1 \cdot 10^4$	3.58	$1.9 \cdot 10^4$	mouillage
carré	$150\mu\text{m}$	32	64	40	$3.1 \cdot 10^4$	3.58	$1.4 \cdot 10^3$	suspendu
carré	$150\mu\text{m}$	2	4	40	$5 \cdot 10^5$	22	$1.4 \cdot 10^3$	suspendu

**Tableau IV.2 : Exemple et extrapolation du modèle de [Extrand, 2004] à la suspension ou au mouillage d'une goutte d'eau distillée.**

Ces critères permettent de déterminer rapidement et simplement la capacité d'une surface à suspendre une goutte. Ils viennent compléter les modèles existants et sont en bonne adéquation avec les résultats expérimentaux. Cependant, le cas de l'impact n'est pas abordé. Le bilan des forces qui conduit à l'écriture de ces critères ne prend pas en compte l'inertie de la goutte à l'impact. Une question supplémentaire est encore en suspens. Si l'on force le mouillage d'une goutte sur une surface super hydrophobe par l'application d'une pression supplémentaire ( $\Delta P = -\Lambda \sigma \cos(\theta_{a,0} + \omega - 90^\circ)$ , [Extrand, 2004]), y aura-t-il démouillage ? Dans quelles conditions et à quelle vitesse ?

### **Cas de l'impact sur une surface rugueuse super hydrophobe**

Pour répondre aux questions précédemment posées, nous avons préparé une surface super hydrophobe. Le mode opératoire consiste à réaliser une nanostructuration géométrique de la surface puis à effectuer un traitement chimique hydrophobe par greffage de silanes. Pour ce faire, la technologie de DRIE silicium, qui est aujourd'hui classique pour la création de structure de silicium, permet de réaliser des structurations géométriques présentant de fortes

variations d'aspect. Ce procédé de nanostructuration ([Bhardwaj et al, 1997; Ayon et al, 1999]), consiste en une alternance d'étapes de gravure et de protection de durée et de fréquence contrôlées (figure IV.23). En jouant sur les paramètres expérimentaux, il est possible de créer une grande surface de nanostructures de la forme de pics ([Jansen et al, 1995]).

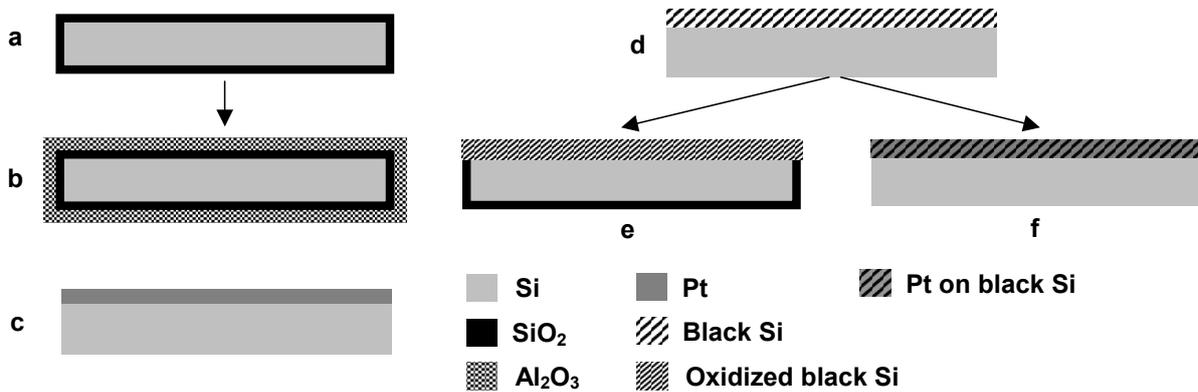
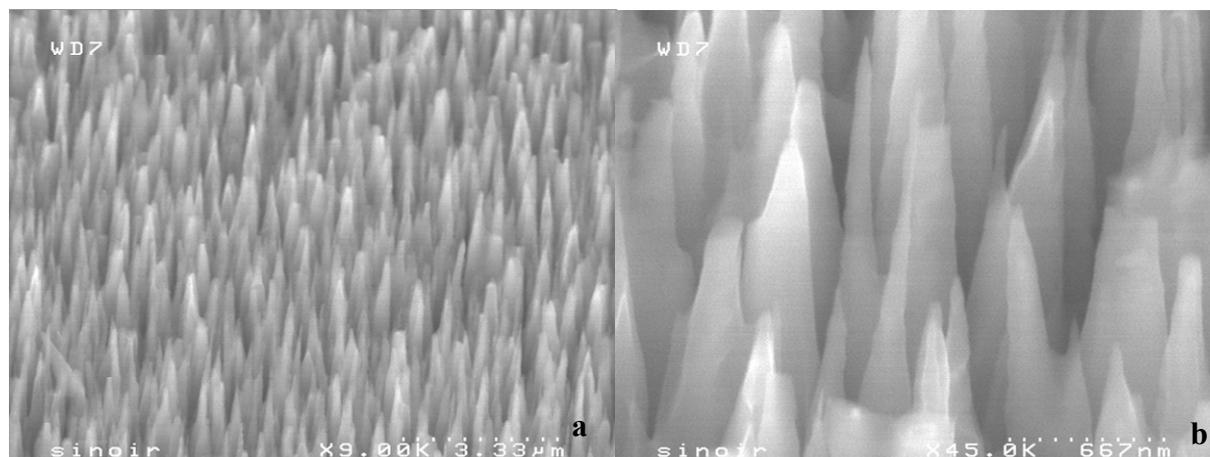


Figure IV.23 : Diagramme schématisé de la microfabrication de surface plane, (a, e) épaisseur de la couche de SiO<sub>2</sub>, (b) rinçage Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, (c, f) dépôt de Pt et (d) formation du silicium noir.

Cette nanostructuration particulière est appelée « silicium noir » du fait qu'il n'y ait aucune réflexion lumineuse. Il est utilisé pour créer des surfaces super hydrophobes ([Kim & Kim, 2002]) ou pour absorber la lumière dans des applications photovoltaïques ([Schnell et al, 2000]). Les conditions expérimentales pour réaliser ce « silicium noir » avec le procédé DRIE sont décrites par d'autres groupes de recherche ([Jansen et al, 1995 ; Besser & Shin, 2003]). Les paramètres géométriques des pics (hauteur, largeur et angle) dépendent largement des conditions opératoires. Dans notre cas, le silicium noir est réalisé avec une machine Multiplex STS. Les pics ont la forme de cônes d'une hauteur de 1.5µm et d'un diamètre de 0.2µm à mi-hauteur. La surface externe pour un cône avec ces caractéristiques est de 1.95µm<sup>2</sup> et la surface occupée par ce dernier sur la surface plane est de 0.12µm<sup>2</sup> (figure IV.24). L'angle de contact que forment les pics avec la surface et la distance entre deux sommets sont respectivement de 87° environ et de 0.65µm. Pour le calcul, il est impératif de connaître la surface supérieure des pics. Sur une image de la surface réalisée au microscope électronique à balayage, l'angle de contact et le diamètre à mi-hauteur sont mesurés sur une série de pics. A partir de ces résultats, le diamètre au sommet est calculé à 0.015µm et la surface supérieure est considérée circulaire (le pic est un cône).

Suite à cette nanostructuration, un greffage de la fonction chimique de type 8 (chapitre II) est effectué afin de rendre la surface super hydrophobe.



**Figure IV.24 : Observation, au microscope électronique à balayage de la surface super hydrophobe, (a) grossissement x9 et (b) grossissement x45.**

Sur cette surface, plusieurs expériences d'impact sont réalisées. D'une part, des expériences avec des macrogouttes d'eau distillée à des vitesses de 0.35, 0.5 et 1m/s et de formamide et d'éthylène glycol à une vitesse de 0.5m/s. Pour les microgouttes, seule de l'eau distillée est utilisée, le diamètre en vol est de 150μm et la vitesse d'impact est de l'ordre de 0.5m/s. Dans ce dernier cas, la fréquence d'acquisition est fixée à 43000 i/s et l'illumination est assurée par un dispositif de diode laser modulé Omicron LDM658 de 250mW de puissance et à 658nm de longueur d'onde. L'illumination est alors monochromatique (ce qui explique la présence des zones plus ou moins lumineuses ainsi que la présence des franges d'interférences destructrices liées à la réflexion de la surface de silicium) mais sa durée est réduite jusqu'à 25ns (figure IV.24). Cette méthode d'observation est équivalente à celle décrite dans le chapitre II avec la combinaison caméra rapide / ministrobokin. L'instantanéité et le contraste obtenus sont excellents et les déformations de la goutte ainsi que le rebond total sont parfaitement visibles (figure IV.25).

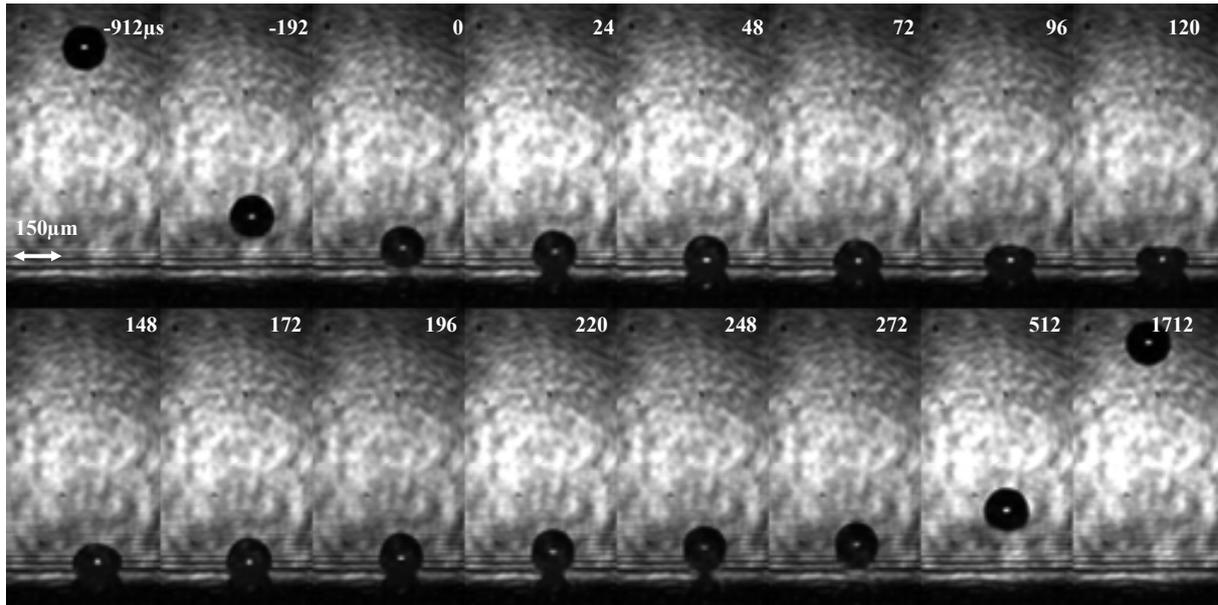


Figure IV.25 : Impact et rebond d'une goutte d'eau distillée de  $150\mu\text{m}$  de diamètre, impactant à  $0.5\text{m/s}$  sur une surface de silicium noir ( $x = 0.015\mu\text{m}$ ,  $y = 0.65\mu\text{m}$ ,  $z = 1.5\mu\text{m}$ ),  $We = 0.5$ ,  $Re = 75$ .

Les résultats de ces essais (suspension ou mouillage) sont reportés dans le tableau IV.3 avec les valeurs des différents critères de suspension ([Extrand, 2002 ; Extrand, 2004]).

Fluide	$D_0$	$U$ (m/s)	$\Lambda$	$\Lambda_c$	$z_c$ ( $\mu\text{m}$ )	Résultat
Eau distillée	2.2mm	0.35	$1.12 \cdot 10^5$	$0.065 \cdot 10^5$	$5.8 \cdot 10^{-2}$	Suspendu
Eau distillée	2.2mm	0.5	$1.12 \cdot 10^5$	$0.065 \cdot 10^5$	$5.8 \cdot 10^{-2}$	Suspendu
Eau distillée	2.2mm	1	$1.12 \cdot 10^5$	$0.065 \cdot 10^5$	$5.8 \cdot 10^{-2}$	Suspendu
Eau distillée	$150\mu\text{m}$	0.5	$1.12 \cdot 10^5$	$0.017 \cdot 10^5$	$5.8 \cdot 10^{-2}$	Suspendu
Formamide	2mm	0.5	$1.12 \cdot 10^5$	$0.622 \cdot 10^5$	$2.7 \cdot 10^{-2}$	Suspendu
Ethylène glycol	1.8mm	0.5	$1.12 \cdot 10^5$	$1.23 \cdot 10^5$	$1.2 \cdot 10^{-2}$	Mouille

Tableau IV.3 : Critères de suspension [Extrand, 2002 ; Extrand, 2004] dans le cas du dépôt et résultat de l'impact.

Dans le cas de l'éthylène glycol, la densité de ligne  $\Lambda$  est inférieure à sa valeur critique et c'est le seul cas où il y a mouillage. L'expérience de dépôt avec ce fluide est réalisée et le mouillage apparaît également. Il semblerait donc que la présence d'une vitesse d'impact ne modifie en rien le mouillage ou la suspension d'une goutte de fluide et que les critères de densité de ligne et de hauteur de plot soient suffisants pour définir le caractère super hydrophobe ou non de la surface. Toutefois, cette affirmation doit être nuancée en raison du

nombre limité de vitesses d'impacts testées et des expériences supplémentaires sont alors nécessaires pour la valider.

Notons, toujours pour l'éthylène glycol, que la différence entre  $\Lambda$  et  $\Lambda_c$  est relativement faible, mais suffit pour provoquer un mouillage de la surface. En revanche, nous n'avons pas pu obtenir un écart faible pour observer l'effet de la vitesse, même dans le cas où  $\Lambda > \Lambda_c$ .

Bien que la vitesse d'impact ne semble pas forcer le mouillage (au moins dans la gamme de vitesses testées) elle n'est cependant pas sans influence. En effet, pour l'éthylène glycol, avant d'obtenir le mouillage de la surface, la goutte rebondit une première fois totalement suite au démouillage de la surface. Ceci est en accord avec [Rioboo, 2003] qui précise que ce cas se produit lorsque l'angle dynamique (lors du démouillage) que forme le liquide avec la surface est supérieur à  $90^\circ$ . Ce n'est que lors du troisième étalement (troisième impact), où l'étalement maximum et le démouillage sont moins prononcés, que la goutte semble mouiller effectivement la surface (figure IV.26). Cet effet s'observe également lors du dépôt où la vitesse d'impact n'est jamais complètement nulle.

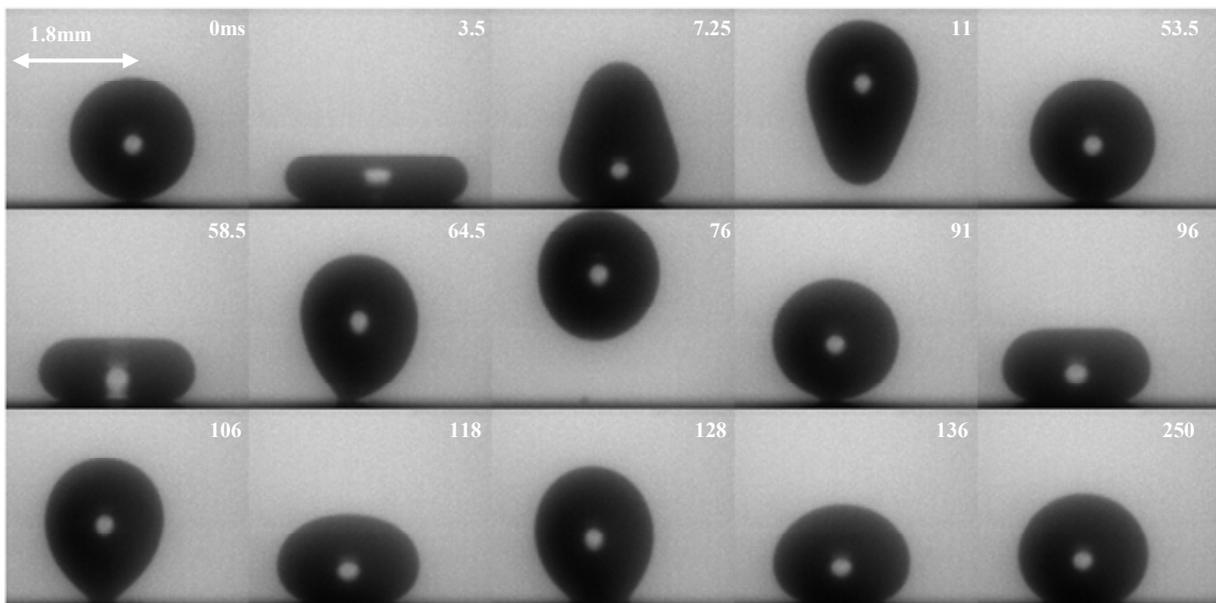


Figure IV.26 : Impact d'une goutte d'éthylène glycol sur une surface super hydrophobe,  $D_0 = 1.8\text{mm}$ ,  $U = 0.5\text{m/s}$ ,  $\sigma = 47\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1.7\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1100\text{kg/m}^3$ ,  $\theta_{eq} = 143^\circ$  (mesure manuelle),  $We = 10.7$ ,  $Re = 595$ .

Précisons que la mesure de l'angle de contact à l'équilibre a été effectuée à la fois par mesure manuelle et à partir de nos algorithmes de traitement d'image (chapitre II). Dans le premier cas, la mesure obtenue est de  $143^\circ$  alors que le traitement automatique donne  $144 \pm 2.5^\circ$ . Le résultat est cohérent aux incertitudes de mesure près. Précisons toutefois que la valeur de cet

angle peut varier en raison du caractère hétérogène (les pics ne sont pas disposés précisément et leur forme et leur taille ne sont pas homogènes) de notre surface superhydrophobe. [Brandon et al, 2003 ; Marmur, 2004] précisent qu'un hystérésis d'angle de contact est observable (plusieurs états métastables sont envisageables) du fait de la forte dépendance des minima d'énergie libre du système aux paramètres de volume de liquide et des caractéristiques de la surface rugueuse. Dans les expériences présentes, les impacts ont été reproduits autant que possible sur la même zone de la surface avec les difficultés que cela comporte (nettoyage, positionnement etc...).

En conclusion, il ne semble pas possible de forcer le mouillage d'une goutte de fluide sur une surface super hydrophobe en augmentant la vitesse d'impact. Au contraire, la vitesse initiale provoque un rebond total lors du démouillage. Il est cependant important de préciser qu'un seul type de surface est testé, et que les vitesses d'impacts sont inférieures à 1m/s. Des travaux complémentaires sont nécessaires pour bien établir l'influence de cette vitesse d'impact ainsi que l'existence éventuelle d'une vitesse de mouillage forcé.

Conclusion : Les surfaces chimiquement et/ou topographiquement hétérogènes ont fait l'objet d'une étude. Pour le premier type de surface, qui entrent dans la constitution d'un procédé présenté au chapitre suivant, nous avons montré que, lors de l'impact d'une goutte sur une surface présentant une discontinuité de mouillabilité, l'évolution du diamètre et de l'angle de contact dynamique sur chacune des deux parties de la surface restent similaires à ceux observés lors de l'étalement sur une surface homogène d'angle identique. Par ailleurs, la vitesse de déplacement global moyenne a été comparée au modèle de [Daniel et al, 2004] et un accord significatif a été observé (pente équivalente). Notons également que dans notre cas, il s'agissait d'une discontinuité de mouillage au contraire de [Daniel et al, 2004] qui considéraient un gradient « continu ». Enfin, nous avons montré la dépendance de la loi proposée à la viscosité du liquide.

Sur les surfaces superhydrophobes (hétérogénéité topographique), nous avons considéré le cas de l'impact de gouttes dont la taille varie de 150 $\mu$ m à 2.28mm. Nous avons montré que la présence d'une vitesse d'impact ne permettait pas de forcer le mouillage de la surface (pour We compris entre 0.5 et 35 et Re compris entre 75 et 2300). L'utilisation de critères géométriques a permis de caractériser le caractère mouillable ou non de la surface. Ces critères, initialement prévus pour le cas du dépôt ont montré leur pertinence dans le cas de l'impact, pour la gamme de vitesse étudiée. C'est un résultat original.

## Chapitre V

### Applications

Les situations où des gouttes de liquide impactent sur des surfaces sont nombreuses et ne concernent pas uniquement un problème académique. Dans ce chapitre, nous allons développer particulièrement deux applications. Dans un premier temps, nous nous intéresserons au domaine de l'impression numérique où l'impact de gouttes est essentiel pour la qualité d'impression. En second lieu, nous considérerons une application en relation avec la synthèse in-situ d'oligonucléotides dans laquelle une goutte de fluide polymérique permet de réaliser une couche protectrice.

#### ***Application au jet d'encre***

L'impact de goutte sur des surfaces solides non poreuses trouve de nombreuses applications et notamment en impression numérique. Dans ce cas, une image se compose d'une multitude de microgouttes de quelques dizaines de micromètres de diamètre disposées les unes à côté des autres et qui peuvent également se mélanger. Lorsqu'une goutte éjectée entre en contact avec une ou plusieurs autres gouttes précédemment déposées sur la surface, ce phénomène est appelé coalescence. C'est de la juxtaposition plus ou moins précise de plusieurs gouttes de couleur : cyan, magenta et jaune plus du noir (voire de 6 couleurs plus du noir pour des systèmes hexachrome) et / ou de leur coalescence que résulte une image (figure V.1). L'étude de ce phénomène est donc capital dans l'optique de l'optimisation de la qualité d'impression où la taille et la forme des gouttes en fin d'étalement sont deux des principaux paramètres. Deux cas sont étudiés en détail dans ce chapitre, la coalescence axisymétrique et la coalescence non axisymétrique.

En ce qui concerne la configuration de coalescence axisymétrique, la seconde goutte arrive au sommet de la goutte au repos. Dans le cas de la configuration de coalescence non axisymétrique, la goutte qui impacte, entre en contact avec la surface et interagit avec la goutte au repos au cours de son étalement. C'est de cette configuration que provient la majorité des problèmes, en particulier lorsque la quantité d'encre est importante. Les mécanismes ne sont pas bien connus à l'heure actuelle comme, par exemple, l'effet de la mouillabilité de la surface, ou encore ceux de la viscosité ou de la tension de surface. Par ailleurs, dans le cas de la coalescence asymétrique, un transfert radial de fluide s'effectue, ce

qui modifie la configuration finale de la goutte. De nombreux points sont en suspens et nous allons tenter de mettre en avant un certain nombre d'éléments de réponse. Dans ce paragraphe, nous étudions la coalescence symétrique et asymétrique dans le cas de macrogouttes et de microgouttes en conservant les mêmes conditions expérimentales que dans le cas de l'impact d'une goutte unique.

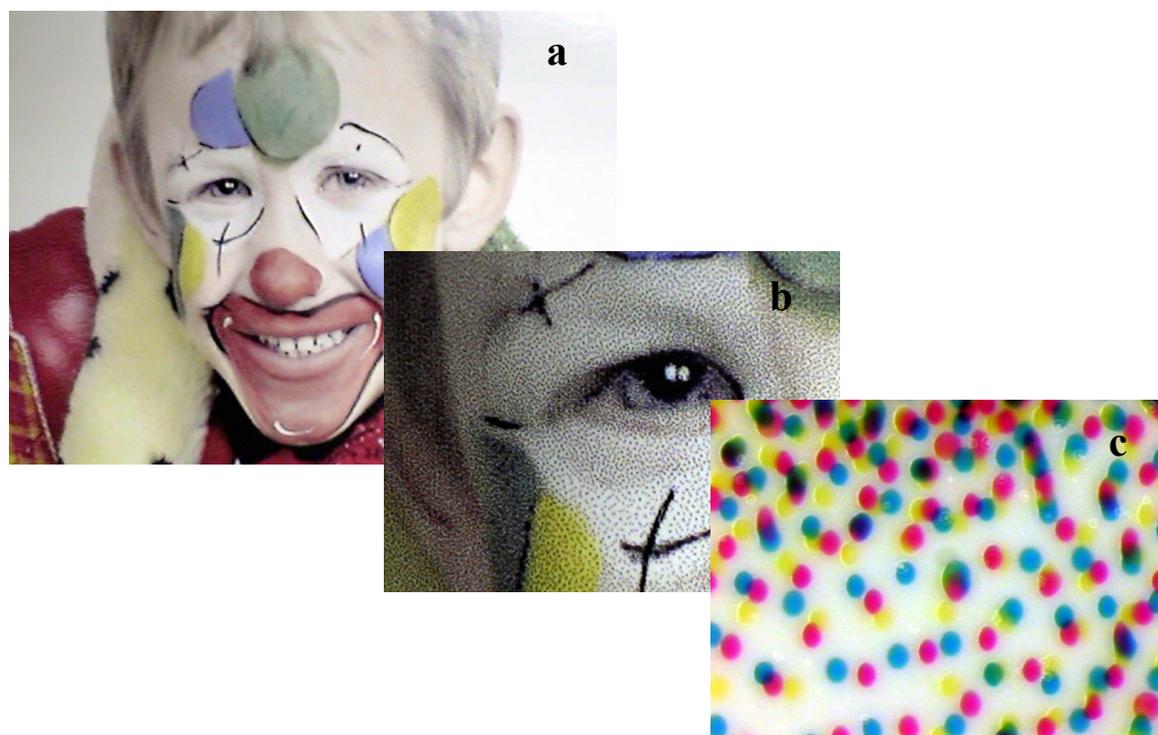


Figure V.1 : Observation d'une image réalisée par impression numérique, (a) image globale, (b) grossissement de la zone de l'œil, (c) grossissement supérieur montrant la disposition des gouttes.

Dans tous les cas, il est utile de rappeler que les échelles de temps associées aux mécanismes d'impact ou de coalescence de microgouttes sont de l'ordre de quelques dizaines de microsecondes. La figure V.2 rappelle l'évolution d'une microgoutte sur une surface mouillante en échelle de temps et de longueur dimensionnelle. Cet exemple est caractéristique des applications de jet d'encre telles que les imprimantes de bureautiques ou industrielles. Généralement, la vitesse d'impact est plus importante mais les mécanismes sont identiques et la durée de l'étalement reste de l'ordre de la seconde. Dans les applications utilisant des encres UV, la réticulation est utilisée pour solidifier l'encre et, par conséquent, stopper l'évolution de la goutte sur la surface. Cette figure met en corrélation les temps auxquels il faut réaliser cette réticulation pour obtenir un diamètre donné. De plus, il faut retenir que l'exposition au UV s'effectue seulement après plusieurs dizaines de millisecondes. Toutefois,

l'étalement est plus qu'avancé au bout de ces quelques millisecondes, ce qui justifie les travaux sur l'interaction solide / liquide en vue de contrôler la taille final de la goutte.

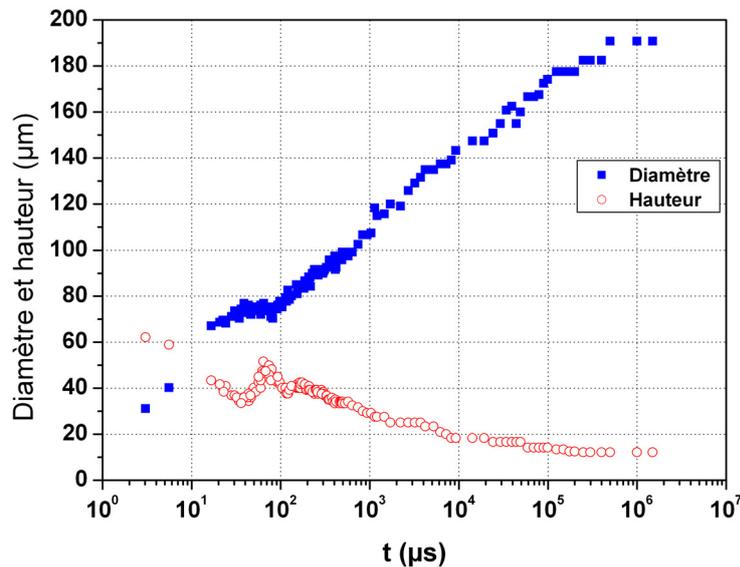


Figure V.2 : Etalement d'une goutte d'encre base eau sur du verre,  $D_0 = 64.7\mu\text{m}$ ,  $U = 1.21\text{ m/s}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 10^\circ$ ,  $\mu = 3.2\text{ mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 33.2\text{ mN/m}$ ,  $\rho = 996\text{ kg/m}^3$ ,  $We = 2.85$ ,  $Re = 24$ .

## Dispositifs expérimentaux

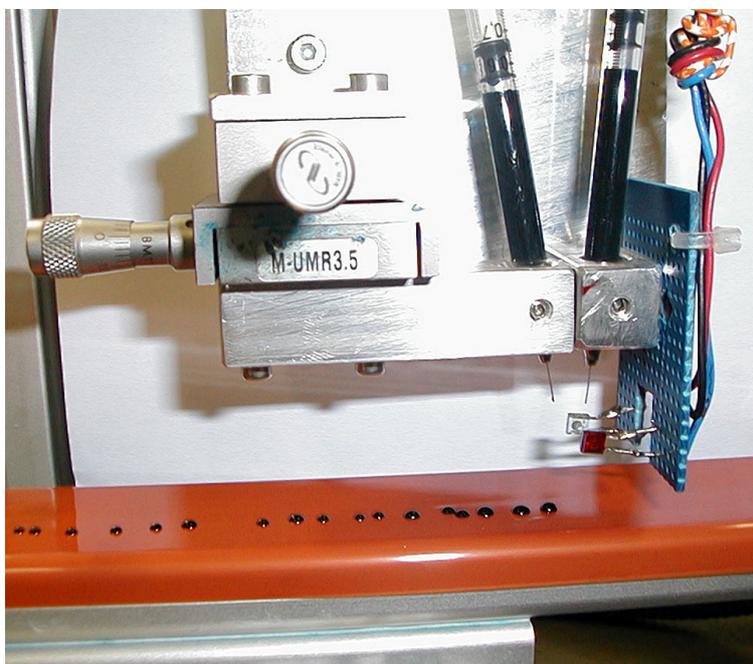
L'étude présentée ici considère la coalescence de deux gouttes de liquide qui peuvent être identiques ou non sur une surface non poreuse. En fonction de la taille des gouttes, les adaptations des dispositifs expérimentaux sont plus ou moins importantes.

### Macrogouttes

Dans le cas de la coalescence axisymétrique, deux gouttes identiques sont générées successivement avec un décalage temporel suffisant pour s'assurer que la première goutte se trouve dans un état d'équilibre. Le capteur optique de passage ne déclenche l'acquisition qu'au deuxième signal et avec un délai variable fixé par l'utilisateur (le dispositif de déclenchement reste identique à celui présenté dans le chapitre II pour les deux configurations).

Le cas le plus contraignant expérimentalement est la configuration non axisymétrique. Un dispositif expérimental plus élaboré au niveau du système d'éjection est utilisé pour le

positionnement précis des gouttes. Le substrat est fixé sur un banc de translation motorisé (précision : dizaines de micromètres) pour le déplacement entre deux expériences.



**Figure V.3 : Dispositif de génération de macrogouttes dans le cas de la coalescence non axisymétrique.**

Le système de génération reste basé sur une pompe pousse seringue reliée à une seringue équipée d'une aiguille à bout droit parfaitement calibrée à  $150\mu\text{m}$  de diamètre. Dans ce cas, deux aiguilles identiques et positionnées indépendamment l'une de l'autre sont utilisées. La première est reliée à un dispositif de déplacement micrométrique manuel de 8mm de course pour un déplacement dans le plan XY. La seconde, fixe, sert de référence et correspond à la goutte qui vient coalescer avec la première (figure V.3). C'est la détection du passage de cette seconde goutte par un capteur optique qui déclenche l'enregistrement de la caméra. La juxtaposition de deux gouttes impose d'augmenter la zone d'observation le long de la surface, aussi les grossissements sont diminués. La conséquence est immédiate sur les incertitudes de mesure. Elles sont toujours de l'ordre de quelques pixels (de un à quatre) mais sur un total supérieur (la longueur des deux gouttes juxtaposées est plus grande). De plus, chaque pixel représente une taille plus importante ( $30\mu\text{m}$  à la place de  $20\mu\text{m}$  par exemple) mais ces incertitudes restent aux alentours de 5%. Deux exemples d'observations expérimentales sont présentés sur la figure V.4.

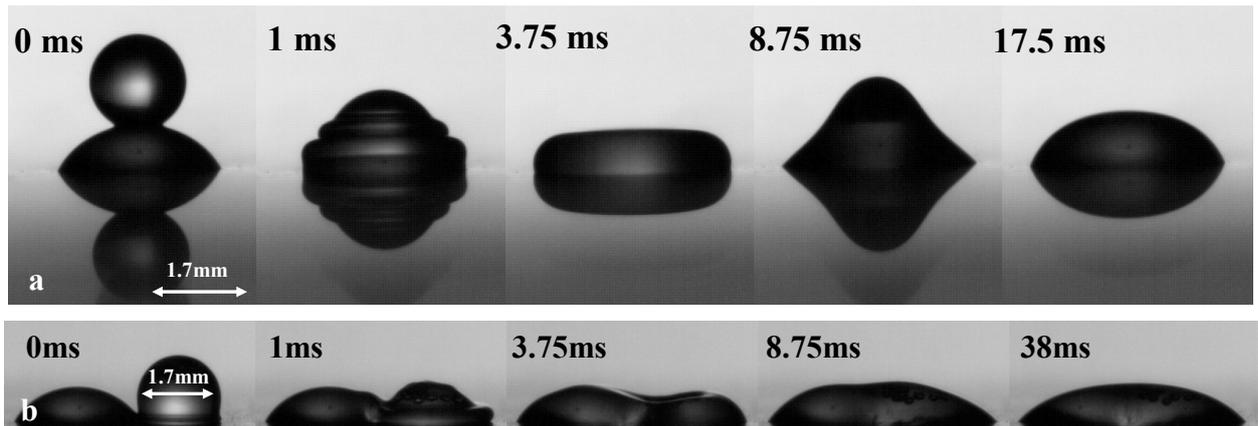


Figure V.4 : Coalescence (a) axisymétrique et (b) non axisymétrique de deux gouttes identiques d'un mélange d'eau distillée, de glycérol et de tensioactif,  $D_0 = 1.7\text{mm}$ ,  $U = 0.7\text{m/s}$ ,  $\sigma = 30\text{mN/m}$ ,  $\mu = 10\text{mPa.s}$ .

## Microgouttes

Dans le cas des microgouttes, le dispositif utilisé est plus élaboré encore. Le dispositif en place à AGFA-GEVAERT permet d'étudier tous types de coalescence en fixant avec précision l'entraxe entre les points d'impacts de chacune des deux gouttes. En raison de l'encombrement et du positionnement vertical (voir chapitre II), le substrat est placé sur un banc de translation commandé électriquement mais de faible précision.

Dans la configuration de coalescence non axisymétrique, la distance entre les points d'impacts des deux gouttes est un paramètre important du problème et dont la modification nécessite une très grande précision. Le système d'éjection se compose donc de deux éjecteurs piézoélectriques de 128 buses Spectra SL 128 ® qui permet de former des gouttes d'environ  $50\mu\text{m}$  de diamètre avec une vitesse d'impact de  $8\text{m/s}$  en utilisation optimale. Sur la figure V.5, l'ensemble du dispositif est présenté et les possibilités de déplacement micrométriques des éjecteurs sont numérotées de 1 à 4. La translation numéro 1 est horizontale, elle a une amplitude de 10 cm et positionne les éjecteurs en face de la caméra. La translation numéro 2 est verticale et règle précisément la distance au substrat. La translation 3 correspond au déplacement du second éjecteur par rapport au premier pour modifier la distance entre les points d'impact des deux gouttes. L'amplitude est restreinte à 8mm. En effet, la distance entre les buses est de  $508\mu\text{m}$  et le pilotage électronique des éjecteurs, permet de contrôler au choix, chacune des 128 buses de chacune des têtes ([Desie et al, 2004]). De surcroît, ce dispositif assure le délai entre l'éjection des deux gouttes ainsi que le déclenchement de l'enregistrement.

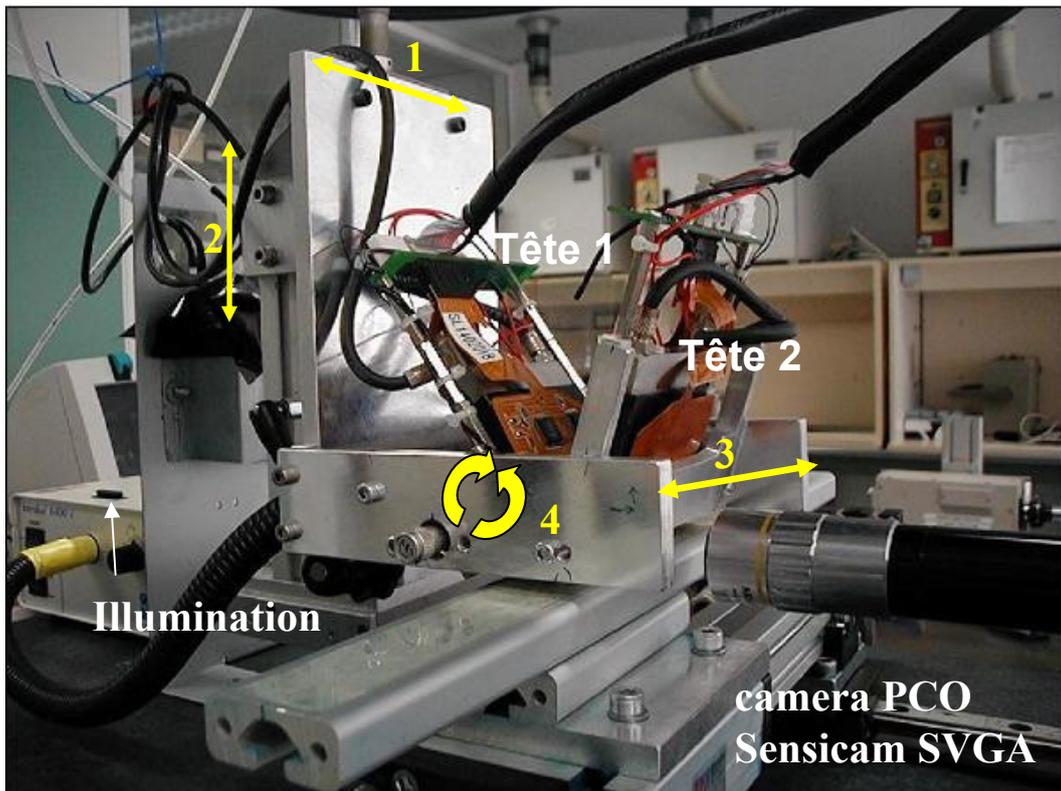
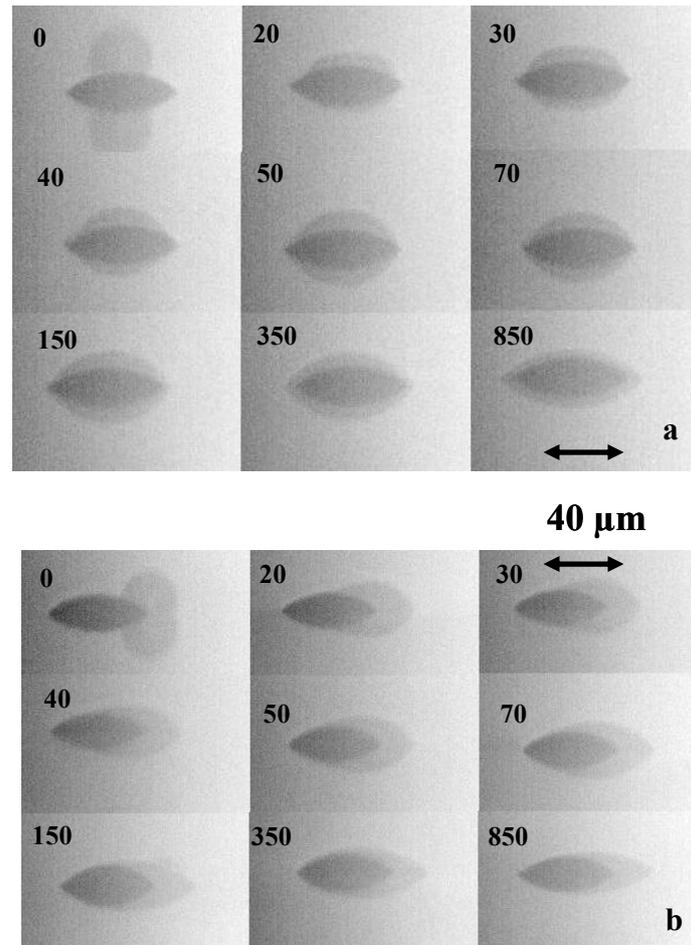


Figure V.5 : Dispositif expérimental pour l'étude de la coalescence axisymétrique et asymétrique des microgouttes.

Enfin, le mouvement 4 permet une rotation de l'éjecteur numéro 1 de  $45^\circ$  à  $120^\circ$  par rapport à l'horizontale. Ces têtes d'impression ne peuvent éjecter des fluides que dans une gamme limitée ( $\sigma$  compris entre 30 et 35mN/m et  $\mu$  entre 8 et 20mPa.s). Pour des encres trop visqueuses à température ambiante, un système de chauffage interne augmente la température jusqu'à  $70^\circ\text{C}$ . Cette régulation s'effectue à  $\pm 1^\circ\text{C}$  (observation à l'affichage) par un test, toutes les 3 secondes, de la température au niveau de la plaque à buse. Cependant, le chauffage et la sonde de température n'étant pas disposés très près l'un de l'autre, nous pouvons supposer que les variations de température dans l'éjecteur sont supérieures aux écarts observés sur l'afficheur. En ce qui concerne l'illumination, elle est, une fois encore, réalisée par une lumière constante guidée par fibre optique (Intralux 6000). La caméra Sensicam SVGA, utilisée à la fois en pseudo cinématographie à déphasage contrôlé et en mode multi expositions, permet d'enregistrer et de reconstituer le phénomène observé. La figure V.6 présente un cas de coalescences axisymétrique et non axisymétrique de deux gouttes d'une même encre.



**Figure V.6 : Coalescence de deux gouttes d'encre UV dans le cas (a) axisymétrique (entraxe à 0 μm) et (b) non axisymétrique avec 49 μm d'entraxe,  $D_0 = 56 \mu\text{m}$ ,  $U = 4 \text{m/s}$ ,  $\sigma = 31 \text{mN/m}$ ,  $\mu = 9.5 \text{mPa.s}$  à 25°C, les temps correspondant à des microsecondes.**

Sur cette figure, la différence de teintes entre la première et la seconde goutte provient de l'utilisation du mode de multi exposition. Comme nous l'avons expliqué auparavant dans le chapitre II, la première goutte impactée est exposée à deux reprises. Son niveau de gris est donc supérieur. Dans le cas axisymétrique, l'étalement de la deuxième goutte sur la première présente notamment une déformation sur sa périphérie. A la fin de l'étalement, la goutte finale a une hauteur et un diamètre supérieur. Il faut également noter l'absence d'un bourrelet à la périphérie des gouttes, comme pour les macrogouttes. La forme générale de la goutte n'est pas modifiée et le caractère axisymétrique est conservé. En revanche, dans le cas de la coalescence non axisymétrique, le point de coalescence se déplace de la ligne de contact vers le centre de la première goutte, traduisant ainsi le mélange des deux gouttes. En fin d'étalement, le diamètre est nettement supérieur mais la hauteur a peu évolué. Ceci s'explique par le fait que la goutte a une forme ellipsoïdale plutôt que circulaire ([Narhe et al, 2004],

figure V.7), ce qui est possible en particulier sur les surfaces mouillantes et avec une hystérésis d'angle de contact important.

Ces deux configurations correspondent à un cas réel rencontré dans le jet d'encre. La majorité des déplacements de la ligne de contact ne s'effectue pas sous l'effet de l'inertie de la goutte incidente mais plutôt lors de la réorganisation spatiale de la masse de liquide sous l'action des forces physico-chimiques (ici :  $We = 29$ ,  $Re = 9$ ).

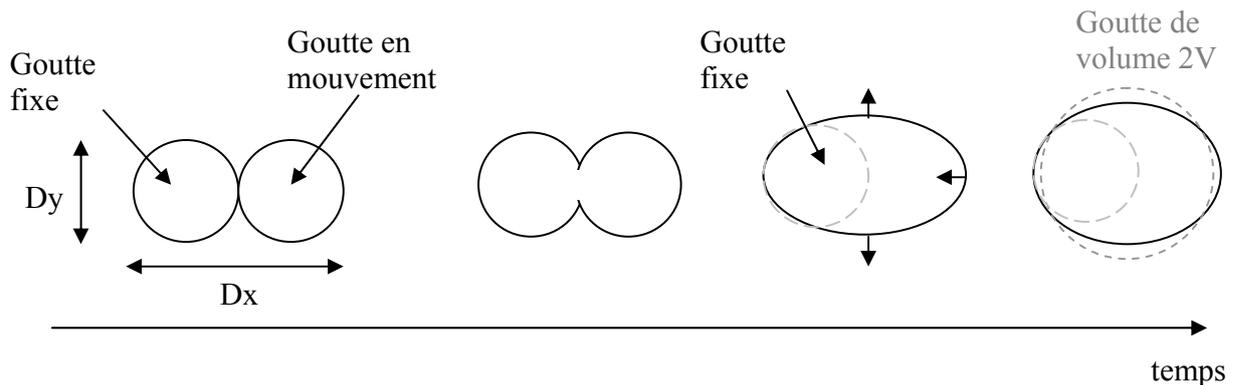


Figure V.7 : Evolution de la forme des gouttes après coalescence non axisymétrique.

Cette méthode d'observation en multi exposition est particulièrement importante pour dissocier les deux gouttes et observer la position des points d'impact. Le diamètre, la hauteur et les angles de chaque côté de l'ensemble coalescé sont mesurables. Malheureusement, cette double exposition ne permet pas d'observer facilement les déformations et les déplacements de la ligne de contact. En effet, elle donne l'illusion que la goutte initiale ne se déplace pas lors de la coalescence. Les déformations qui pourraient apparaître durant le mélange au niveau de cette première goutte ne sont pas observables puisqu'elles restent localisées dans la zone doublement exposée.

### Coalescence axisymétrique

La coalescence axisymétrique est une configuration particulière de l'interaction de deux gouttes de fluide. Ce problème est très peu traité dans la littérature (le cas le plus étudié est la coalescence d'une goutte avec un film de liquide d'épaisseur homogène) bien qu'il soit relativement courant dans les applications. En effet, lors de l'impression numérique, il n'est pas rare que deux gouttes se superposent. Ce mécanisme est également important dans des

applications biologiques et notamment dans le cas de la synthèse in situ d'ADN (voir partie B de ce chapitre) où il s'agit d'augmenter un volume de fluide tout en le confinant.

Dans cette partie, nous mettrons l'accent sur l'influence des principaux paramètres physiques tels que la vitesse d'impact, la mouillabilité de la surface ou encore la tension de surface et la viscosité du fluide considéré. Dans chacun des cas présentés, nous considérons deux gouttes identiques d'un même fluide et les résultats sont comparés au cas de l'impact d'une goutte seule. Enfin et comme précédemment, nous décrirons un modèle construit à partir de considérations géométriques et énergétiques pour prévoir l'évolution du diamètre de contact lors de la coalescence.

### Comportement général

La coalescence axisymétrique est l'impact d'une goutte de fluide au sommet d'une autre goutte de fluide se trouvant sur le support et dans son état d'équilibre. A l'instant de la coalescence, il s'agit de l'interaction entre deux interfaces liquides / gaz ; les phénomènes qui régissent ce mécanisme sont donc, *a priori*, différents de ceux de l'impact d'une goutte seule. La ligne de contact ne joue un rôle que lors de l'expansion de la lamelle. Cependant, le problème reste axisymétrique et ce mécanisme reste contrôlé par les équations de Navier-Stokes. Les nombres sans dimension du problème restent donc le nombre de Weber et le nombre de Reynolds, les échelles caractéristiques du problème sont elles identiques au cas d'une goutte seule.

Le mécanisme de coalescence apparaît dès lors que les deux fluides sont miscibles (ce qui est toujours notre cas) et que les interfaces sont suffisamment proches ([Mackay & Mason, 1963] prédisent que la coalescence ne peut avoir lieu tant que la distance entre les deux interfaces est supérieure à  $10^2 \text{ \AA}$ ). Pour ce faire, il faut évacuer les molécules d'air comprises entre ces deux interfaces suffisamment rapidement pour ne pas en piéger une quantité trop importante. Dans le cas contraire, la coalescence pourrait ne pas avoir lieu. Ceci laisse penser que la tension de surface, qui est la traduction de ce type d'interaction, est un des paramètres dont l'influence est prépondérante.

La figure V.8 présente la coalescence axisymétrique de deux gouttes d'eau distillée identiques impactant sur une surface industriel de polyéthylène avec un couchage hydrophobe. Le diamètre des gouttes est de 2.4mm et la vitesse d'incidence de la seconde goutte est de 1m/s. La méthode d'acquisition est dans ce cas de la pseudo-cinématographie à déphasage contrôlé

([Vadillo, 2003]). Sur cette figure, nous constatons, dans les premiers instants, que le diamètre de base ne varie pas et il faut attendre 1.5 ms pour observer un déplacement. Notons, par ailleurs, qu'entre les photos à 1.25 ms et 1.5 ms, l'angle de contact a augmenté de façon importante, passant de  $60^\circ$  à environ  $120^\circ$ .

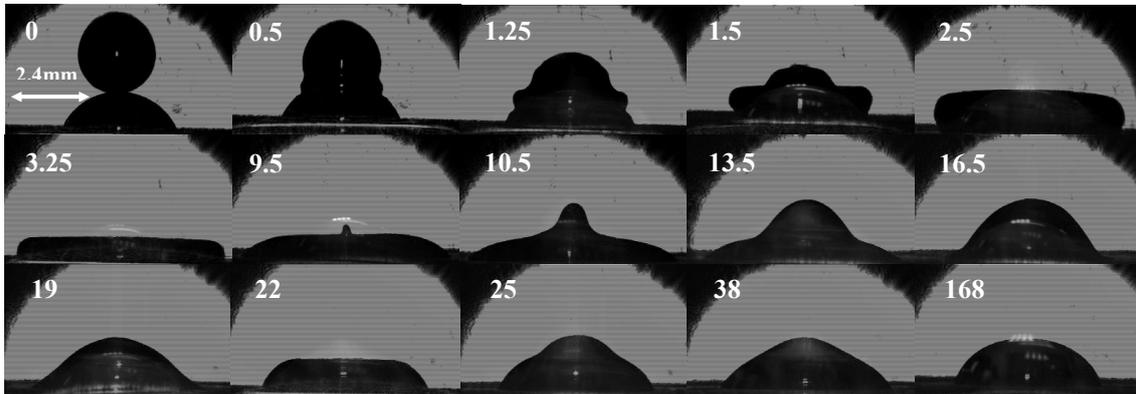


Figure V.8 : Coalescence axisymétrique de deux gouttes d'eau sur une surface de Polyéthylène avec un couchage non mouillant,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $D_0 = 2.4\text{mm}$ ,  $U = 1\text{m/s}$ ,  $We = 34$ ,  $Re = 2400$ .

A partir de 1.5 ms, le diamètre augmente fortement jusqu'à atteindre une valeur d'équilibre à 3.25 ms environ, valeur qu'il conserve jusqu'à 9.5 ms à peu près. C'est l'inertie de la goutte incidente qui force l'étalement jusqu'à cette valeur d'équilibre. Par analogie au cas de l'impact d'une goutte seule (analogie sur les causes et la forme de cylindre), ce diamètre sera également appelé « étalement maximum ». Par la suite, le diamètre évolue peu mais la hauteur présente des oscillations.

Le même type d'expérience a été réalisé dans le cas de microgouttes de  $74\mu\text{m}$  de diamètre d'encre base eau (figure V.9) impactant à  $2.35\text{m/s}$  sur la même surface que précédemment. Bien que les nombres sans dimensions soient très différents entre ces deux expériences ( $We = 10.8$  et  $Re = 40$  pour les microgouttes), le même type de comportement est observé pour l'évolution du diamètre de contact.

La phase sans variation du diamètre de contact correspond, quant à elle, au temps nécessaire à la goutte incidente pour parcourir la hauteur de la goutte au repos ( $17.5\mu\text{m}$  dans cette expérience). Rappelons que cet effet est identique à celui observé sur les macrogouttes (durée de 1.5ms).

Dans ces deux cas, tout se passe comme l'entrée d'un corps dur dans un corps mou (nous verrons par la suite que cela est très souvent le cas mais pas systématiquement). Les profils

présentés ici sont en accord avec les résultats de [Fujimoto et al, 2001]. L'observation de comportements particuliers au cours du temps nous permet de séparer le mécanisme en deux situations distinctes.

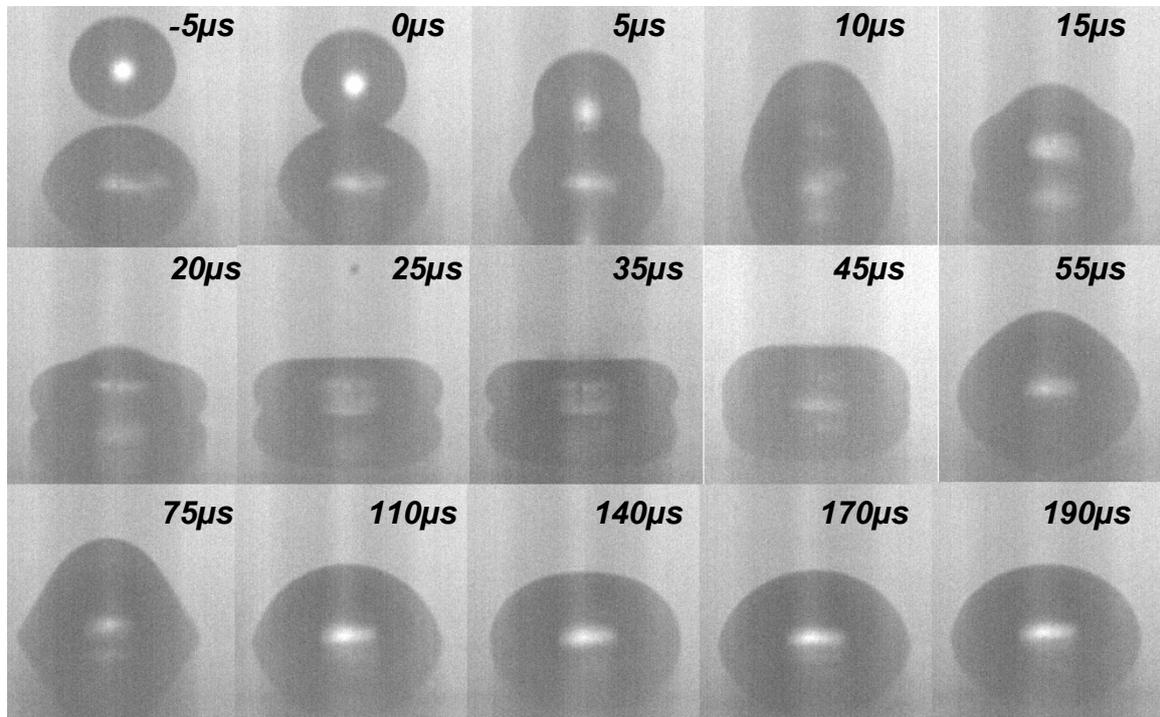


Figure V.9 : Coalescence axisymétrique de deux gouttes d'encre base eau sur une surface de téflon,  $\sigma = 33.2\text{mN/m}$ ,  $\mu = 3.2\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1035\text{kg/m}^3$ ,  $D_0 = 74\mu\text{m}$ ,  $U = 2.35\text{m/s}$ .

Nous étudions donc ce mécanisme en le séparant en une phase dite de coalescence à proprement parler (pénétration d'une goutte dans l'autre et étalement forcé sur la surface) et une phase de mise à l'équilibre (oscillation, mouillage ou démouillage capillaire). La première phase s'étend de l'instant de la coalescence jusqu'à l'étalement maximum. La seconde phase débute à cet instant et s'étend jusqu'à l'équilibre.

### Phase de coalescence

Cette première phase concerne principalement les interactions entre les deux gouttes à l'instant de la coalescence ainsi que l'expansion du fluide sur la surface. Dans ce cas, l'énergie associée à chacune des interfaces en présence va influencer le mécanisme, c'est-à-dire la tension de surface du fluide et la mouillabilité de la surface. L'énergie cinétique de la goutte incidente modifie également les comportements, ce qui impose la vitesse d'impact comme l'un des paramètres influents. Enfin, la viscosité joue, comme toujours, le rôle de

dissipateur d'énergie (frottement sur la surface, traversée de la goutte au repos) en diminuant drastiquement les déformations. Ces paramètres ne sont pas les seuls et nous pouvons parler de la rugosité de la surface c'est-à-dire la répartition des ces rugosités, leur forme et/ou leur amplitude. Néanmoins, les expériences ont été menées sur les surfaces de silicium modèles présentées dans le chapitre II et ce paramètre n'est pas étudié ici.

#### Angle de contact dynamique

Le comportement général de l'angle de contact dynamique au niveau de la ligne de contact reste fixe, même si de petites variations sont notables en fonction des paramètres expérimentaux. Sur la figure V.10 ci dessous, son augmentation s'effectue entre 3 et 5ms (augmentation de 30°) bien qu'aucune variation du diamètre ne soit notable. La coalescence peut être instantanée avec la pénétration de la goutte incidente dans la goutte au repos (figure V.11.a) ou retardée dans le cas d'un écrasement mutuel des deux gouttes l'une sur l'autre (figure V.11.b et V.11.c). Dans ce dernier cas, c'est le changement de forme qui participe à augmenter l'angle jusqu'à une valeur maximum obtenue à l'instant où les instabilités hydrodynamiques arrivent sur la surface. Cela induit également une légère variation du diamètre. L'angle de contact décroît alors rapidement jusqu'à atteindre un minimum à l'instant effectif de la coalescence. Un léger rebond sur la hauteur est observé, il correspond également au début de l'évolution du diamètre. Cette modification rapide est en relation avec l'augmentation brusque de l'énergie potentielle du système (liée à l'augmentation soudaine de la surface libre). Dès que la coalescence a lieu (au sommet de la goutte au repos), la masse de liquide composée des deux gouttes n'est plus en équilibre et débute son étalement par une expansion rapide du diamètre de contact (mouillage de la surface). L'angle augmente dès lors très rapidement jusqu'à arriver à une valeur plateau identique à celle mesurée dans le cas d'une goutte unique (valeurs reportées sur la figure III.46). A titre d'exemple, dans les trois cas de la figure V.11, un angle dynamique de 69°, 97° et 108° est mesuré respectivement sur les surfaces à 30°, 55° et 105° d'angle d'équilibre.

Pour une coalescence instantanée suite à la rencontre des deux gouttes, l'angle reste constant sur une certaine durée. La goutte incidente, lors de sa traversée de la goutte au repos, repousse le fluide à la périphérie de la goutte au repos et ne subit que peu de déformations. Dès que le volume de liquide repoussé est suffisant pour que l'angle de contact soit égal à l'angle dynamique d'avancée (chapitre III), l'expansion de la lamelle débute. Cet effet est observable

pour l'ensemble des expériences réalisées, indépendamment des conditions opératoires si ce n'est que la vitesse d'impact doit être suffisante pour obtenir une phase d'étalement.

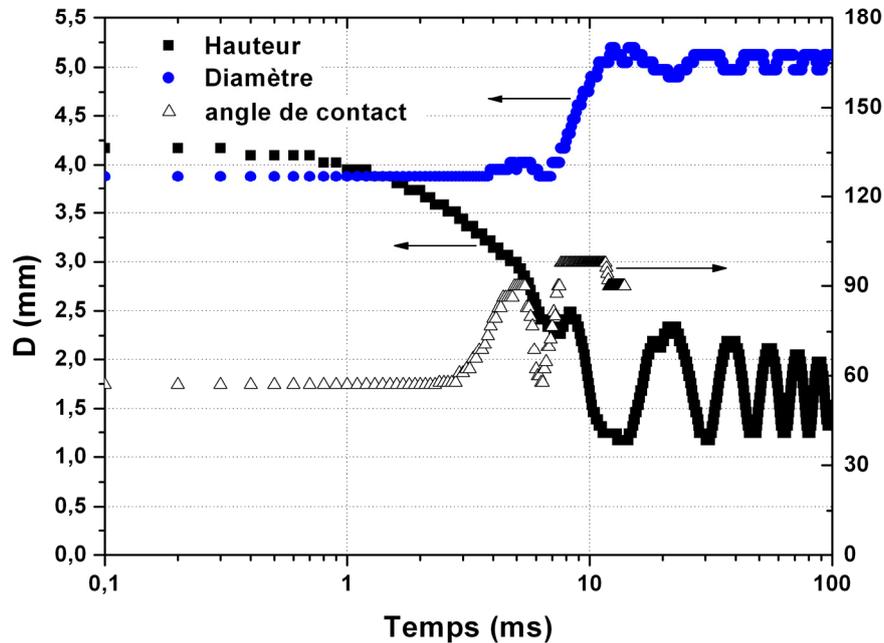


Figure V.10 : Evolution du diamètre, de la hauteur et de l'angle de contact dynamique durant la coalescence axisymétrique de deux gouttes d'eau distillée sur une surface de type 5,  $\theta_{\text{eq}} = 57^\circ$ ,  $D_0 = 2.6\text{mm}$ ,  $U = 0.22\text{m/s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $We = 1.7$ ,  $Re = 572$ .

Remarque : Cela sous entend également que dans le cas où le volume de liquide au repos est très important devant celui de la goutte incidente, et si cette dernière n'a pas suffisamment d'énergie cinétique, l'angle dynamique ne sera jamais atteint. L'étalement sera alors de type capillaire.

#### Effet de la mouillabilité

La mouillabilité de la surface est un élément important lors de l'impact d'une goutte sur une surface. Nous avons montré précédemment pour une goutte seule, que le temps nécessaire pour atteindre l'étalement maximum, ou encore l'angle d'avancée dynamique, sont modifiés sur des surfaces de mouillabilité différentes. La figure V.11 présente la coalescence axisymétrique de deux gouttes d'eau distillée sur des surfaces modèles de silicium à  $\theta_{\text{eq}} = 30^\circ$ ,  $55^\circ$  et  $105^\circ$ . La goutte incidente impacte à une vitesse de  $0.7\text{m/s}$  et le diamètre des gouttes est d'environ  $2.3\text{mm}$ , ce qui correspond à  $We = 15$  et  $Re = 1580$ . Dans les premiers instants, la

forme globale des profils transitoires est celle d'une sphère tronquée, surmontée par une calotte sphérique. Sur la surface à  $\theta_{\text{eq}} = 30^\circ$ , la coalescence est immédiate (du moins, c'est ce qu'il semble mais compte tenu du fait que la goutte incidente pénètre dans la goutte au repos, il est impossible d'en être sûr) et la goutte incidente ne subit que peu de déformations tant qu'elle n'a pas atteint la surface.

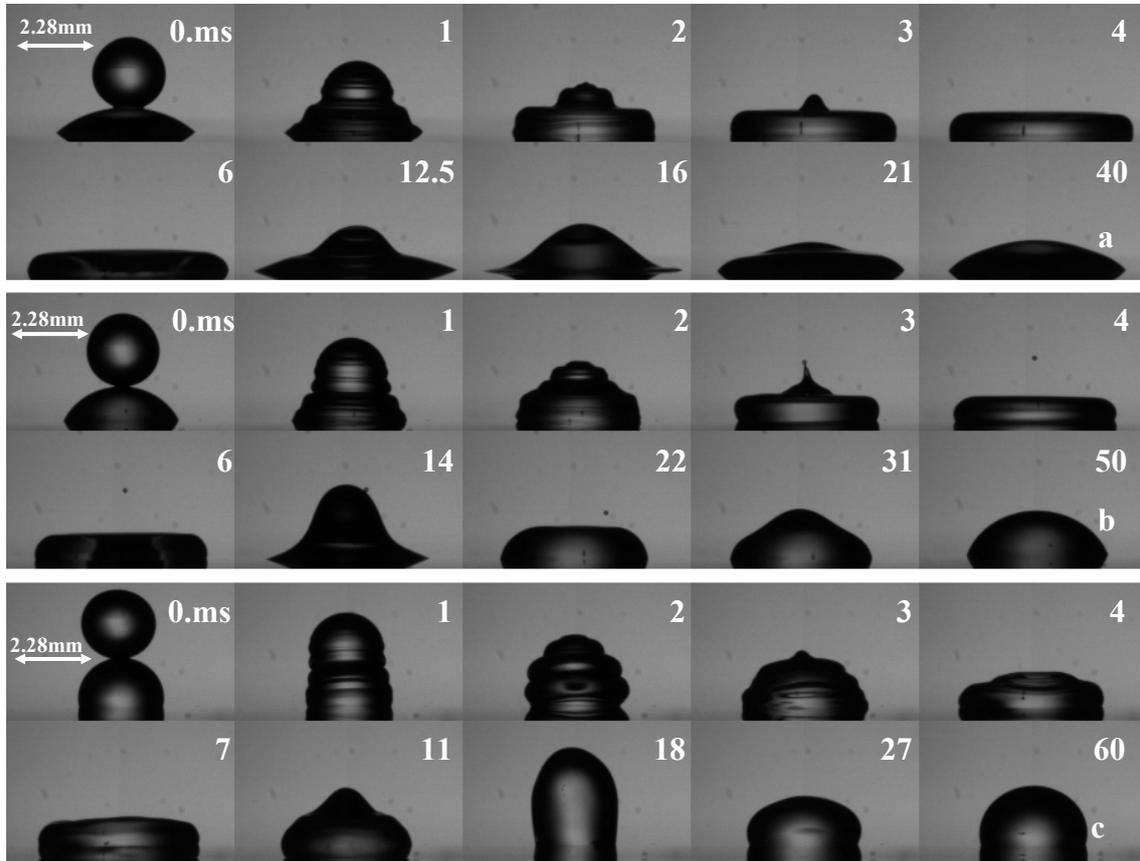


Figure V.11 : Coalescence axisymétrique de deux gouttes d'eau distillée identiques, impactant sur une surface (a) de type 2,  $\theta_{\text{eq}} = 30^\circ$  (b) de type 5,  $\theta_{\text{eq}} = 55^\circ$  et (c) de type 7,  $\theta_{\text{eq}} = 105^\circ$ ,  $D_0 = 2.26\text{mm}$ ,  $U = 0.7\text{m/s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1000\text{ kg/m}^3$ ,  $We = 15$ ,  $Re = 1580$ .

L'augmentation de l'angle d'équilibre fait apparaître des déformations sur la surface libre des deux gouttes. Ces ondes capillaires, dues à la collision entre les deux gouttes, sont d'autant plus importantes que la courbure de la goutte au repos et que la tension de surface du liquide (pour deux gouttes d'un même liquide) le sont aussi. A titre d'illustration, observons les images à 1 ms et 2 ms dans les deux cas de mouillabilité extrême de la figure V.11. Sur la surface à  $\theta_{\text{eq}} = 30^\circ$ , la goutte incidente traverse la goutte au repos en prenant schématiquement la forme d'une calotte sphérique surmontant un cylindre. En revanche, à  $\theta_{\text{eq}} = 90^\circ$ , nous constatons la présence de 4 courbures sur la surface libre (en ne considérant que la moitié

droite ou gauche des gouttes). A  $t = 2\text{ms}$ , le profil transitoire fait apparaître des déformations plus prononcées encore (l'amplitude des instabilités est augmentée) et les profils transitoires montrent un écrasement mutuel des deux gouttes. La goutte incidente prend elle la forme d'une calotte sphérique surmontant un cylindre (profil proche du cas de l'impact sur surface solide) alors que la goutte au repos se trouve sous la forme d'un crêpe. Cette dernière est comprimée entre la goutte incidente et la surface avec lesquelles elle présente un angle de contact important ( $274^\circ$  entre les deux gouttes et  $130^\circ$  avec la surface). Précisons également que sur la surface non mouillante ( $\theta_{\text{eq}} = 90^\circ$ ), la rupture de l'interface entre les deux gouttes (et donc la coalescence) intervient aux alentours de 3 ms contre 2 ms sur la surface à  $\theta_{\text{eq}} = 55^\circ$  et « instantanément » après l'impact lorsque  $\theta_{\text{eq}} = 30^\circ$ .

La goutte incidente n'est pas (ou très peu) freinée par la traversée de la goutte au repos et la mesure de la hauteur au centre confirme cette hypothèse. Une corrélation linéaire sur cette hauteur permet d'obtenir, dans chacun des cas, une vitesse de chute avant impact de 0.685m/s, 0.715 et 0.69m/s sur respectivement les surfaces à  $30^\circ$ ,  $55^\circ$  et  $105^\circ$  d'angle d'équilibre. Dans le même temps, la vitesse d'impact mesurée est, dans le même ordre, de  $0.7 \pm 0.2$  m/s,  $0.74 \pm 0.2$  m/s et  $0.72 \pm 0.2$  m/s.

De plus, et tout comme dans le cas de l'impact d'une goutte seule, la mouillabilité de la surface influence l'évolution du diamètre, la valeur de l'étalement maximum ainsi que l'instant où ce diamètre est atteint ou encore celle de l'angle de contact dynamique. Les mesures effectuées à partir des expériences de la figure V.11 sont présentées sur la figure V.12 et les différentes valeurs spécifiques obtenues sur ces expériences sont regroupées dans le tableau V.1. Précisons cependant que les résultats ne sont pas présentés sous une forme sans dimension puisque seul la mouillabilité de la surface est modifiée. La vitesse d'impact ainsi que le diamètre en vol des différentes gouttes restent fixes d'une expérience à l'autre, ce qui implique une échelle de longueur et une échelle de temps fixe. Dans le cas de coalescence axisymétrique, précisons que le temps  $t_{\text{max}}$  pour atteindre l'étalement maximum est mesuré à partir de l'instant où le diamètre de contact commence à augmenter jusqu'à l'instant où le maximum est atteint.

Enfin, pour nous affranchir du volume de liquide considéré (le volume de la goutte incidente et de la goutte au repos), la hauteur et le diamètre de contact sont rapportés au diamètre  $D_{2g}$  d'une goutte de volume double (même liquide). Toutefois, sachant que l'énergie cinétique ne provient que de la goutte incidente, l'échelle de temps  $t_i$ , comme défini précédemment, est conservée. Dans la suite, nous utiliserons ces échelles pour les adimensionnalisation (figure

V.12.c, représentation dans le plan ( $D/D_{2g}$  ;  $tU/D_0$ ). La figure V.12 regroupe les trois configurations.

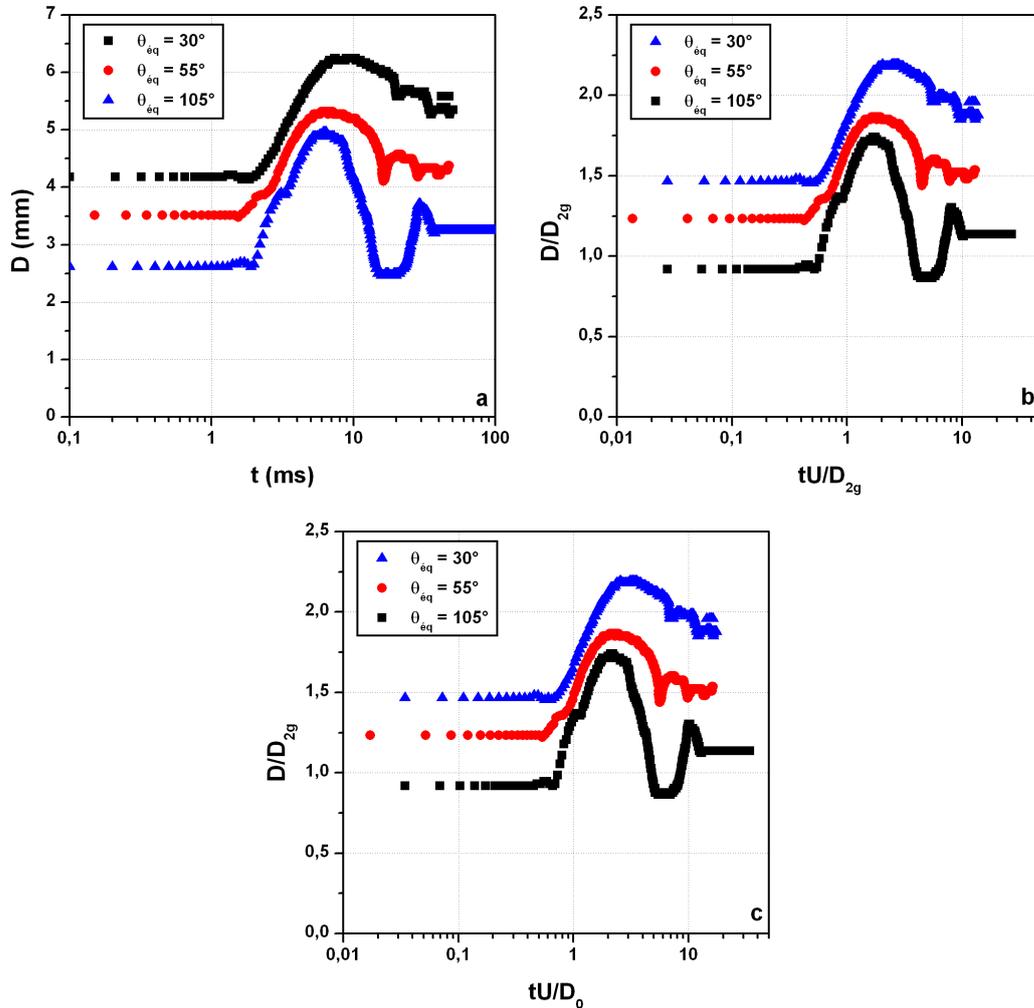


Figure V.12 : Evolution du diamètre de contact lors de la coalescence axisymétrique de deux gouttes d'eau distillée identiques sur une surface (■) de type 2,  $\theta_{eq} = 28^\circ$ , (●) de type 5,  $\theta_{eq} = 55^\circ$ , (▲) et de type 8,  $\theta_{eq} = 105^\circ$ ,  $D_0 = 2.26\text{mm}$ ,  $U = 0.8\text{m/s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1000\text{ kg/m}^3$ ,  $We = 22.8$ ,  $Re = 2080$ . (a) représentation sans dimension ; diamètre adimensionné par  $D_{2g}$  et (b) temps adimensionné par  $D_0/U$  et (c) temps adimensionné par  $D_{2g}/U$ .

Remarques :

- Notons par ailleurs que l'adimensionnalisation en temps change peu en écrivant  $t_i = \frac{tU}{D_0}$

ou  $t_i = \frac{tU}{D_{2g}}$ . En effet, les gouttes formées ont toujours un volume très proche. Les variations

sont donc faibles entre ces deux échelles de temps.

- La structure pyramidale est également observable sur ces profils. En reprenant l'équation III.6 et en remplaçant  $D_0$  par  $D_{2g}$  (diamètre d'une goutte de volume double), l'intervalle de vitesse (en m/s) sur lequel la forme de pyramide est obtenue passe de  $[0.25 ; 1.67]$  à  $[0.22 ; 1.55]$ . La vitesse utilisée pour nos expériences est de 0.8m/s, ce qui est cohérent avec les observations.

Toujours par comparaison avec le cas de l'impact d'une goutte, nous constatons un effet similaire du paramètre de mouillabilité de la surface. Le temps pour atteindre l'étalement maximum  $t_{max}$  est d'autant plus important que la mouillabilité de la surface l'est. Cette durée est néanmoins augmentée d'environ 20% pour des conditions de vitesse et de volume supérieures. En effet, la présence de liquide sur la surface implique que les conditions de frottement sont différentes. Avec une quantité équivalente d'énergie cinétique, l'étalement maximum est donc augmenté, tout comme la durée de l'étalement.

Sur la figure V.12, qui représente l'évolution du diamètre de contact, une cassure est observée sur les surfaces où  $\theta_{\text{éq}} = 55^\circ$  et  $\theta_{\text{éq}} = 105^\circ$ . En revanche, elle n'existe pas sur la surface la plus mouillante. De plus, elle apparaît temporellement deux fois plus tard dans l'évolution du diamètre sur la surface la plus hydrophobe (respectivement à 0.7ms et 1.3ms) mais a des diamètres de contact équivalents et proches de 3.9mm (soit 1.37 environ en valeur sans dimension). Cette évolution en « deux temps » est liée au fait que la goutte incidente a d'avantage de difficulté à pénétrer la goutte au repos dans les cas de mouillabilité plus faible. En utilisant une corrélation de type fonction puissance pour représenter l'évolution du diamètre (toujours par analogie avec l'impact d'une goutte seule), les pentes sont d'autant plus importantes que la surface est non mouillante. Par ordre décroissant de mouillabilité, nous mesurons une puissance respectivement de 0.32, 0.35 et 0.51 (en grandeurs dimensionnelles, soit respectivement 0.36, 0.39 et 0.55), ce qui est comparable avec le cas d'une goutte seule. Il faut noter que cette valeur de 0.5 correspond également à la valeur obtenue dans l'expérience précédente où  $U = 1\text{m/s}$  et  $\theta_{\text{éq}} = 70^\circ$  ([Vadillo, 2003], figure V.8).

Ces résultats ne sont pas surprenants sachant que les forces qui s'appliquent au système ne sont pas modifiées.

Enfin, durant la phase d'expansion du diamètre, la goutte, de volume double, forme avec la surface un angle dynamique, à la fois dépendant de la mouillabilité de la surface et équivalent aux résultats présentés sur la figure III.46 (tableau V.1). Cette observation est en accord avec le fait que l'angle de contact dynamique est une fonction de la mouillabilité de la surface.

Toujours par analogie avec le cas de l'impact d'une goutte unique, plus la surface est mouillable et plus l'étalement maximum sera important. Respectivement dans les trois cas de la figure V.12, de la surface la plus mouillante à la moins mouillante, le diamètre de contact augmente de 4.18mm à 6.25mm, de 3.51mm à 5.31mm et de 2.63mm à 4.96mm.

	Surface de type 2 ( $\theta_{\text{éq}} = 30^\circ$ )	Surface de type 5 ( $\theta_{\text{éq}} = 55^\circ$ )	Surface de type 8 ( $\theta_{\text{éq}} = 105^\circ$ )
Diamètre au repos (mm)	4.18	3.51	2.63
$D_{\text{max}}$ (mm)	6.25	5.31	4.96
$D_{\text{max}}/D_0$	2.77	2.35	2.19
$t_{\text{max}}$	$5.38 \pm 0.1$	$4.8 \pm 0.15$	$4.8 \pm 0.1$
Puissance (n)	0.324	0.352	0.511
$\theta_{\text{dyn}}$ ( $^\circ$ )	74	95	120
Fréquence expérimentale d'oscillation (Hz)	$55.5 \pm 4.7$	$66.5 \pm 4.4$	$76 \pm 5.8$

**Tableau V.1 : Effet de la mouillabilité sur le comportement des différentes grandeurs caractéristiques de la coalescence axisymétrique, liquide : eau distillée.**

La multiplication par un facteur 3.5 de l'angle de contact d'équilibre diminue l'étalement maximum, ainsi que le temps pour l'atteindre, par respectivement 20% et 10.7%, ce qui est inférieur aux variations mesurées dans le cas de l'impact d'une seule goutte quelle que soit la mouillabilité de la surface. Une fois de plus, la présence de liquide sur la surface diminue l'influence de la mouillabilité de la surface sur la valeur de l'étalement maximum.

Remarquons que, malgré un étalement maximum supérieur sur les surfaces plus mouillantes, le diamètre de contact augmente plus fortement en proportion sur les surfaces hydrophobes. Ici, il varie de 50% sur la surface à 30° et de 90% environ sur la surface à 105°.

Effet de la vitesse d'impact

La vitesse d'impact est également un élément déterminant dans le processus de coalescence axisymétrique (. En diminuant la vitesse d'impact de 0.8m/s à 0.22m/s, le comportement général est drastiquement modifié. Dans une configuration particulière où la vitesse d'impact est faible, les profils observés sont surprenants (figure V.13).

A  $U = 0.22\text{m/s}$ , la goutte incidente et la goutte initialement au repos se compressent l'une sur l'autre, ce qui correspond à la configuration de coalescence retardée. Dans ces conditions, ce sont les interactions liquide / gaz, liquide / liquide et liquide / solide qui vont contrôler le phénomène avec un effet conséquent de la mouillabilité de la surface. Ici, le nombre de Weber est très faible (1.7) ce qui traduit la prépondérance des phénomènes liés à la tension de surface par rapport à ceux en relation avec l'inertie. Suite au contact entre les deux gouttes, une onde de choc se propage de la goutte incidente vers la ligne de contact de la goutte au repos, avec une augmentation de l'angle de contact (figure V.13,  $t = 4\text{ms}$ ).

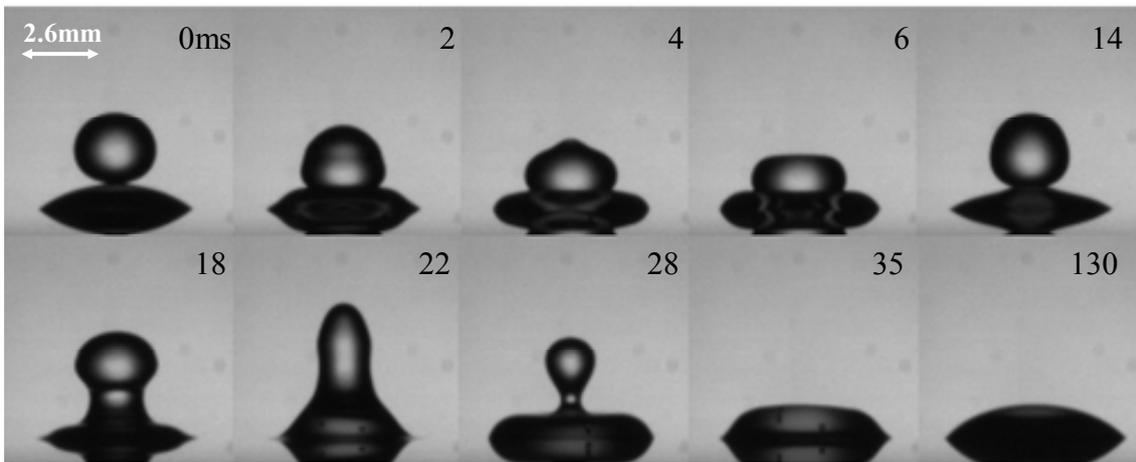


Figure V.13 : Coalescence axisymétrique de deux gouttes identiques d'eau distillée sur une surface de type 2,  $\theta_{\text{eq}} = 28^\circ$ ,  $D_0 = 2.6\text{mm}$ ,  $U = 0.22\text{m/s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1000\text{ kg/m}^3$ ,  $We = 1.7$ ,  $Re = 572$ .

Après l'écrasement et la déformation radiale ( $t = 6\text{ms}$ ), les gouttes réagissent et se déforment verticalement ( $t = 14\text{ms}$ ). La goutte initialement au repos voit sa hauteur augmenter de nouveau et la goutte initialement incidente s'allonge vers le haut. Cette dernière semble sur le point de rebondir complètement, ce qui est similaire à ce qui a été observé sur les surfaces

super hydrophobes (chapitre III). A l'instant où les deux gouttes vont se séparer, les interfaces liquide / gaz se brisent et la coalescence apparaît (figure V.13, image 6, 18ms). Leur rupture (donc le phénomène de coalescence) génère également une onde de choc qui se propage vers la ligne de contact mais pour former un angle de contact très faible ( $t = 22\text{ms}$ ). La coalescence est immédiatement suivie d'une phase d'expansion qui est relativement limitée dans ce cas et il est difficile d'affirmer que l'évolution du diamètre est due à l'inertie de la seconde goutte. Toutefois, la goutte incidente continue à se déplacer vers le haut et à  $t = 28\text{ ms}$  ; un profil particulièrement perturbé est visible avec la possibilité que la partie supérieure de la masse de liquide se détache pour créer un satellite. Ce phénomène de « rebond » peut s'expliquer par plusieurs éléments.

- Le caractère « déformable » de la goutte est peu contré par la viscosité du liquide. Les courbures de la surface libre sont importantes et la dissipation de l'énergie cinétique par frottement est minimale. Cette dissipation visqueuse, uniquement liée au liquide (pas ou moins de frottement sur des parois contrairement au cas de l'impact d'une goutte seule), est insuffisante et l'excédent énergétique est utilisé pour « rebondir » (effet de « ressort »).
- Le second paramètre qui permet d'expliquer ce comportement est la mouillabilité de la surface. Celle-ci modifie l'épaisseur et la courbure du liquide sur lequel impacte la seconde goutte. Plus la courbure au sommet de la goutte statique est faible, moins l'espace pour évacuer ces molécules d'air sera important, retardant ainsi le phénomène de coalescence. La goutte au repos s'apparente, dans ce cas, à un film mince.

De la même manière, une vitesse plus élevée modifie également les comportements. [Fujimoto et al, 2001] puis [Roisman et al, 2002] ont réalisé une étude sur la coalescence entre deux gouttes. Dans le premier cas, seul le cas de la coalescence axisymétrique est envisagé et les expériences portent sur des gouttes d'eau distillée de 2.4mm de diamètre impactant à 0.8, 2.1 et 3.1m/s sur une plaque de verre optique. En revanche, [Roisman et al, 2002] présente une étude plus large concernant à la fois l'interaction entre un nombre supérieur de gouttes et l'étalement non axisymétrique de deux gouttes. Ces dernières expériences sont comparées à un modèle qui décrit notamment le déplacement de la ligne de collision, la forme de la ligne de contact et la formation des différentes couronnes.

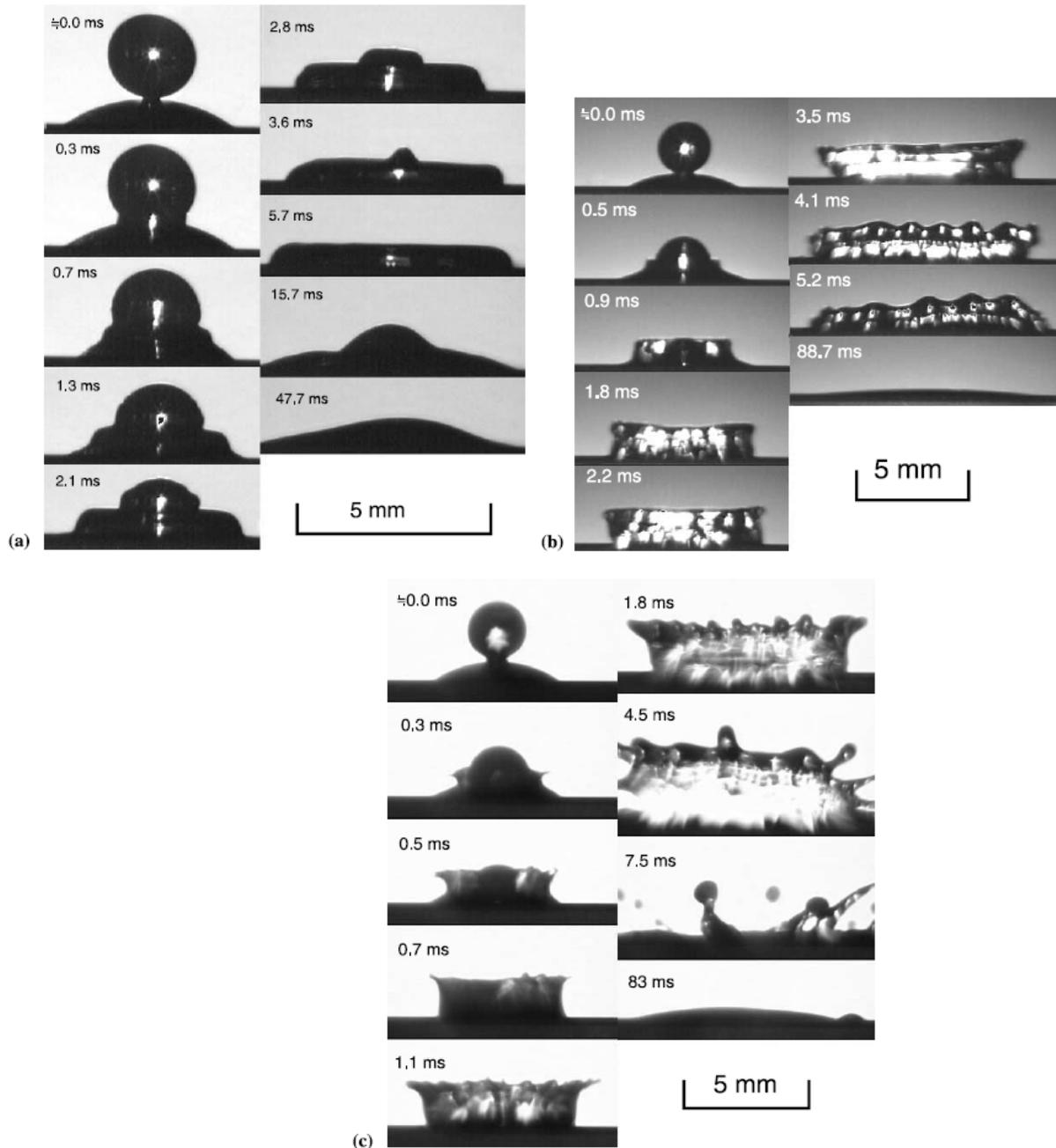


Figure V.14 : Collision axisymétrique de deux gouttes d'eau distillée de 2.4mm de diamètre, vitesses de la goutte incidente de (a) 0.8m/s, (b) 2.1m/s et (c) 3.1m/s, (extrait de [Fujimoto et al, 2001]).

En reprenant les travaux de [Fujimoto et al, 2001] à  $U = 0.8\text{m/s}$ , les profils obtenus sont identiques à ceux que nous avons observés et présentés sur la figure V.8. Les auteurs montrent également que l'augmentation de la vitesse d'impact permet de modifier la forme de la masse de liquide avec une élévation de la hauteur du bourrelet périphérique d'autant plus importante que la vitesse d'impact l'est. A  $2.1\text{m/s}$ , le diamètre augmente et l'épaisseur de liquide est maximum au niveau du bourrelet (épaisseur supérieure à la hauteur initiale de la goutte au

repos). Dans ce cas précis, des instabilités de couronne apparaissent et la hauteur du bourrelet est proche de 2.5mm (figure V.14.b). En augmentant la vitesse jusqu'à 3.1m/s, ces instabilités de couronne s'amplifient et permettent l'éjection de gouttes satellites à partir du bourrelet (figure V.14.c). La configuration est alors proche de l'étalement par éclatement en couronne ([Rioboo et al, 2001]). Malheureusement, cette étude est principalement numérique et les mesures de diamètre ne sont pas données. Cela rend impossible la comparaison de ces résultats avec ceux que nous avons pu obtenir. Cependant, les mécanismes sont mis en évidence et l'influence de la vitesse d'impact est démontrée qualitativement.

Enfin, en ce qui concerne les microgouttes, des comportements d'écrasement mutuel des deux gouttes sont également observables (figure V.15). Dans cette expérience, le liquide employé est également de l'eau distillée et la surface est en téflon. Les deux gouttes s'écrasent l'une sur l'autre et se déforiment avant que la coalescence n'ait lieu.

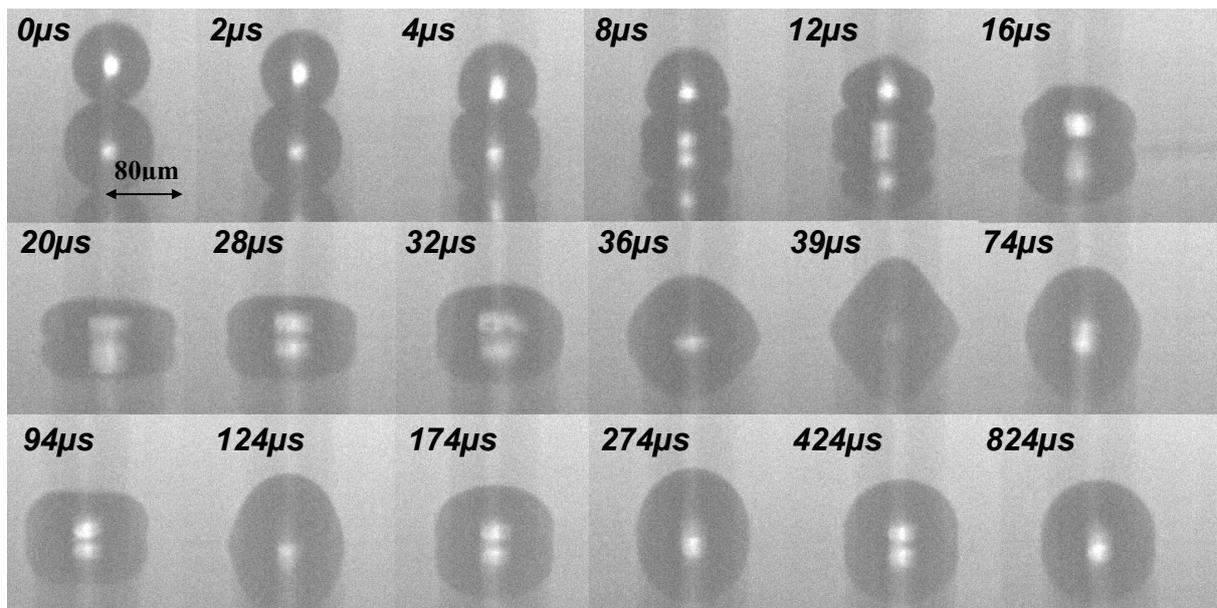


Figure V.15 : Coalescence de 2 microgouttes d'eau distillée sur une surface de téflon,  $D_0 = 78\mu\text{m}$ ,  $U = 2\text{m/s}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $We = 4.4$ ,  $Re = 158$ .

L'angle de contact dynamique est important ( $115^\circ$  environ), le diamètre augmente de 20% (de  $96\mu$  à  $115\mu$  en  $17\mu\text{s}$ ) et avec une puissance de 0.15 environ. En comparaison avec les macrogouttes, nous sommes ici aussi dans le cas d'une coalescence avec un nombre de Weber très faible (4.4) et, donc, une prépondérance des phénomènes liés à la tension de surface (dans chacun des cas, le nombre de Reynolds est fort donc peu d'influence de la viscosité). Le

comportement des microgouttes, comme pour le cas de l'impact d'une seule goutte, reste similaire à celui des macrogouttes.

Effet de la viscosité

La figure V.16 présente la coalescence axisymétrique à 0.68m/s de deux gouttes d'un mélange d'eau distillée et de glycérol (à 59% en masse,  $\mu = 9.6\text{mPa.s}$ ) sur une surface où  $\theta_{\text{éq}} = 50^\circ$ .

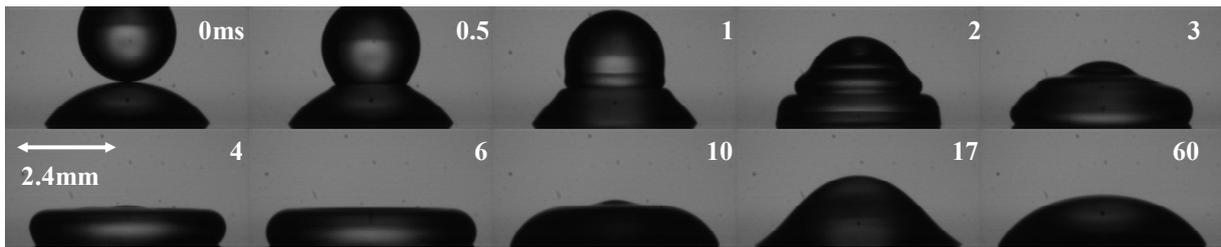


Figure V. 16: Coalescence axisymétrique de deux gouttes d'un mélange d'eau distillée et de glycérol (59% en masse) impactant sur une surface de type 5 ( $\theta_{\text{éq}} = 50^\circ$ ),  $D_0 = 2.6\text{mm}$ ,  $U = 0.68\text{m/s}$ ,  $\sigma = 69\text{mN/m}$ ,  $\mu = 9.6\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1100\text{kg/m}^3$ ,  $We = 19$ ,  $Re = 238$ .

En comparaison avec le cas de l'eau distillée (figure V.11.b), les déformations des surfaces libres ainsi que le rebond sont beaucoup moins prononcés (pour une multiplication de la viscosité par un facteur 9.6, l'amplitude des rebonds est diminuée de 22% environ).

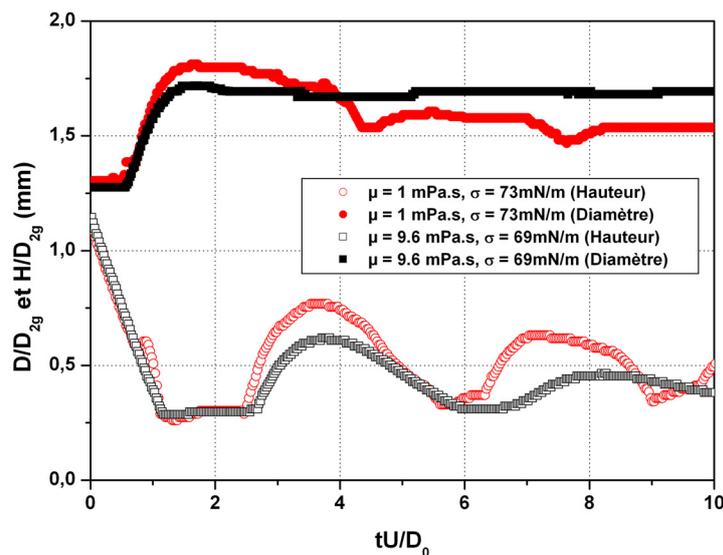


Figure V.17 : Coalescence axisymétrique de deux gouttes identiques d'eau distillée (●) et d'eau distillée + 59% de glycérol (■) sur une surface de type 5 ( $\theta_{\text{éq}} = 55^\circ$ ) à  $U = 0.65\text{m/s}$ .

Ceci n'est pas suprenant puisqu'une quantité supérieure d'énergie cinétique est dissipée par frottement au sein du liquide lors de la coalescence et la remontée du liquide au centre de la goutte (rebond) est freinée.

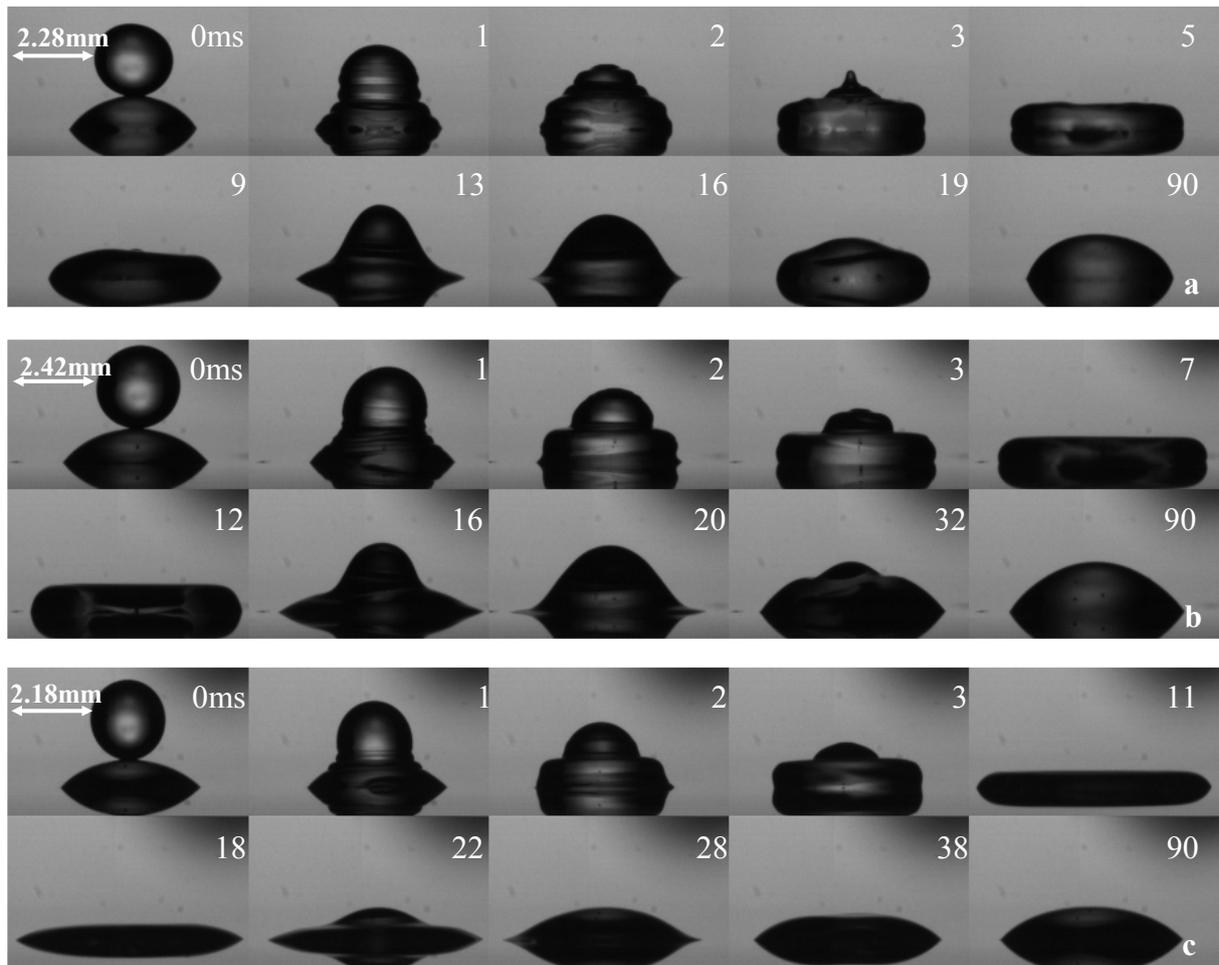
Toutefois, pour les deux cas présentés ici, le diamètre de contact augmente respectivement, de 39% et 33% suivant les viscosités considérées (1mPa.s et 10mPa.s). Notons que dans ces deux expériences le nombre de Weber est faible ce qui traduit un effet important de la tension de surface.

### Effet de la tension de surface

La tension de surface est un paramètre déterminant dans le processus de coalescence. La figure V.18 présente 3 cas de coalescence axisymétrique de deux gouttes identiques, pour trois liquides de tensions de surface différentes mais de viscosités très proches. Pour ce faire, deux mélanges d'eau distillée et d'éthanol sont réalisés. Les substrats sont différents d'une expérience à l'autre afin de conserver le paramètre de mouillabilité (compris entre 45° et 55°). La proximité de l'angle d'équilibre d'une expérience à l'autre pour des liquides de tension de surface aussi différentes ( $\sigma = 30\text{mN/m}$  à  $73\text{mN/m}$ ) n'est possible que grâce à nos surfaces modèles. En comparant le comportement global du mécanisme, nous constatons que plus la tension de surface diminue et moins il y a de déformations à la fois sur la goutte au repos et sur la goutte incidente.

A  $t = 2\text{ms}$ , les profils transitoires sont déjà différents entre le cas de l'eau distillée (figure V.18. a) et les cas des mélanges eau distillée + éthanol (figure V.18.b et V.18.c). Dans le premier cas, il y a une onde capillaire sur la goutte incidente alors que dans les deux autres cas, la surface libre ne montre aucune déformation. Le liquide de la goutte au repos est simplement repoussé sur les bords et la forme schématisée est celle d'une sphère tronquée surmontant un cylindre

Pour les liquides avec les tensions de surface les plus basses ( $\sigma = 30\text{mN/m}$  à  $73\text{mN/m}$ ), l'augmentation du diamètre commence au même instant. Ceci s'explique par la combinaison du fait que la hauteur de la goutte au repos est très proche d'une expérience à l'autre et que la goutte incidente ne subit pas ou peu d'influence du liquide au repos.



**Figure V.18 : Coalescence de deux gouttes de fluide identiques pour trois tensions de surface différentes. Les surfaces utilisées sont différentes dans chaque cas pour fixer la valeur de l'angle de contact. (a) eau distillée ( $\theta_{\text{éq}} = 55^\circ$ ), (b) eau distillée + 5% éthanol ( $\sigma = 55\text{mN/m}$  et  $\theta_{\text{éq}} = 52^\circ$ ) et (c) eau distillée + 48% éthanol ( $\sigma = 30\text{mN/m}$  et  $\theta_{\text{éq}} = 45^\circ$ ),  $U = 0.61\text{m/s}$ .**

En ce qui concerne l'étalement maximum, il est d'autant plus important que la tension de surface est faible (figure V.19), ce qui est en accord avec les résultats observés lors de l'impact d'une goutte seule. Pour les trois cas présentés ici, et par ordre décroissant de tension de surface, le diamètre de contact adimensionnalisé par le diamètre d'une goutte de volume double  $D_{2g}$  augmente respectivement de 40%, de 50% et de 66%. Une division par 2.43 de la tension de surface du liquide conduit à doubler l'étalement maximum.

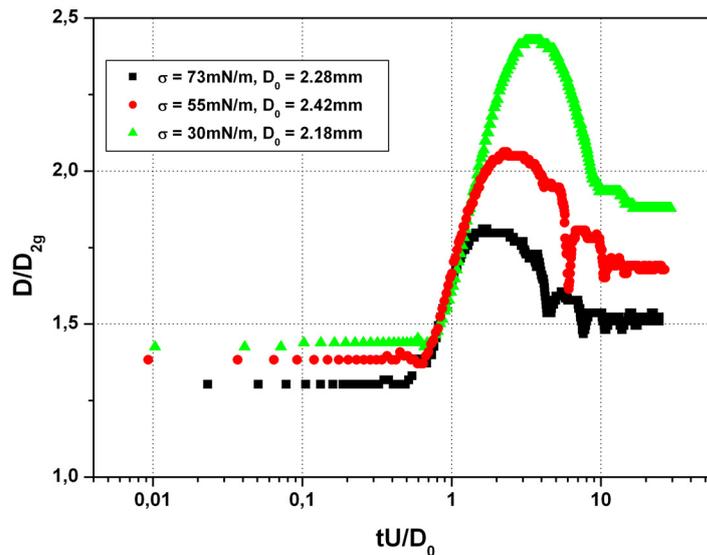


Figure V.19 : Effet de la tension de surface sur le diamètre de contact lors de la coalescence axisymétrique,  $U = 0.67$  m/s.

Durant l'augmentation du diamètre, les trois courbes se superposent. En utilisant, comme précédemment, une corrélation de type puissance pour l'évolution du diamètre de contact, nous obtenons 0.44 (coefficient de corrélation supérieur à 99%) en supprimant les derniers points pour les expériences avec les liquides à  $\sigma = 55$  mN/m et 30 mN/m (c'est-à-dire lorsque l'inertie n'est plus tout à fait prédominante). Cette valeur est comparable à celles mesurées dans le cas de l'impact d'une goutte simple. Cet élément confirme la similitude du mécanisme de mouillage entre le cas de l'impact d'une goutte unique ou de la coalescence axisymétrique. Concernant le temps nécessaire pour atteindre l'étalement maximum, et toujours sur les cas de la figure V.19, il est de 4.3 ms, 5.7 ms et 8.3 ms (par ordre décroissant de tension de surface), ce qui correspond à une augmentation de 93% lorsque la tension de surface passe de 73 mN/m à 30 mN/m.

### Simulation

La prédiction de l'évolution du diamètre de contact est, comme préalablement pour le cas d'une goutte unique, un élément important pour la qualité d'impression. Nous allons nous attacher ici à présenter un ensemble de calculs permettant d'obtenir différents éléments, tels que le temps avant que l'étalement ne commence, la vitesse de déplacement moyenne de la ligne triple ou encore le diamètre maximum.

**Profils transitoires schématiques**

Malgré le nombre important de paramètres et la diversité des résultats obtenus, un comportement particulier est observable pour nos expériences (pour une gamme du nombre de Weber et de Reynolds respectivement comprise entre 10 et 100, et 30 et 2300). En effet, dans les premiers instants de cette coalescence, la goutte incidente ne se déforme pas et n'est pas freinée par la goutte déjà sur la surface. La goutte au repos est repoussée de façon radiale et tout ce passe comme la traversée d'un corps mou par un corps dur. En supposant le fluide incompressible, l'augmentation du diamètre à une altitude donnée peut être estimée à deux fois la somme du rayon  $R(z)$  de la goutte incidente à l'altitude  $z$  et du rayon  $R_{gr}(z)$  de la goutte au repos à l'altitude  $z$  :

$$D_{coal}(z,t) = 2(R_{gr}(z) + R(z)) \tag{V.1}$$

Cette somme définie  $D_{coal}(z,t)$  le diamètre à l'altitude  $z$  et à l'instant  $t$ .

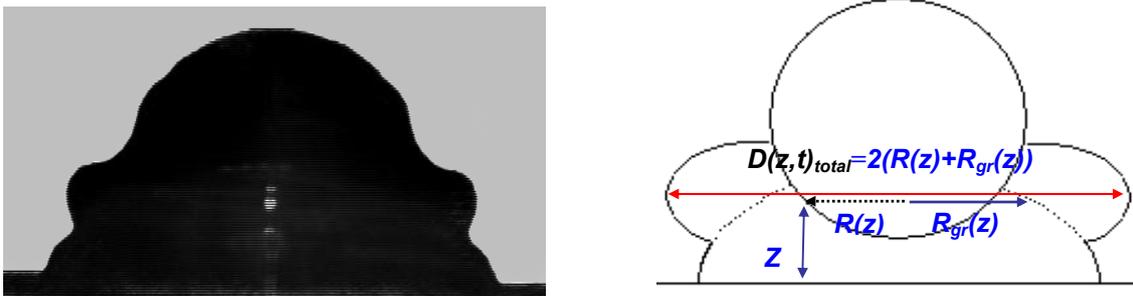


Figure V.20 : Représentation schématique des profils transitoires lors de la coalescence axisymétrique

**Temps d'avancée**

Les observations expérimentales montrent clairement que le diamètre de contact ne commence pas son évolution à l'instant de la coalescence (il existe une durée, dépendante des conditions expérimentales et des paramètres des liquides, sur laquelle le diamètre reste constant). La ligne de contact ne commence effectivement son déplacement que lorsque la géométrie globale de la goutte s'apparente à une sphère tronquée surmontant un cylindre. En utilisant une approximation, il est possible de considérer que l'expansion du diamètre s'effectue à hauteur constante. Une partie du volume de fluide apporté par la goutte incidente est nécessaire pour passer la goutte au repos de la forme d'une sphère tronquée à celle d'un cylindre. C'est la partie complémentaire de ce volume qui permet l'étalement sur la surface

(figure V.21). En conservant l'hypothèse de non déformation de la goutte incidente, nous calculons la hauteur  $h_1$  de la calotte sphérique de volume équivalant au volume à compléter.

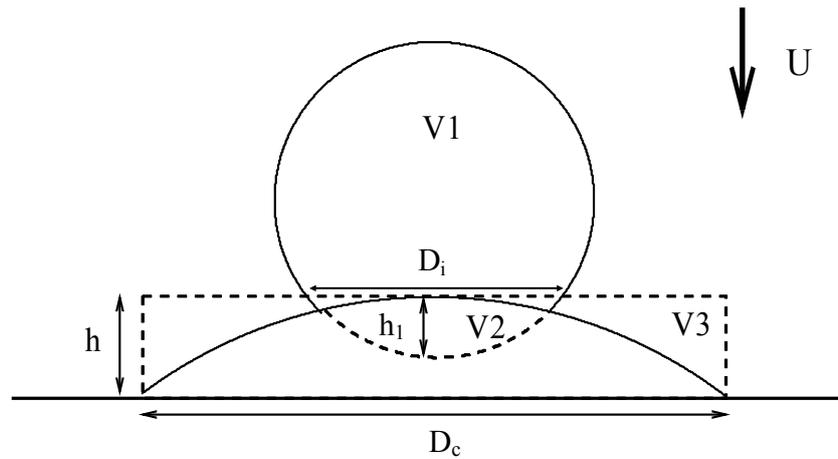


Figure V.21 : Représentation schématique du passage de deux gouttes superposées à un cylindre surmonté d'une calotte sphérique, le volume initial  $V = V_1 + V_2$  et  $V_2 = V_3$ .

Pour ce faire, nous déterminons à la fois le volume de la goutte au repos ainsi que le volume du cylindre de diamètre de contact  $D_c$  et de hauteur  $h$ . Cela conduit au volume  $V_3$  (figure V.21) équivalent au volume  $V_2$  et revient à résoudre l'équation suivante :

$$\frac{h_1^2}{3} \left( \frac{3}{2} D_0 - h_1 \right) = \frac{h D_c^2}{4} - \frac{h}{6} \left( \frac{3 D_c^2}{4} + h^2 \right) \quad (V.2)$$

En considérant que la goutte incidente traverse la goutte au repos à une vitesse moyenne  $U_{av}$ , la durée sur laquelle le diamètre de contact conserve une valeur constante s'exprime comme suit :

$$t_{ev} = \frac{h_1}{U_{av}} \quad (V.3)$$

### ***Vitesse moyenne d'expansion***

Comme nous l'avons précisé précédemment, dès lors que la réunion des deux gouttes prend la forme d'un cylindre surmonté d'une sphère tronquée, la lamelle commence son évolution à une vitesse donnée. Elle est variable dans le temps et nous faisons l'hypothèse que sa valeur moyenne d'expansion est équivalente à la vitesse moyenne de parcours  $U_{av}$  défini précédemment (figure V.22).

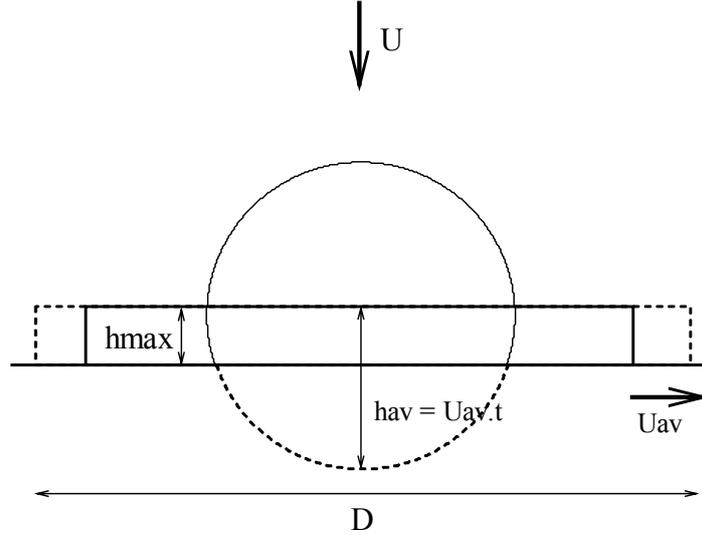


Figure V.22 : Schéma géométrique de la coalescence axisymétrique

En procédant par conservation d'énergie ([Pasandideh-Fard et al, 1996]) entre l'instant de la coalescence et l'étalement maximum, il est possible de déterminer une équation explicite de  $U_{av}$ . A l'instant de la coalescence, le bilan énergétique est le suivant :

$$E_{C1} + E_{S1} + E_{S2} + E_{FCL} - E_p - E_{cis} \quad (V.4)$$

avec  $E_{C1}$  et  $E_{S1}$  l'énergie respectivement cinétique et de surface de la goutte incidente,  $E_{S2}$  l'énergie de surface de la goutte au repos et  $E_{FCL}$  est la friction sur la surface de la ligne de contact. Nous avons alors :

$$\begin{aligned} E_{C1} &= \frac{1}{2} \rho U^2 \frac{\pi D_0^3}{6} \\ E_{S1} &= \pi \sigma D_0^2 \\ E_{S2} &= 2\sigma \pi h \lambda_2 - \sigma \frac{\pi}{4} \cos(\theta_{eq}) D_0^2 \\ E_{FCL} &= \frac{\pi}{4} (D_{max}^2 - D_c^2) \sigma \cos(\theta_{dyn}) \\ E_p &= \delta 6\pi \mu \frac{D_0}{2} UL \end{aligned} \quad (V.5)$$

$$E_{cis} = \beta \Phi_v V \mu \frac{(D_{max} - D_c)}{U_{av}} \quad \text{avec} \quad \Phi_v = \left( \frac{U_{av}}{h_{max}} \right)^2 \quad \text{et} \quad V = \pi \frac{(D_{max}^2 - D_c^2)}{4} h_{max}$$

où  $U$  est la vitesse d'impact,  $D_0$  le diamètre initial de la goutte en vol,  $D_c$  le diamètre de contact de la goutte au repos sur la surface,  $h$  sa hauteur,  $\lambda_2$  est le diamètre de la calotte sphérique sur la surface (voir chapitre I),  $\delta$  et  $\beta$  sont deux coefficients d'ajustement et  $\theta_{dyn}$  est

l'angle dynamique d'avancée sur la surface (chapitre III).  $E_{FCL}$ ,  $E_p$  et  $E_{cis}$  sont les énergies dissipées respectivement, par frottement de la ligne de contact lors de sa progression, par frottement visqueux lors de la traversée de la goutte au repos par la goutte incidente et par cisaillement sur la surface.  $L$  est la longueur de pénétration (soit la hauteur de la goutte au repos),  $D_{max}$  et  $h_{max}$  sont respectivement le diamètre et la hauteur du cylindre à l'étalement maximum et  $U_{av}$  est la vitesse d'avancée du fluide sur la surface.

A l'étalement maximum, le volume de fluide se trouve sous la forme d'un cylindre et le bilan énergétique est :

$$E_{C2} + E_{S3} \quad (V.6)$$

avec  $E_{C2}$  l'énergie cinétique de la goutte qui avance et  $E_{S3}$  son énergie de surface. L'énergie cinétique est calculée en utilisant comme volume un cylindre creux de diamètre intérieur  $D_c$  (nous considérons que seul le cylindre extérieur progresse, et non pas la goutte initiale). Toutefois, et au contraire de ce qui est fait dans le cas de l'étalement d'une goutte seule, l'énergie cinétique à l'étalement maximum n'est pas nulle (estimation à partir de la vitesse moyenne d'expansion). Chacun des termes s'exprime comme suit :

$$E_{c2} = \frac{1}{2} \rho \pi \frac{(D_{max}^2 - D_c^2)}{4} h_{max} U_{av}^2 \quad (V.7)$$

$$E_{S3} = \sigma \left( \frac{\pi D_{max}^2}{4} + \pi D_{max} h_{max} \right)$$

Le polynôme du second degré suivant est obtenu :

$$U_{av}^2 + \frac{9\mu\beta(D_{max} - D_c)D_{max}^4}{8\rho D_0^6} \cdot U_{av} - \frac{3D_{max}^2}{2\pi\rho D_0^3(D_{max}^2 - D_c^2)} \cdot (E_{C1} + E_{S1} + E_{S2} + E_{FCL} - E_p - E_{cis}) = 0 \quad (V.8)$$

Deux solutions existent (mais une seule positive) et sont dépendantes des coefficients  $\delta$  et  $\beta$ .

$$U_{av} = \frac{-\frac{9\mu\beta(D_{max} - D_c)D_{max}^4}{9\rho D_0^6} + \sqrt{\left[ \frac{9\mu\beta(D_{max} - D_c)D_{max}^4}{8\rho D_0^6} \right]^2 + 4 \cdot \frac{3D_{max}^2}{2\pi\rho D_0^3(D_{max}^2 - D_c^2)} \cdot (E_{C1} + E_{S1} + E_{S2} + E_{FCL} - E_p - E_{cis})}}{2} \quad (V.9)$$

### **Prévision de l'étalement maximum**

A l'étalement maximum, le liquide a la forme d'un cylindre. A partir de la conservation de la masse combinée à des hypothèses géométriques, nous établissons le diamètre maximum. Le volume de fluide  $V_1$ , exprimé en fonction de  $h_1$  et qui n'a pas pénétré dans la goutte au repos ( $V - V_2$ ) participe seul à l'expansion de la lamelle (figure V.22) sous la forme d'un cylindre creux, de diamètre intérieur  $D_c$  et de hauteur  $h_{max}$ . La goutte de volume double est donc sous

la forme d'un cylindre diamètre de contact  $D_c$  et de hauteur  $h$  entourée d'un tore, de volume  $V_1$ , d'épaisseur  $D_{\max}-D_c$  et de hauteur  $h_{\max}$  (figure V.23).

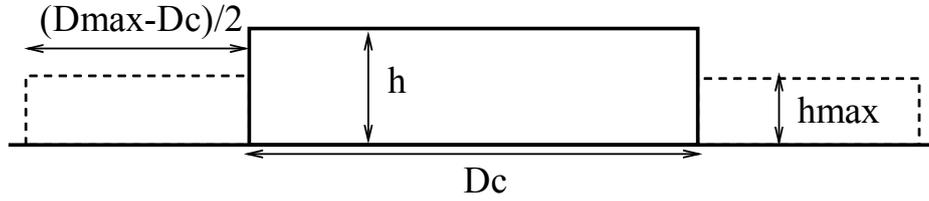


Figure V.23 : Schéma géométrique de la goutte de volume double à son étalement maximum

Avec les mêmes notations que précédemment, l'équation suivante vient :

$$\frac{\pi}{4} h_{\max} (D_{\max}^2 - D_c^2) = \frac{\pi}{6} (D_0 - h_1)(3h_1(D_0 - h_1) + (D_0 - h_1)^2) \quad (\text{V.10})$$

Le volume du cylindre externe de hauteur  $h_{\max}$  correspond au maximum au volume de la goutte incidente d'où :

$$\frac{h_{\max}}{D_0} = \frac{2D_0^2}{3D_{\max}^2} \quad (\text{V.11})$$

En combinant V.10 et V.11, le diamètre maximum s'exprime comme suit :

$$D_{\max} = \sqrt{\frac{D_c^2 D_0^3}{3h_1^2 D_0 - 2h_1^3}} \quad (\text{V.12})$$

### ***Diamètre au cours du temps***

Les hypothèses géométriques du paragraphe précédent sont conservées afin d'obtenir l'équation de l'évolution du diamètre sur la surface au cours du temps. En substituant  $h_{av}$  à  $h_1$  et  $D$  à  $D_{\max}$  dans l'équation V.10, nous obtenons l'évolution dynamique du diamètre (figure V.22) :

$$\frac{\pi}{4} h_{\max} (D^2 - D_c^2) = \frac{\pi}{6} h_{av} (3h_{av} (D_0 - h_{av}) + h_{av}^2) \quad (\text{V.13})$$

avec

$$h_{av} = h_1 + U_{av} t \quad (\text{V.14})$$

et où  $t$  est le temps durant lequel le diamètre de contact s'étend sur la surface. Cette durée s'exprime à l'étalement maximum comme  $t = t_{\text{tot}} - t_{\text{ev}}$  où  $t_{\text{tot}}$  est le temps total depuis l'instant

de la coalescence. Par conservation de la masse et adimensionnalisation, nous obtenons l'équation ci-dessous :

$$\frac{h_{av}}{D_0} = \frac{U_{av} \cdot t}{D_0} \cdot \frac{U}{U} = \frac{U_{av}}{U} \cdot \frac{tU}{D_0} = \varepsilon \cdot t^* \text{ avec } \varepsilon = \frac{U_{av}}{U} \quad (\text{V.15})$$

En introduisant (V.14) et (V.15) dans (V.13), il vient finalement :

$$D = \sqrt{\frac{\varepsilon^2 t^{*2} D_{\max}^{*2}}{2} (3t^* - 2\varepsilon t^{*2}) + D_c^{2*}} \quad (\text{V.16})$$

### Comparaison aux mesures expérimentales

La figure V.24 représente la comparaison entre mesure expérimentale et le calcul pour deux viscosités différentes.

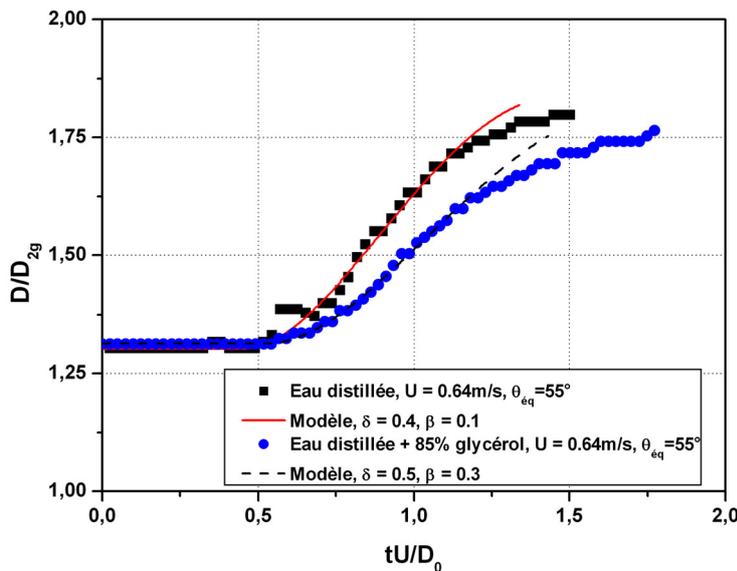


Figure V.24. : Evolution du diamètre de contact, comparaison entre expérience et théorie, (■) eau distillée,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ , (●) eau distillée + de glycérol (85%),  $\mu = 96\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 68\text{mN/m}$ ,  $\rho = 1210\text{kg/m}^3$ .

Le calcul est interrompu dès lors que le diamètre maximum mesuré expérimentalement est atteint et une bonne adéquation est obtenue au vu de la simplicité des hypothèses géométriques utilisées.

Par ailleurs, pour deux viscosités très différentes (1 et 96mPa.s),  $\delta$  varie peu (0.4 à 0.5) contrairement à  $\beta$  (0.1 à 0.3). Cela signifie, au niveau du modèle, que la dissipation de

l'énergie cinétique par cisaillement sur la surface augmente de manière plus importante que la dissipation due à la traversée de la goutte au repos par la goutte incidente, lorsque la viscosité du liquide augmente.

Notons enfin que deux coefficients sont nécessaires ce qui correspond à un modèle peu performant. Cependant, compte tenu de la simplicité à la fois des hypothèses et des calculs, seuls des ordres de grandeurs et des tendances étaient attendus.

### Conclusion à la phase d'étalement

La coalescence axisymétrique, et particulièrement dans les premiers instants du contact, est un problème très compliqué. Les profils transitoires observés présentent trois comportements distincts, la traversée simple de la goutte au repos, la traversée de la goutte au repos avec expulsion de liquide vers le haut à la périphérie de la goutte au repos ([Fujimoto et al, 2001]) et l'écrasement mutuel. Dans ce dernier cas, nos résultats montrent que la vitesse d'impact, la tension de surface et la mouillabilité de la surface en sont les principaux paramètres. Malheureusement, si nos résultats montrent l'existence de ces mécanismes, nous ne sommes pas en mesure d'obtenir un seuil ou un nombre sans dimension permettant de déterminer dans quel type de configuration nous nous trouvons en fonction des conditions expérimentales. Des travaux supplémentaires pour étudier systématiquement l'influence de chacun des paramètres physico-chimiques sont nécessaires afin de classer complètement ces mécanismes.

## **Phase capillaire**

La phase capillaire est principalement constituée du démouillage du diamètre (lorsque l'étalement maximum est supérieur au diamètre d'équilibre) et de l'oscillation de la hauteur. Nous allons rapidement présenter ici ces deux éléments en reprenant les modèles utilisés dans le chapitre III, et montrer que les résultats précédents restent valables dans le cas de la coalescence axisymétrique.

### Démouillage

Dans les cas où la vitesse d'impact est suffisante vis-à-vis de la mouillabilité de la surface, la masse de liquide va démouiller immédiatement après l'étalement maximum. Cet effet est identique à celui observé dans le cas d'une seule goutte et s'explique par le fait que les deux

gouttes sont réunies sous la forme d'une seule et même masse de liquide. A priori, les mécanismes sont donc les mêmes et le modèle de [Bartolo et al, 2005] reste valable. A titre d'exemple, dans les cas de la figure V.11 (donnée dans le tableau V.1), le diamètre maximal excède le diamètre à l'équilibre et un démouillage est observable. Sur la surface à  $108^\circ$  d'angle d'équilibre, un taux de rétraction maximum  $U_{ret}/R_{max}$  de 0.0758 est mesuré expérimentalement. Bien que l'impact ne concerne qu'une goutte ici aussi, la masse de liquide qui démouille la surface est de volume double. Le rayon utilisé dans le modèle doit être ajusté en tenant compte de cet aspect, c'est à dire d'utiliser dans l'équation I.35 un rayon correspondant à une goutte unique mais de volume double soit  $R' = 2^{\frac{1}{3}} R_0$ .

Remarque : Pour l'impact d'une goutte unique, ce sont les nombres de Weber et Reynolds qui indiquent la validité du modèle. La valeur minimale requise pour ces deux nombres ne permet, expérimentalement, que de traduire un démouillage minimum en amplitude. Dans notre cas, les conditions ne sont pas satisfaites sur les surfaces à  $30^\circ$  et à  $55^\circ$ . Le démouillage est insuffisant pour que ce modèle s'applique et ce, bien que les conditions sur les nombres de Weber et Reynolds soient respectées, ce qui n'est pas surprenant sachant que la masse de liquide à mettre en mouvement est double.

Le rayon utilisé est de 1.42mm et l'angle de reculée est de  $70^\circ$  (chapitre II). Comme précédemment, le coefficient de 0.6 donné par les auteurs conduit à une prévision théorique supérieure de 25.8% à la valeur obtenue expérimentalement. L'écart entre le modèle et l'expérience est du même ordre de grandeur que dans le cas d'une goutte unique. En utilisant le même coefficient d'ajustement que nous avons établi au chapitre III, soit 0.46, la prévision est de 0.0732 soit 3.5% d'erreur environ. Ce modèle reste valable dans le cas de coalescence axisymétrique bien que les conditions de validité soient plus difficiles à établir. Cette adéquation n'est pas surprenante étant donné que ce modèle est indépendant à la fois du volume de liquide et de la vitesse de chute. Toutefois, il est important de noter que si l'ordre de grandeur du taux de démouillage théorique est correct, il est relativement sensible à la mesure de l'angle de reculée.

Enfin, plus la surface est non mouillante et plus l'amplitude de ce démouillage le sera. Pour une multiplication de l'angle d'équilibre d'un facteur 3.5, cette amplitude est multipliée par 2.07. Précisons, enfin, que l'amplitude du démouillage ne varie pas linéairement avec la mouillabilité de la surface.

### Oscillations

Pendant la phase de reculée du diamètre, la hauteur au centre de la goutte augmente de nouveau puis oscille avec une fréquence et une amplitude variables en fonction des paramètres expérimentaux (tableau V.1). En particulier, nous avons établi précédemment que cette fréquence d'oscillation est uniquement fonction de la masse volumique du fluide, de la tension de surface (figure V.25), du diamètre initial en vol et de l'angle d'équilibre du liquide. Elle est définie suivant l'équation III.11 (l'inverse de cette fréquence correspond au temps caractéristique physico-chimique du problème). Comme pour le problème du démouillage, le modèle est ajusté pour tenir compte du volume total qui oscille.

### *Amplitude*

L'amplitude des oscillations est d'autant plus faible qu'à la fois, la mouillabilité et la tension de surface sont faibles et que la viscosité est importante. Sur une surface plus mouillante, l'étalement maximum est plus important et l'angle de reculée est plus faible. Dans le cas de la coalescence axisymétrique de deux gouttes d'eau distillée sur des surfaces respectivement à 30°, 55° et 105°, l'amplitude de la première oscillation est de 1.06mm, 1.6mm et 2.19mm, soit un écart de 106.6% entre les deux cas extrêmes. L'effet est identique pour la tension de surface. Les trois gouttes de liquides de tension de surface respective 30mN/m, 55mN/m et 73mN/m, obtenues à partir d'un mélange d'eau distillée et d'éthanol (à 5% et 48% en volume), forment un angle final expérimental mesuré à  $52 \pm 3^\circ$  sur leur surface respective. Nous observons sur la figure V.25 que pour une tension de surface 59% plus faible (de 73 à 30 mN/m), l'amplitude sans dimension de la première oscillation passe de 0.536 à 0.24, soit 55% de réduction. Par ailleurs, plus la tension de surface est faible et plus le nombre d'oscillations diminue.

Enfin, l'augmentation de la viscosité augmente également la dissipation par frottement ce qui a pour conséquence de diminuer à la fois le nombre et l'amplitude des oscillations. Pour des viscosités de 1mPa.s, 10mPa.s et 100mPa.s, obtenu par mélange d'eau distillée et de glycérol (chapitre II), l'amplitude de la première oscillation est respectivement de 1.6mm, 1.09mm et, 1.1mm soit 31% de variation entre les deux viscosités extrêmes. Remarquons également que l'amplitude est comparable entre les cas à  $\mu = 9.6$ .mPa.s et 96mPa.s.

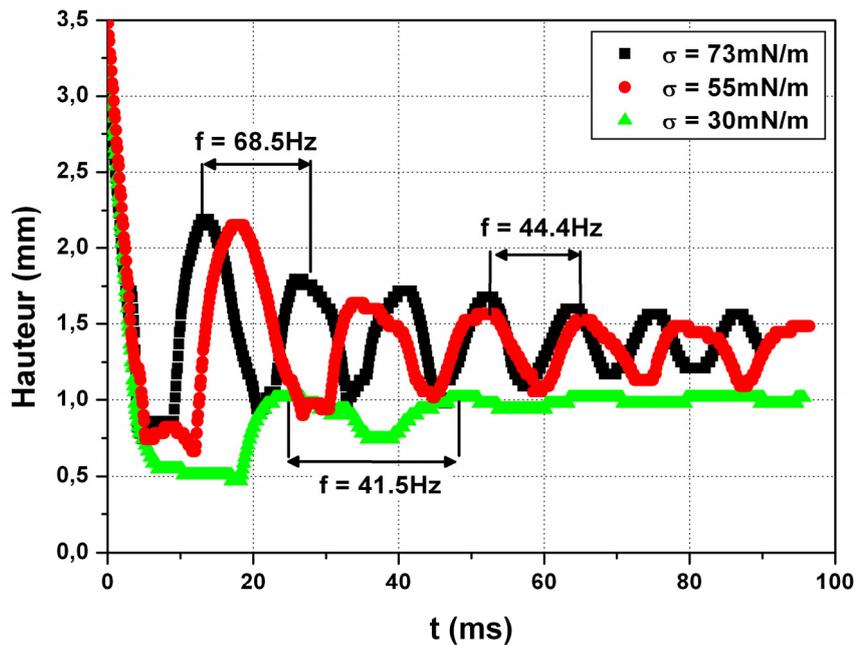


Figure V.25 : Fréquence d'oscillation suite à la coalescence de deux gouttes identiques (■) d'eau distillée, (●) d'eau distillée + 5% d'éthanol et (▲) d'eau distillée + 48% d'éthanol,  $\theta_{\text{éq}} = 52 \pm 3^\circ$ ,  $U = 0.66 \text{ m/s}$ .

### Fréquence d'oscillation

Comme dans le cas d'une goutte unique, la viscosité ne modifie pas la fréquence des oscillations, contrairement à la mouillabilité de la surface ou à la tension de surface du liquide utilisé. La figure V.25 montre que plus la tension de surface est importante et plus la fréquence des oscillations l'est (pour une diminution de 73 à 55 mN/m, la fréquence est réduite de 68.5 Hz à 44.4 Hz). Cette figure montre également que la variation de cette fréquence n'est pas linéaire avec la tension de surface.

En reprenant l'équation empirique obtenue au chapitre III qui permet de déterminer le coefficient  $g(\theta_{\text{éq}})$  en fonction de la mouillabilité de la surface (équation III.12 et III.13), nous obtenons, une fois encore, une très bonne adéquation entre les mesures expérimentales et le modèle empirique (figure V.26).

A titre d'exemple, pour les trois cas présentés sur la figure V.11,  $g(\theta_{\text{éq}})$  prend pour valeur 0.8857, 1.2357 et  $4/\pi$  pour des angles d'équilibre respectivement de  $30^\circ$ ,  $55^\circ$  et  $105^\circ$ . Les fréquences théoriques sont de 49.8 Hz, 69.5 Hz et 71.6 Hz, soit respectivement 10.3%, 1% et 9.2% d'écart avec les mesures expérimentales (tableau V.1). Compte tenu des mouvements

complexes lors des oscillations, les incertitudes de mesures sur les périodes d'oscillations sont estimées, pour ces trois cas, entre 1 et 1.5ms. Ces résultats sont en accord avec [Desie et al, 2003 ; Vadillo, 2003].

Remarque : Dans chacun des calculs effectués et présentés sur la figure V.26, l'angle utilisé correspond à l'angle de contact à la fin des oscillations. L'hystérésis de l'angle de contact est suffisamment importante pour obtenir des écarts entre angle d'avancée et de reculée supérieurs à 10°. En effet, lors des oscillations de la hauteur, l'angle de contact oscille également autour de sa valeur à l'équilibre. Cette dernière traduit l'interaction locale au niveau de la ligne contact et affecte la fréquence et l'amplitude de ces oscillations (influence de la répulsion du substrat vis-à-vis du fluide).

L'utilisation de surfaces à très faible hystérésis d'angle de contact permettrait de minimiser les incertitudes et conduirait à établir une dépendance plus précise entre la fréquence d'oscillation et l'angle d'équilibre.

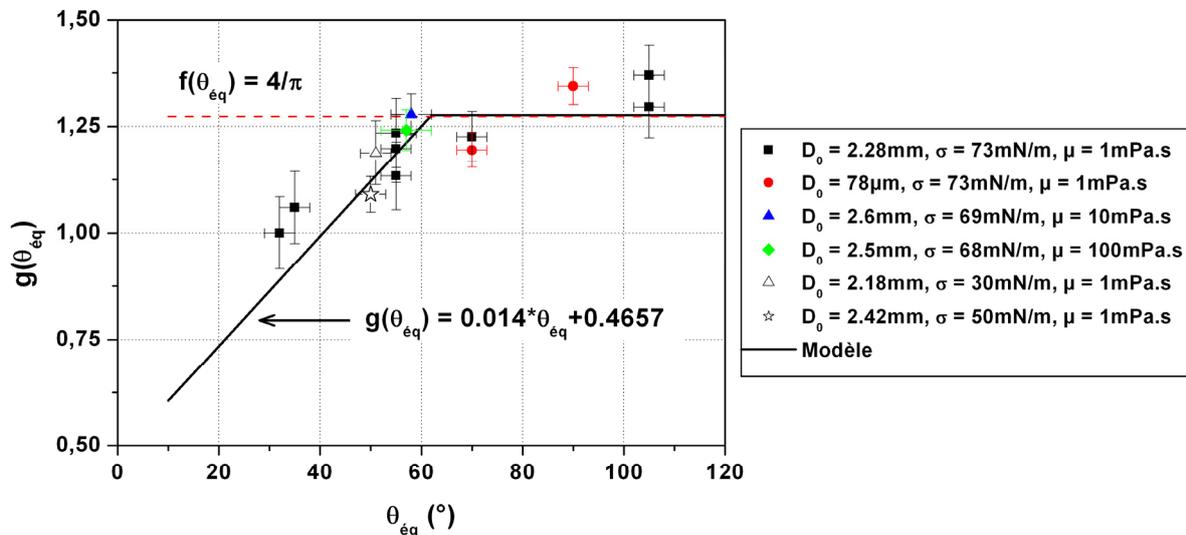


Figure V.26 : évolution de du coefficient  $g(\theta_{\text{éq}})$  en fonction de la mouillabilité de la surface d'impact et pour différents fluides

## Coalescence non axisymétrique

La coalescence non axisymétrique est une configuration également très présente dans le domaine de l'impression numérique puisque la juxtaposition de points de couleurs différentes permet de réaliser une image (figure V.1). Différents algorithmes de placements de gouttes sont utilisés suivant les effets désirés. Si les encres de couleurs variables ont généralement des propriétés physico-chimiques proches, cela n'est pas toujours le cas. Par ailleurs, dans le cas axisymétrique, nous ne nous attendons pas à ce que cette variation de propriétés modifie la forme ou le comportement lors de la coalescence, si ce n'est sur le mélange (problème que nous n'avons pas étudié). En revanche, dans le cas de coalescence non axisymétrique, les gradients de viscosité et/ou de tension de surface d'une goutte à l'autre pourraient faire apparaître des déplacements de liquide pas toujours contrôlés.

Dans ce paragraphe, nous présentons une étude préliminaire du mécanisme de coalescence non axisymétrique. La configuration géométrique sera toujours la même, à savoir que la goutte incidente coalesce avec la goutte au repos lors de son étalement radial sur la surface. L'influence des différents paramètres est mise en évidence mais, seule une description comportementale est réalisée. Une étude complémentaire approfondie serait nécessaire pour caractériser quantitativement l'influence de l'ensemble des paramètres. Nous présentons tout d'abord le cas de la coalescence non axisymétrique avec deux gouttes identiques d'un même fluide. Comme précédemment, nous présentons l'effet de la viscosité, de la tension de surface, de la mouillabilité de la surface, et nous montrons que les profils transitoires sont similaires entre microgouttes et macrogouttes. Dans un second temps, nous exposons d'un point de vue comportemental le cas de la coalescence non axisymétrique lorsque les deux gouttes utilisées ont des tensions de surface et/ou des viscosités différentes.

Une modélisation complète simple étant exclue ici, le problème ayant perdu son caractère axisymétrique, nous décrivons uniquement un modèle d'évolution pour le point de jonction des deux gouttes ([Menchaca-Rocha, 2001]). Des simulations par des logiciels commerciaux (Flow3D, etc...), résolvant les équations de Navier et Stokes, montrent une certaine prédiction des comportements ([Soucemarianadin, 2004]) ces simulations ne seront pas détaillées ici.

## Fluide identique

### Comportement global

La coalescence non axisymétrique est la réunion de deux gouttes lors de leur étalement sur la surface. Dans notre cas, une première goutte est au repos et la coalescence a lieu durant l'étalement de la seconde goutte (figure V.27).

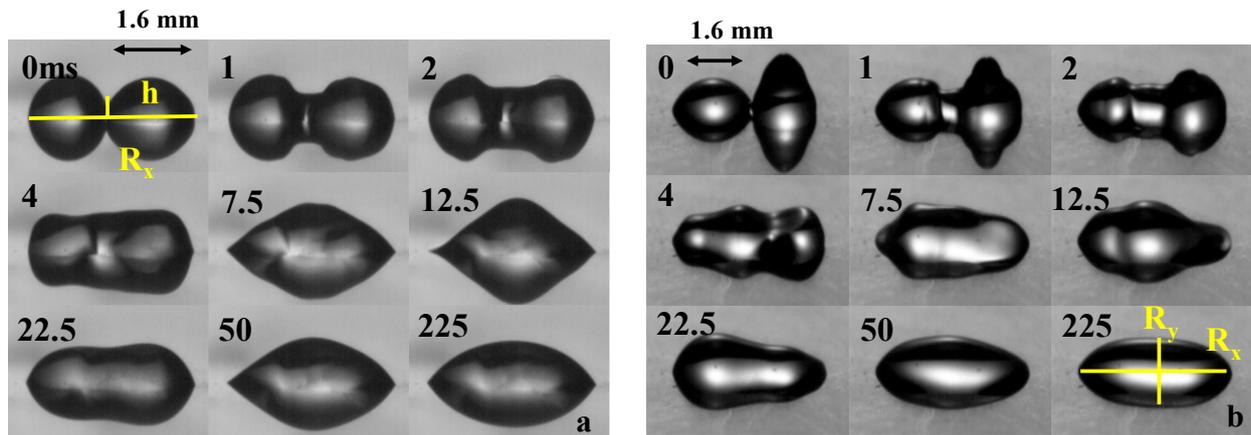


Figure V.27 : Coalescence non axisymétrique de deux gouttes d'eau distillée contenant du surfactant sur une surface de téflon en (a) vue de côté et (b) vue inclinée,  $D_0 = 1.6\text{mm}$ ,  $\sigma = 30\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 50^\circ$ .

A l'instant de la coalescence, les interfaces se rompent et la masse de liquide se retrouve dans un état instable. La ligne de contact à l'extrémité opposée du point de jonction de la goutte au repos ne bouge pas alors que l'étalement de la goutte incidente se poursuit. De façon schématique, une partie de la masse de liquide reste statique alors que l'autre partie s'étale sur la surface. Le point de jonction s'élève ( $t = 2\text{ms}$ ), ce qui diminue l'angle sur l'ensemble de la ligne de contact, et des déformations sur la partie supérieure de la masse de liquide sont visibles ( $t = 7.5$ ). Les angles de contacts dynamiques à droite et à gauche ne sont pas identiques au cours du temps. Quant aux déformations, elles ont plusieurs causes. D'une part, elles semblent principalement liées à l'instabilité engendrée par la relaxation de la forte courbure des gouttes au voisinage du point de coalescence. D'autre part, elles proviennent de la collision entre les deux lignes de contact. Plus la vitesse de collision est importante (par exemple lorsque la vitesse d'impact augmente), plus les déformations le sont. Enfin, elles sont également dues à la réorganisation de la masse de liquide. Une fois l'étalement maximum atteint, la tension de surface a pour effet de regrouper le liquide sous la forme d'une sphère tronquée alors que la viscosité s'oppose à cette réorganisation. Par ailleurs, une forme

paraboloïdale de la goutte, et non pas circulaire, très certainement en raison de l'hystérésis d'angle de contact sur la surface est obtenue en fin d'étalement ([Eggers et al, 1999]).

Effet de la mouillabilité

La tension de surface et / ou la mouillabilité de la surface modifie le comportement au cours du phénomène de coalescence non axisymétrique. Dans le cas d'une mouillabilité forte, la réunion des deux gouttes prend la forme de deux disques qui se coupent ([Roisman et al, 2002]). L'hystérésis de l'angle de contact est souvent conséquente sur des substrats de grande mouillabilité si bien que la masse de liquide ne prend pas la forme d'un disque ni d'une ellipse (ou sur des temps très longs). Ce comportement est observable sur la figure V.28 qui présente le cas de la coalescence non axisymétrique de deux gouttes d'encre base eau ( $\sigma = 32\text{mN/m}$  et  $\mu = 3.2\text{mPa.s}$ ,  $D_0 = 1.5\text{mm}$ ). Un élargissement de la zone de contact entre les deux gouttes est observable mais il n'y a pas de mouvement des lignes de contact dans la direction de l'axe des x.

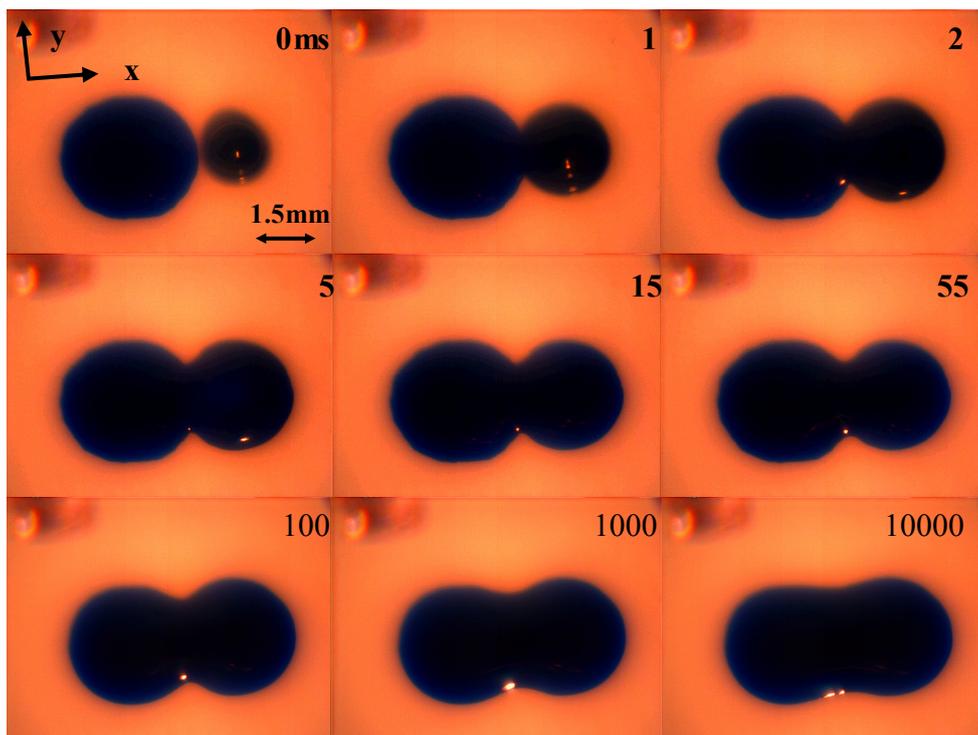


Figure V.28 : Coalescence non axisymétrique de deux gouttes d'encre base eau sur une surface industrielle en Pet fortement mouillante,  $\sigma = 32\text{mN/m}$  et  $\mu = 3.2\text{mPa.s}$ ,  $D_0 = 1.5\text{mm}$ ,  $U = 0.5\text{m/s}$ .

En revanche, dès lors que l'angle d'équilibre entre le liquide et la surface est important, un déplacement est observable. En effet, comme nous l'avons évoqué précédemment, le point de

jonction s'élève suite à la coalescence, ce qui induit une diminution des angles le long de la ligne de contact. Les angles dynamiques deviennent inférieurs à l'angle de reculée et un démouillage est observé (figure V.29). Dans cette configuration, une forme finale comprise entre un disque et une ellipse est obtenue en fonction à la fois de la viscosité et de l'hystérésis de l'angle de contact. Cette figure montre également l'importance des déformations subies par la surface libre. En comparaison avec le cas du glissement sur les surfaces hétérogènes (chapitre IV), le démouillage mesuré ici se fait également par « stick and slip » en alternance à gauche (entre  $t = 11.25\text{ms}$  et  $t = 13.75\text{ms}$ ) et à droite (entre  $t = 13.75\text{ms}$  et  $t = 16.25\text{ms}$ ) du point de coalescence. Enfin, la mouillabilité de la surface influence la durée du mécanisme de réorganisation où seules les forces capillaires interviennent. Dans le cas de la coalescence non axisymétrique de deux gouttes d'eau distillée sur une surface à  $\theta_{\text{éq}} = 30^\circ$ , le temps pour atteindre l'état d'équilibre est d'environ 150ms contre 50ms sur une surface à  $\theta_{\text{éq}} = 108^\circ$ . L'angle d'équilibre et certainement le rapport tension de surface ainsi que la viscosité modifient de manière conséquente l'établissement de l'état d'équilibre.

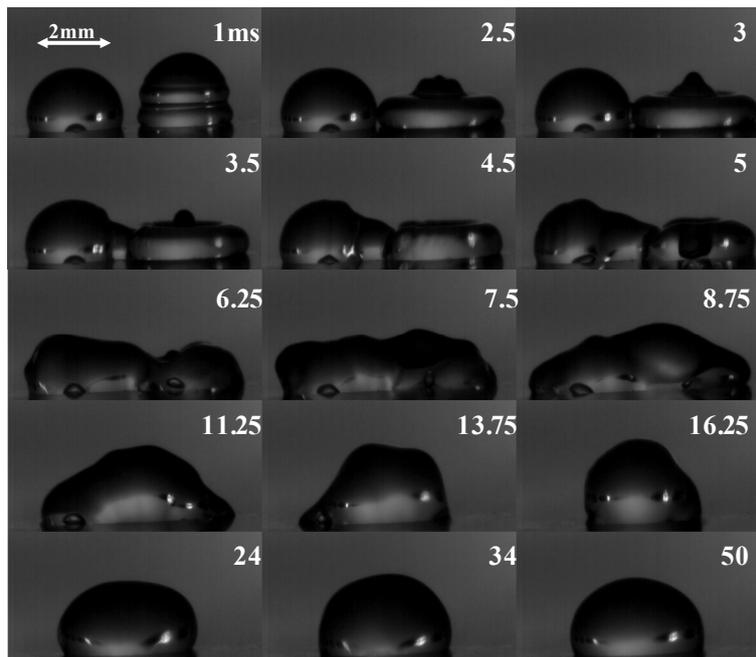


Figure V.29 : Coalescence non axisymétrique de deux gouttes d'eau distillée sur une surface à  $\theta_{\text{éq}} = 108^\circ$ ,  $D_0 = 2\text{mm}$ ,  $U = 0.5\text{m/s}$ ,  $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ .

Effet du diamètre initial

La figure V.30 présente la coalescence non axisymétrique de deux gouttes d'encre industrielle base eau sur une surface de Polyéthylène recouvert d'un couchage non mouillant. Les profils et les déformations sont similaires à ceux obtenus précédemment dans le cas des macrogouttes dans des conditions expérimentales proches. De la même manière, le temps de mise à l'équilibre est équivalent à  $10 t_{pc}$  (chapitre I), ce qui correspond au même ordre de grandeur que pour les macrogouttes pour un angle d'équilibre et une viscosité similaires. Tout comme dans le cas de l'impact d'une seule goutte, la similitude des mécanismes entre gouttes millimétriques et gouttes micrométriques reste établie.

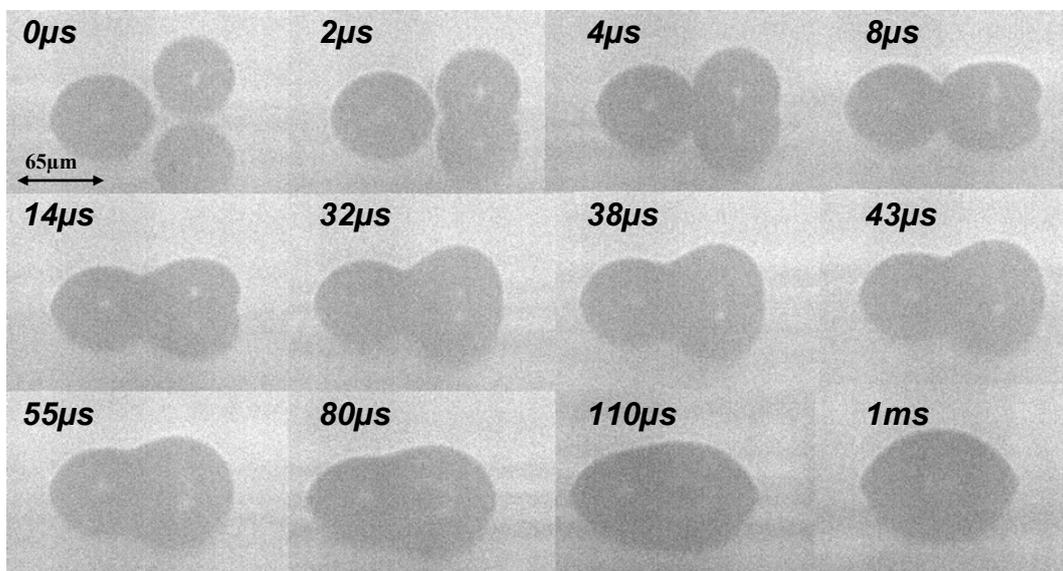


Figure V.30 : Coalescence non axisymétrique de deux gouttes d'eau distillée sur une surface de Polyéthylène couchée hydrophobe ( $\theta_{eq} = 70^\circ$ ),  $D_0 = 65\mu\text{m}$ ,  $U = 2/\text{s}$ ,  $\sigma = 32\text{mN/m}$ ,  $\mu = 5\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1035\text{kg/m}^3$ .

Effet de la viscosité

La viscosité s'oppose systématiquement au mouvement de liquide et, par conséquent, à la contraction de la masse de liquide sous la forme d'une sphère tronquée. Les effets de démoillage sont donc peu ou pas observables, essentiellement en raison d'un cisaillement accru sur la surface. Le temps d'établissement de l'état d'équilibre dans le cas d'un mélange d'eau distillée et de glycérol ( $\mu = 10\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 69\text{mN/m}$ ) est largement plus important en comparaison du cas de deux gouttes d'eau distillée. Pour ce mélange, dans le cas de la coalescence non axisymétrique de deux gouttes sur une surface d'angle d'équilibre de  $90^\circ$ , un

angle proche de  $70^\circ$  est mesuré à  $t = 50\text{ms}$  (figure V.31). Le liquide est dans une phase capillaire et tous les mouvements sont très lents. En comparaison, pour un temps équivalent, l'équilibre est déjà atteint pour de l'eau distillée. De même, et comme dans le cas de l'impact d'une seule goutte, les déformations de la surface libre sont plus faibles et rapidement atténuées du fait d'une dissipation plus importante. Les déformations de la surface libre ont totalement disparu avant d'avoir dépassé le milieu de la goutte statique. Enfin, la ligne de contact de la goutte initialement au repos ne se déplace pas, que ce soit suite à l'impact ou durant la phase de démouillage.

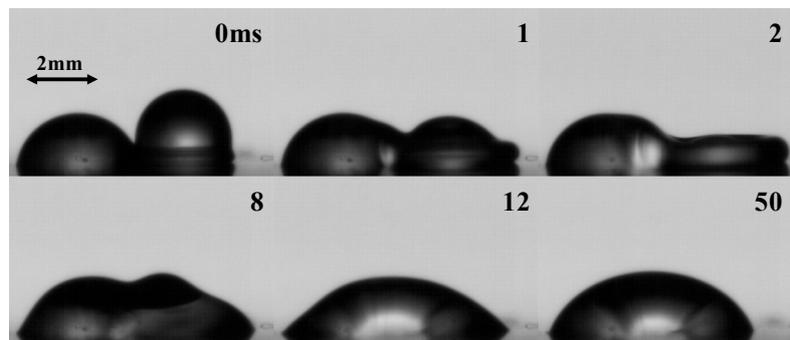


Figure V.31 : Coalescence non axisymétrique de deux gouttes d'un mélange d'eau distillée et de glycérol,  $D_0 = 2\text{mm}$ ,  $U = 0.7\text{m/s}$ ,  $\mu = 10\text{mPa.s}$ ,  $\sigma = 69\text{mN/m}$ ,  $\rho = 1100\text{ kg/m}^3$ .

#### Modèle d'évolution du point de jonction

Le point de jonction correspond au premier point de contact entre les deux gouttes lors de la coalescence (figure V.32.a). A partir de nos algorithmes de traitement d'image, nous avons suivi le déplacement des profils au cours du temps aux alentours de ce point (figure V.32.b).

Le modèle de [Menchaca-Rocha et al, 2001] est basé sur des considérations géométriques pour décrire l'évolution de ce point particulier de l'interface. Précisons que dans leurs travaux, les auteurs utilisent des gouttes de métal liquide que l'on rapproche. Les conditions cinématiques sont assez différentes de notre cas. L'équation est :

$$h \approx \sqrt{\frac{U_{\text{collision}} D_0 t}{2}} \quad (\text{V.17})$$

où  $U_{\text{collision}}$  et  $D_0$  correspondent respectivement à la vitesse de la ligne de contact à l'instant de la coalescence (mesure obtenue expérimentalement) et au diamètre initial de la goutte incidente. L'évolution du point de jonction est donc liée aux grandeurs inertielles de la goutte

incidente. Un temps caractéristique inertiel  $t_{ic}$  (expérimentale) lié à la collision peut être défini à partir de la vitesse de collision et l'équation V.17 devient :

$$\frac{h}{D_0} \approx \sqrt{\frac{t}{2t_{ic}}} \quad \text{avec} \quad t_{ic} = \frac{D_0}{U_{collision}} \quad (\text{V.18})$$

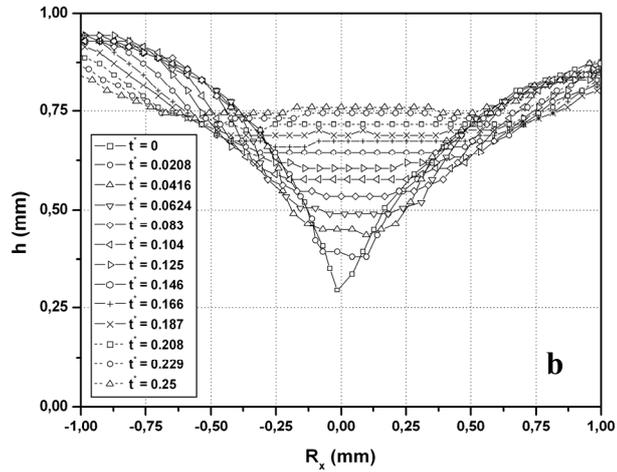
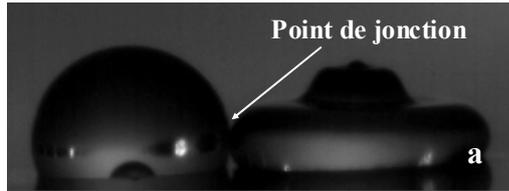


Figure V.32 : (a) Définition du point de jonction et (b) suivie de l'évolution de ce point au cours du temps dans le cas de la coalescence non axisymétrique de deux gouttes d'eau distillée contenant du surfactant sur une surface de téflon,  $D_0 = 1.6\text{mm}$ ,  $\sigma = 30\text{mN/m}$ ,  $\mu = 1\text{mPa.s}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 50^\circ$ .

Notons par ailleurs que [Eggers et al, 1999] proposent, pour décrire l'évolution du point de jonction en fonction de la racine carrée du temps, un préfacteur basé sur la tension de surface et le diamètre initial des gouttes. La relation est la suivante :

$$h \approx \left( \frac{\sigma D_0}{\rho} \right)^{\frac{1}{4}} \sqrt{t} \quad (\text{V.19})$$

La combinaison des équations (V.18) et (V.19) conduit à :

$$\frac{h}{D_0} = \alpha \left( \frac{\sigma}{\rho D_0 U_{collision}^2} \right)^{\frac{1}{4}} \sqrt{\frac{t}{t_{ic}}} \quad (\text{V.20})$$

avec  $\alpha$  un coefficient d'ajustement égal à 0.8. Remarquons que l'équation sans dimension ainsi établie est uniquement proportionnelle à l'inverse du nombre de Weber de collision. En comparant ce modèle à 3 cas expérimentaux (deux portant sur des microgouttes et un sur des macrogouttes), nous obtenons un très bon accord durant  $0.3 t_{ic}$  dans le cas des microgouttes et  $1t_{ic}$  pour les macrogouttes (figure V.33).

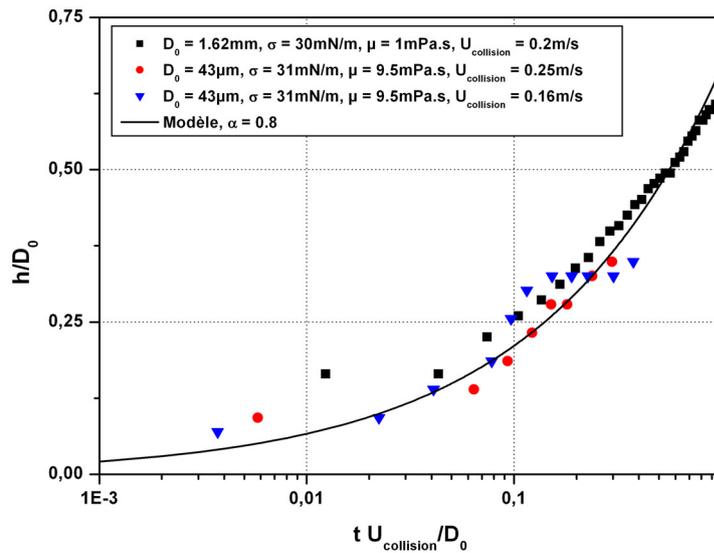


Figure V.33 : Comparaison entre le modèle d'évolution géométrique du point de jonction (équation V.20) et 3 expériences particulières.

Modèle d'étalement maximum

Comme précédemment, l'étalement maximum est un élément de première importance et nous cherchons à le déterminer. Une représentation simple consiste à ne prendre en compte que les variations de la goutte incidente. Dans ce cas, l'étalement maximum correspond au diamètre de contact maximum de contact suivant le plan de la visualisation. Il est défini comme la somme du rayon de contact de la goutte au repos ( $R_c$ ), de l'entraxe  $L$  (distance entre les deux points d'impact) et le rayon maximum de la goutte incidente  $\frac{D_{max}}{2}$  obtenu à partir du modèle de [Ukiwe & Kwok, 2005] modifié (chapitre III, figure V.34).

$$D_{2G\_max} = R_c + L + \frac{D_{max}}{2} \tag{V.21}$$

Ce calcul simple permet d'estimer très rapidement la valeur de l'étalement maximum. Cependant, sa précision est directement lié à la validité des hypothèses (pas de mouvement sur la ligne de contact de la goutte au repos jusqu'à l'étalement maximum) et la précision du modèle d'étalement maximum.

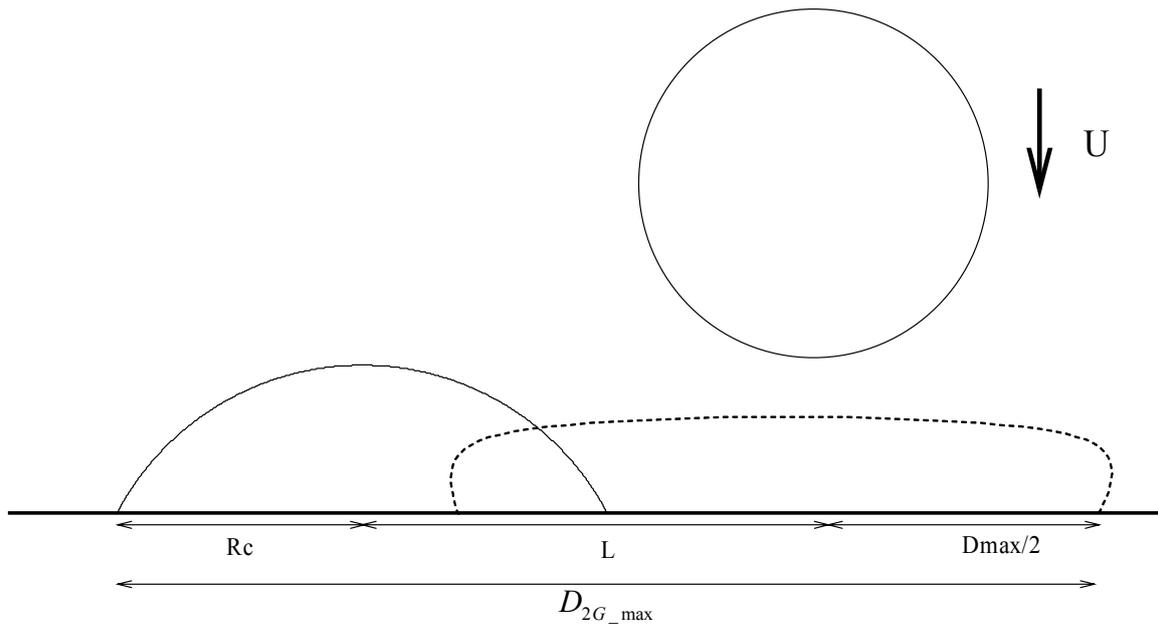


Figure V.34 : Schéma pour l'estimation du diamètre maximum lors de la coalescence non axisymétrique.

## Fluides différents

Dans le cas de coalescences non axisymétriques où les liquides utilisés présentent des tensions de surface et/ou des viscosités différentes, ce qui peut être le cas lorsque des encres différentes sont utilisées (impression numérique), les gouttes peuvent se déplacer. En particulier, lors de la réorganisation en sphère tronquée, l'une des deux gouttes peut être drainée par l'autre, c'est-à-dire qu'un démoillage de la ligne de contact est observable suivant l'axe de coalescence. Les gradients de viscosité et/ou de mouillabilité sont à l'origine de ces déplacements. Ils peuvent ainsi influencer la qualité d'impression.

Nous présentons succinctement dans ce paragraphe l'effet de l'un et l'autre de ces deux paramètres. Pour ce faire, des encres industrielles de tensions de surface statiques ont été utilisées.

### Tensions de surface différentes

Dans un premier cas, nous considérons deux liquides de tensions de surface différentes à savoir 45 et 55mN/m respectivement. Ensuite, deux expériences de coalescence non axisymétrique sont réalisées dans les mêmes conditions que les expériences précédentes et sur une surface non mouillante ( $\theta_{\text{éq}} = 70^\circ$  environ). Dans un premier cas, la goutte au repos correspond au liquide de tension de surface la plus basse (figure V.35.a). La deuxième expérience inverse cette situation (figure V.35.b).

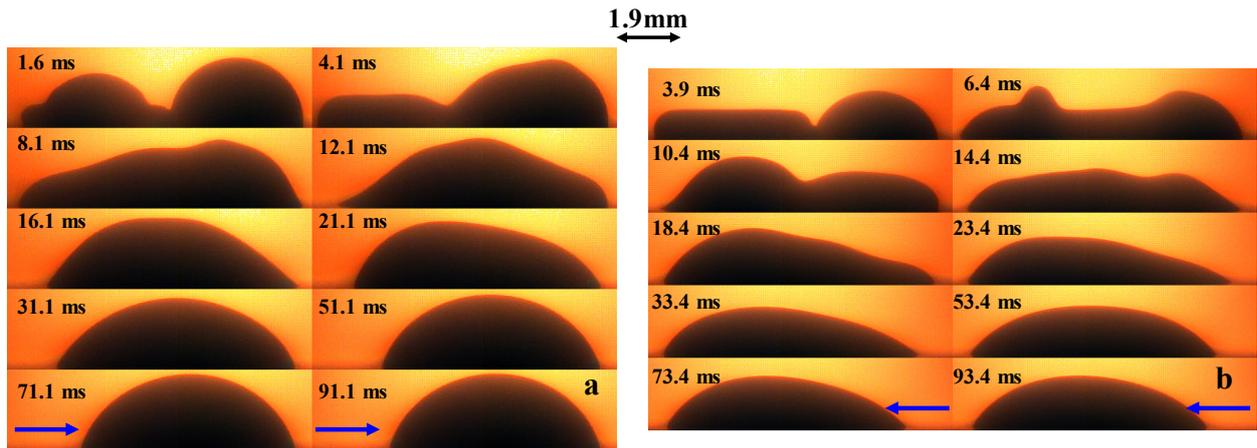


Figure V.35 : Coalescence non axisymétrique pour des liquide de tension de surface différentes, (a) goutte incidente tension de surface inférieure,  $\sigma = 45\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 1.9\text{mm}$ ,  $\mu = 2.5\text{mPa.s}$  et (b) goutte incidente tension de surface supérieure  $\sigma = 55\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.05\text{mm}$ ,  $\mu = 2.5\text{mPa.s}$ .

Dans ces deux situations, nous nous attendons à ce que le liquide de tension de surface le plus élevé démouille la surface suite à la coalescence (angle de reculée plus important pour ce liquide). Il est également possible de penser que le drainage du liquide se fera sous un effet Marangoni, à savoir de la tension de surface la plus basse vers la tension de surface la plus élevée. Dans cette situation, deux comportements s'opposent.

La figure V.35 montre que la deuxième hypothèse semble, a priori, être la bonne puisque dans les deux cas un déplacement de la ligne de contact de la goutte de tension de surface inférieure. Cependant, il faut rester très prudent. Les liquides sont apparemment miscibles ; il semble dès lors difficile de discriminer les deux parties de la goutte résultante. En modifiant légèrement les conditions expérimentales, en particulier l'entraxe ou la vitesse d'impact, il est possible d'inverser la prépondérance d'une des deux situations, comme cela est le cas sur la figure V.36.

Notons également qu'en inversant l'ordre d'arrivée des liquides sur la surface, l'évolution du diamètre de contact au cours du temps est modifiée. A  $t = 90\text{ms}$  environ, le temps nécessaire pour obtenir une condition d'équilibre est atteint dans la configuration de la figure V.35.a alors que le déplacement n'est pas terminé pour l'autre configuration (figure V.35.b) et ce, malgré un étalement maximum relativement proche dans les deux cas.

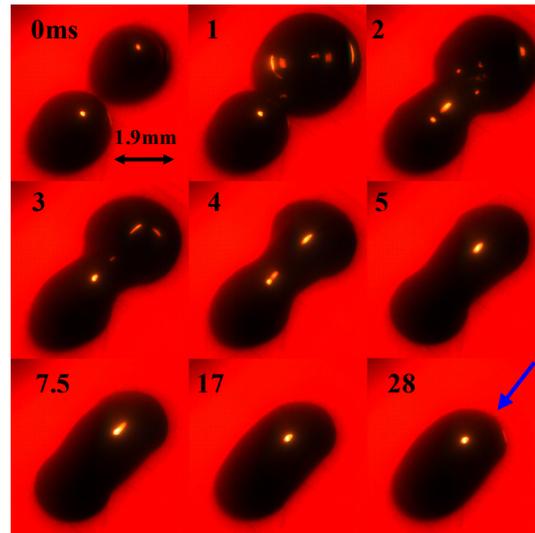


Figure V.36 : vue de dessus de la coalescence non axisymétrique dans le cas d'une goutte incidente avec une tension de surface supérieure,  $\sigma_{\text{repos}} = 45\text{mN/m}$ ,  $\sigma_{\text{incidente}} = 55\text{mN/m}$ ,  $\mu = 2.5\text{mPa.s}$ ,  $D_0 = 1.9\text{mm}$ ,  $U = 0.6\text{m/s}$ .

Viscosités différentes

De la même manière que précédemment, nous réalisons des expériences similaires en utilisant des encres de tensions de surface identiques mais de viscosités variables, 2.5 et 7mPa.s. Il n'est pas rare de rencontrer des procédés où les encres sont éjectées à 50°C et plus, alors que les surfaces sur lesquelles les gouttes impactent sont à température ambiante. La forte variation de la viscosité avec la température (variation exponentielle), la faible taille des gouttes et certains procédés d'impression numérique (« réticulation UV ») peuvent induire des gradients de viscosité très importants.

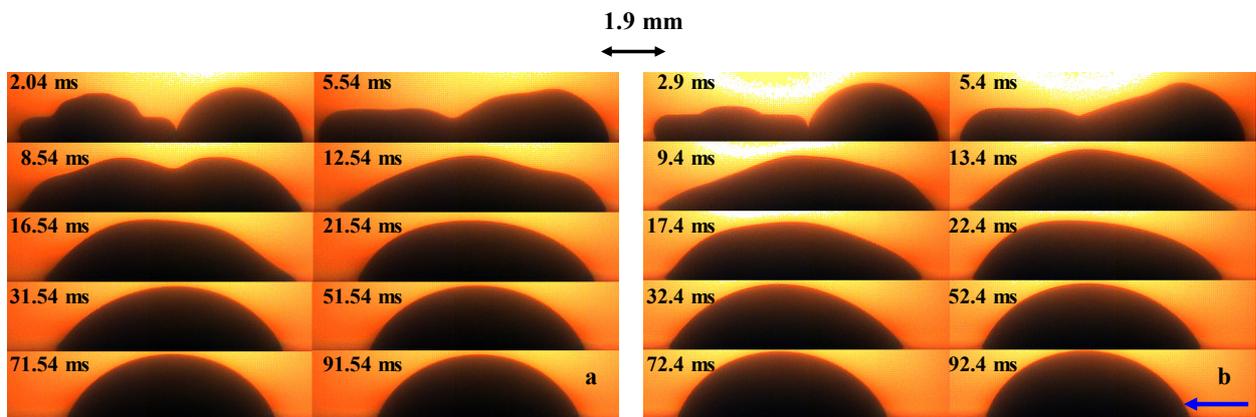


Figure V.37 : Coalescence non axisymétrique pour des liquide de viscosité différentes, (a) goutte incidente viscosité inférieure,  $\sigma = 55\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.05\text{mm}$ ,  $\mu = 2.5\text{mPa.s}$  et (b) goutte incidente viscosité supérieure,  $\sigma = 55\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.05\text{mm}$ ,  $\mu = 7\text{mPa.s}$ .

Comme pour la tension de surface, nous avons inversé l'ordre d'arrivée des gouttes. Plus la viscosité d'un liquide est importante et plus le déplacement sur la surface est soumis à des contraintes de cisaillement importantes.

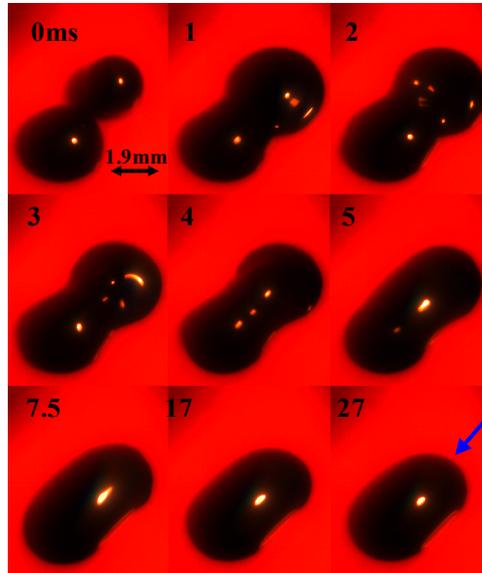


Figure V.38 : Vue de dessus de la coalescence non axisymétrique dans le cas d'une goutte incidente avec une tension de surface supérieure,  $\mu_{\text{repos}} = 7\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\mu_{\text{incidente}} = 2.5\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 55\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 1.9\text{mm}$ ,  $U=0.6\text{m/s}$ .

Nous prévoyons donc un déplacement de la ligne de contact essentiellement au niveau de la goutte du liquide le moins visqueux. La figure V.37 confirme cette hypothèse. Un léger déplacement est observable suite à la réorganisation de la masse de liquide sous la forme d'une sphère tronquée. La figure V.38 présente la forme finale vue de dessus de la masse de liquide en fin d'étalement.

### Conclusion :

L'ensemble des configurations présentées pour l'application de l'impression numérique montre un domaine scientifique et technologique encore vaste et complexe. De nombreux mécanismes restent encore à étudier en détail et des paramètres tels que l'entraxe, la rugosité, le taux d'humidité ou encore la susceptibilité des fluides à se mélanger sont à prendre en compte. Les variations de propriété physico-chimique provoquent des mouvements du liquide et des points particuliers, comme le mélange des liquides entre eux lors de la coalescence, restent encore à étudier.

Par ailleurs, nous ne considérons que le cas de la coalescence de 2 gouttes en opposition alors que les procédés de réalisation d'une image en nécessitent plusieurs dizaines de milliers. L'augmentation de la quantité d'encre sur la surface rajoute des contraintes qui modifient les mécanismes. Il faut également préciser que l'objectif de la coalescence est le mélange des deux liquides. Cependant, cet échange de matière d'une goutte vers l'autre peut engendrer un écoulement, paramètre qui n'a jamais encore été étudié en détail.

## Application à la synthèse *in situ* d'ADN

L'utilisation de microgouttes n'est pas restreinte à l'impression numérique mais trouve des applications dans beaucoup d'autres domaines où la microfluidique est présente. La possibilité de dépôt précis d'un volume de liquide parfaitement connu à un endroit bien déterminé constituent des avantages forts. Ils permettent notamment d'étendre les applications de l'éjection de fluide aux domaines biologiques. Dans cette partie, nous présentons une forme particulière de synthèse *in situ* d'oligonucléotides qui utilise des microgouttes pour réaliser la formation d'une couche de polymère en vue de protéger des zones spécifiques d'une surface ([Rosilio et al, 2000]).

## Principe de la synthèse

L'acide désoxyribonucléique (souvent abrégé en ADN) est une molécule que l'on retrouve dans tous les organismes vivants. Cette molécule se présente sous forme d'une structure en double-hélice, dans laquelle deux brins complémentaires sont appariés. Chacun de ces brins est un polymère formé de bases désoxyribonucléiques, plus communément appelées nucléotides. Chaque nucléotide est constitué d'un groupement d'un désoxyribose, un sucre, lui-même lié à une base nucléique. Ces bases sont au nombre de quatre: l'adénine (notée A), la thymine (notée T), la cytosine (notée C) et la guanine (notée G).

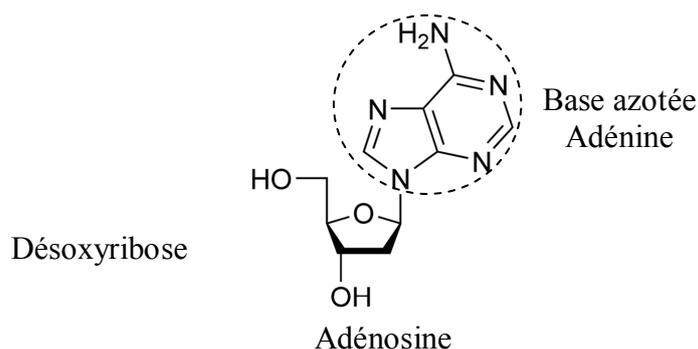


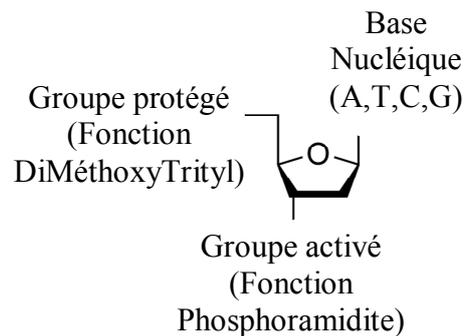
Figure V.39 : Exemple de nucléotide.

L'appariement des deux brins formant l'ADN est un phénomène de reconnaissance moléculaire nommée hybridation et apparaissant car les nucléotides sont complémentaires deux à deux (A/T et G/C). Des méthodes de synthèse de brins d'ADN unitaires, alors nommés

oligonucléotides, ont été développées et ont permis la naissance de la technologie des biopuces à ADN. Le principe général de ces biopuces est le suivant : (i) des sondes oligonucléotides connues sont greffées de manière covalente sur une surface solide, (ii) des brins unitaires d'ADN, dits cibles, sont mis en contact avec cette surface en phase aqueuse. L'hybridation entre les cibles et les sondes est obtenue lorsque les séquences de bases sont complémentaires. Cette hybridation est alors mesurée par différentes méthodes allant de la détection optique ([Eggers et al, 1994]) à la détection mécanique, en passant par la détection électrique ([Marchand et al, 2005]).

Les biopuces sont aujourd'hui largement utilisées dans le domaine de la biologie moléculaire, par exemple pour étudier la détection de points de mutation, d'insertion ou de suppression de gènes (les signaux générés par l'hybridation d'une cible complémentaire ou non complémentaire se différencient, même avec un seul nucléotide de différence). Afin de recueillir le maximum d'informations avec un seul test biologique, des multitudes de sondes oligonucléotides sont disposées sous la forme de matrices très denses sur la surface des biopuces. L'utilisation de ces biopuces demande de combiner plusieurs éléments différents : la puce elle-même avec ses surfaces spécifiquement conçues pour le greffage des sondes, l'appareil de synthèse permettant la fixation de ces sondes de manière localisée et contrôlée, un système d'apport de fluides pour l'hybridation des brins d'ADN, un scanner pour détecter l'hybridation et un programme évolué pour quantifier et interpréter les résultats.

Des équipements pour chacun des composants sont actuellement disponibles dans le commerce. Deux approches principales ont été utilisées pour la réalisation des matrices d'oligonucléotides : (i) synthèse chimique ex-situ, puis fixation localisée des sondes complètes, (ii) synthèse in-situ directement sur la surface des biopuces en des endroits précisément définis. La première méthode a été particulièrement développée par Rosetta® et Agilent® ([Référence 1]). Dans leur procédé, les oligonucléotides sont synthétisés à partir de la méthode dite « diméthoxytrityl blocked phosphoramidites ». Cette synthèse utilise des nucléotides de synthèse possédant tous un groupe chimique protégé et un groupe chimique activé, et s'effectue en phase liquide. Les étapes principales sont les suivantes : (a) choix d'un premier nucléotide, (b) déprotection du groupe protégé, (c) couplage de ce groupe avec le groupe activé d'un second nucléotide.



**Figure V.40 : Représentation schématique des nucléotides modifiés pour la synthèse « diméthoxytrityl blocked phosphoramidites ».**

Cette méthode est très flexible ce qui est important dans les aspects de recherches où les oligonucléotides utilisés sur les puces sont souvent modifiés.

Plusieurs approches ont été développées pour réaliser la synthèse in-situ d'oligonucléotides. La méthode développée par la société Affymetrix® ([Référence 2]) utilise des nucléotides modifiés comportant des groupements chimiques photoactivables. Une chaîne d'oligonucléotides est alors construite via des étapes successives de photoexposition. La technique de photolithographie développée pour la microélectronique permet d'exposer la surface de la puce à travers un masque avec des motifs de très faible dimension ( $\sim 5\mu\text{m}$ ). L'un des avantages de cette méthode est le nombre conséquent d'oligonucléotides différents présents sur la puce sous forme matricielle. Cependant, la faible qualité des oligonucléotides obtenus, due à la faible efficacité de chaque cycle, présente un inconvénient important. En comparaison avec la méthode de synthèse ex-situ décrite ci-dessus, les étapes de couplages sont moins efficaces et les oligonucléotides obtenus sont de moins bonne qualité.

Le laboratoire d'Electronique de Technologie de l'Information (LETI) du CEA de Grenoble a également développé un procédé pour réaliser la synthèse in situ d'oligonucléotides. Ce procédé est basé sur l'utilisation conjointe, d'une part, de la chimie «diméthoxytrityl blocked phosphoramidites» modifiée pour pouvoir être utilisée sur support solide, et d'autre part, sur la protection sélective de sites spécifiques par un film de polymère qui constitue une barrière durant le cycle de synthèse. Ce film est obtenu par dépôt, à l'aide d'un éjecteur piézoélectrique, d'une goutte d'une solution contenant le polymère dissout dans un solvant, puis évaporation dudit solvant par chauffage. Après chaque cycle de couplage de nucléotides, ce film protecteur est éliminé par une étape de rinçage dans un solvant adéquat. Au cycle de

synthèse suivant, un dépôt de polymère est effectué sur les nouveaux sites sélectionnés et les opérations décrites ci-dessus sont répétées jusqu'à obtenir la séquence désirée (figure V.41). Les résultats obtenus en laboratoire ont été avancés jusqu'à une phase industrielle par la société Yamatake® (DNA chip Gemkey) en s'appuyant sur certains résultats obtenus dans ce travail.

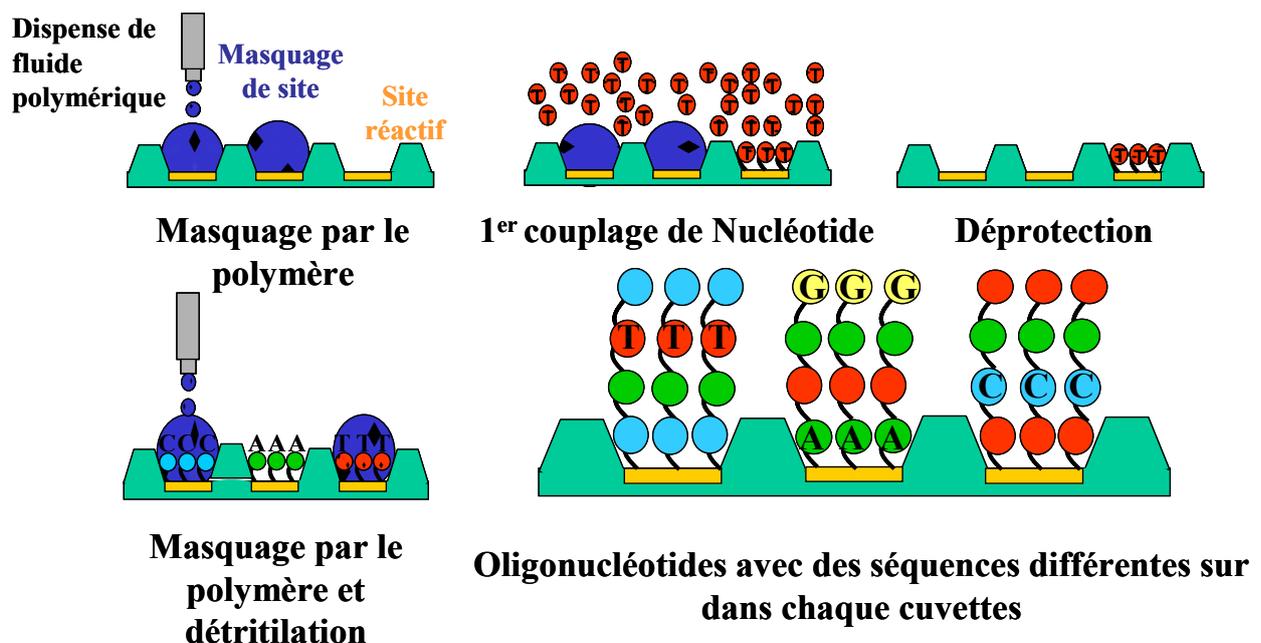


Figure V.41 : Schéma de principe du procédé de synthèse in situ développé par le CEA-LETI.

### Robot pour la phase de protection

Un prototype industriel a été développé pour réaliser automatiquement l'ensemble du procédé de synthèse, c'est-à-dire construire la chaîne d'oligonucléotides souhaitée ([Kuroiwa et al, 2003-1 et 2]). Ces chaînes sont constituées de 25 à 80 de bases soit une longueur de chaîne comprise entre 75Å et 480Å (la longueur des nucléotides dépend de la base considérée). Ce robot de synthèse réalise l'ensemble des opérations de bases nécessaires pour ajouter un nouveau nucléotide. Les étapes sont les suivantes : éjection de la solution contenant le polymère, cuisson pour former la couche protectrice, déprotection chimique (consiste à rendre les chaînes oligonucléotides réceptives pour l'ajout d'un nouveau nucléotide), couplage de ce nouveau nucléotide et enfin élimination du polymère. La figure V.42.a présente une vue d'ensemble de ce prototype. La partie basse (avec la porte transparente) regroupe les réservoirs des agents chimiques nécessaires à la synthèse et à l'élimination du polymère en fin de cycle. Cette partie basse du robot regroupe également l'ordinateur et le pilotage

électronique et électrique des différents appareillages. Directement au-dessus se situe l'écran de contrôle pour vérifier l'alignement des biopuces avant le lancement de la synthèse. Enfin, sur la partie supérieure gauche du robot se trouve le cœur du système : l'unité de masquage. Elle est constituée principalement d'un mono éjecteur piézoélectrique de goutte à la demande Microdrop® de 70µm de diamètre de buse (figure V.42.b). Ce dernier est fixé sur un système de translation x-y-z qui le déplace de la station de maintenance jusqu'à la biopuce (précision de  $\pm 1\mu\text{m}$ ). Après dépôt sur les sites choisis, la biopuce est placée sur une plaque chauffante pour évaporer le solvant et former la couche de protection. Une unité spécifique est responsable de la récupération de la biopuce et de son transport vers les différentes zones (zone de dépôt, zone d'évaporation, chambre de synthèse). La phase de couplage du nucléotide s'effectue dans la chambre de synthèse (figure V.42.c). Dès que la réaction est terminée, le film de polymère est retiré par traitement chimique. Le robot est également équipé d'optiques combinées à une méthode de visualisation par pseudo cinématographie et à un système d'enregistrement. Les étapes principales du procédé de synthèse sont :

- Dépôt manuel de la puce sur la zone appropriée
- Lancement du robot
- Déplacement sur les axes XY et reconnaissance de la position de la biopuce
- Capture automatique de la biopuce et alignement avec le système d'éjection
- Dispense du polymère
- Récupération de la biopuce qui est ensuite déposée sur la zone de cuisson
- Récupération de la biopuce qui est déposée dans la chambre de synthèse (procédé automatique)
- Fermeture automatique de la chambre et début de la synthèse
- Répétition automatique des étapes 2 et 4
- Les étapes 2 et 9 sont répétées autant de fois que nécessaire à la constitution de la chaîne oligonucléotide

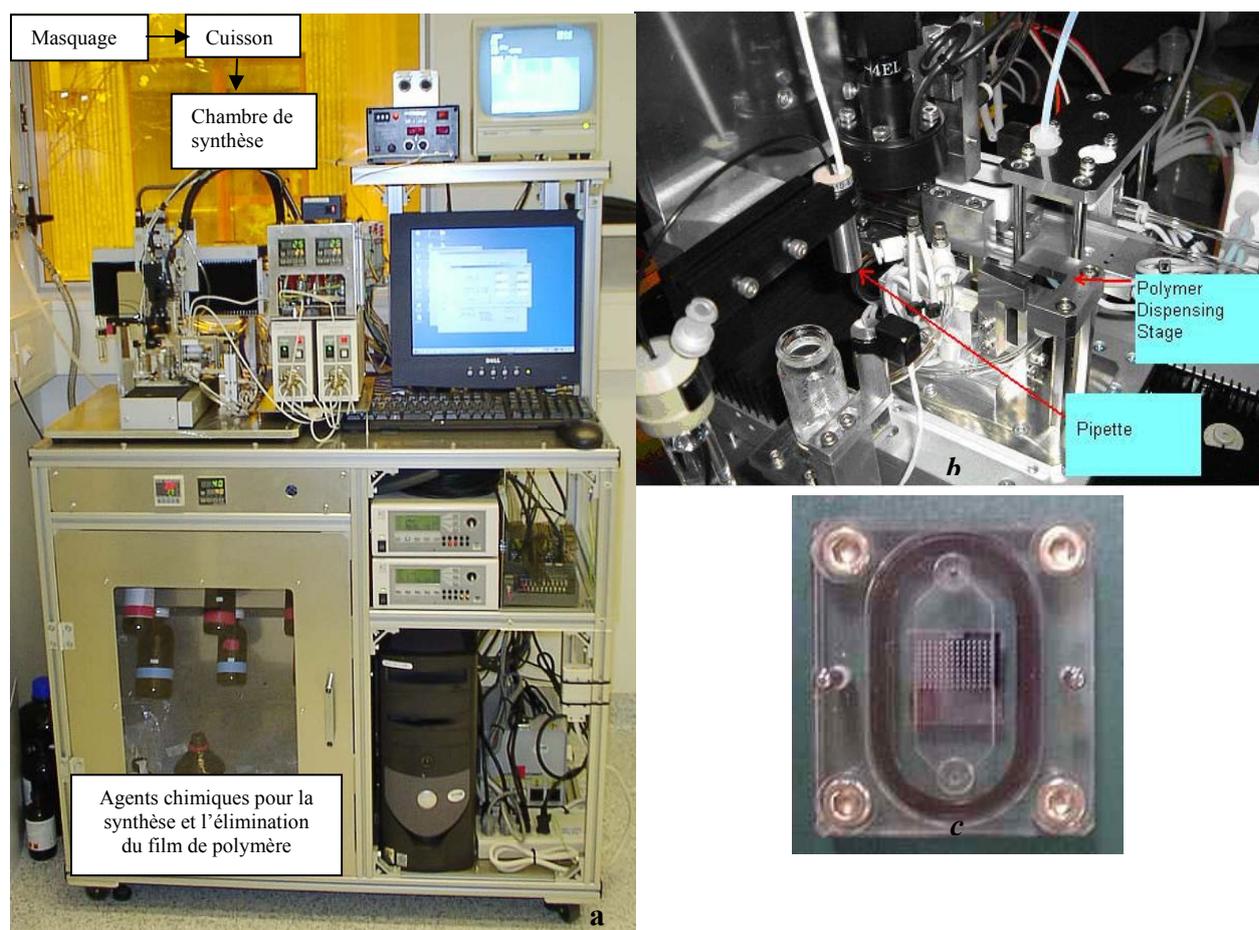


Figure V.42 : (a) Vue générale du robot de synthèse, (b) zone de synthèse et (c) biopuce dans la chambre de synthèse (1cm x 1cm).

## Réalisation des biopuces

Les schémas ci-dessous précisent brièvement le procédé technologique de fabrication des 2 types de puces utilisées ici. La surface de silicium obtenue après l'étape de gravure anisotrope est plutôt hydrophobe, car des gaz fluorés (type C<sub>4</sub>F<sub>8</sub>) sont utilisés dans le procédé de gravure. A l'opposé, l'oxyde de silicium (SiO<sub>2</sub>) forme une surface très mouillante pour les solutions aqueuses ou le DMSO. Cette couche de SiO<sub>2</sub> est essentielle pour la fonctionnalisation chimique préalable à la synthèse in situ des oligonucléotides. Les puces P1 possèdent des cuvettes dont toutes les surfaces (parois verticales et fond) sont très mouillantes. A l'inverse, les cuvettes sur les puces P2 auront des murs plutôt non mouillants, tandis que le fond restera mouillant. Ce dernier type de puces a été spécialement développé pour ce caractère hétérogène en terme de mouillabilité. D'autre part, l'absence de couche de

SiO<sub>2</sub> sur la surface des puces permet de localiser la fonctionnalisation chimique uniquement au fond des cuvettes.

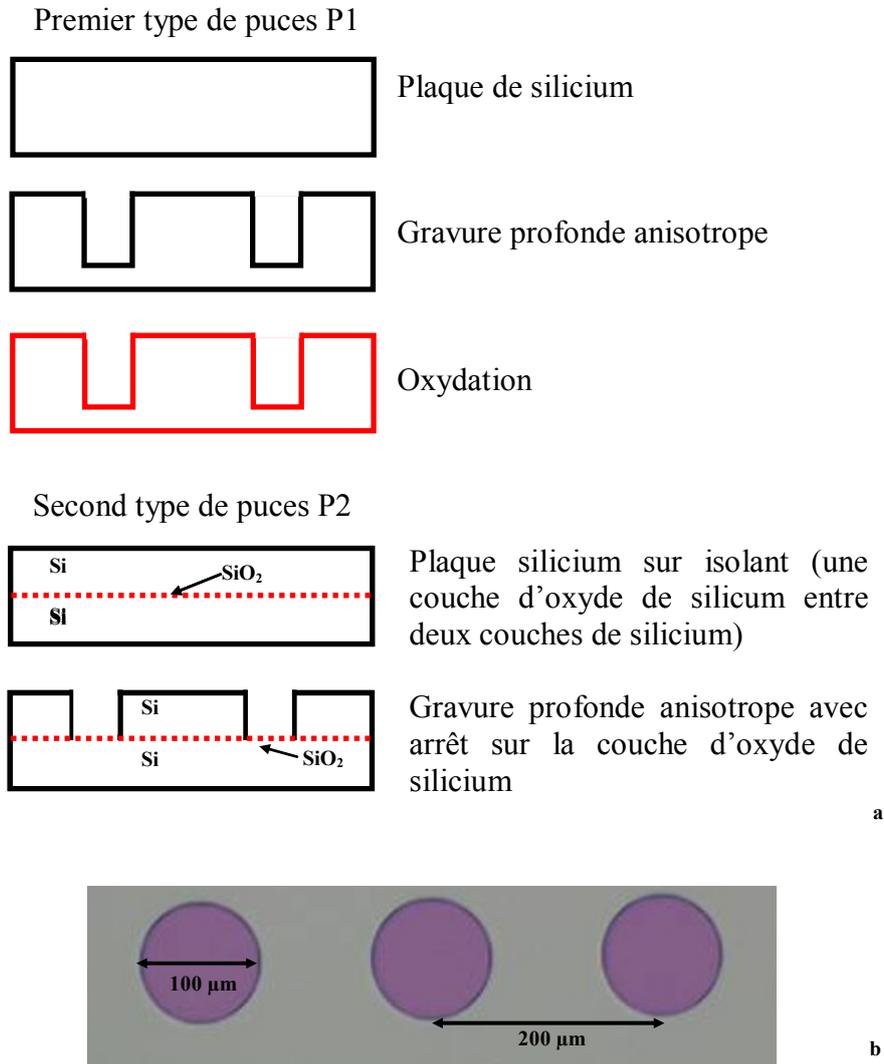


Figure V.43 : (a) Procédé technologique de réalisation des puces et (b) exemple de biopuce (profondeur : de 5 à 20μm).

L'angle de contact de ces surfaces non mouillantes avec l'eau est voisin de 100°, tandis qu'il est proche de 50° pour le SiO<sub>2</sub>.

Des surface planes de silicium comportant deux types de fonctionnalisation chimique ont aussi été réalisées afin d'étudier plus finement le comportement des gouttes sur des surfaces modèles. Ces surfaces possèdent un angle de contact avec l'eau distillée d'environ 90° dans un cas (surface S1) et de 50° dans l'autres cas (surface S2).

## Formation du film protecteur

La formation du film de polymère dépend de plusieurs paramètres et en particulier de la quantité de polymère (donc de la concentration et du volume de fluide éjecté), de la surface à protéger et de la mouillabilité des surfaces utilisées. Cependant, le film de polymère n'apparaît qu'après la phase d'évaporation du solvant. Le choix du polymère et les mécanismes d'évaporation vont conditionner la forme de ce film

## Volume des gouttes

La quantité de polymère déposée par une goutte sur la surface est un élément capital pour la formation du film de protection. Cette valeur est dépendante à la fois de la concentration massique en polymère dans la solution éjectée et de la taille des gouttes formées. Pour ce dernier élément, une mesure optique directe est difficile et peu précise (sur le robot), aussi la mesure de diamètre s'effectue à partir de la pesée de 10000 gouttes. L'hypothèse que les densités du polymère et du solvant sont proches est faite et, pour le calcul, nous utilisons uniquement la masse volumique du solvant.

La mesure de l'épaisseur du film protecteur de polymère dans les cuvettes est obtenue par comparaison entre leurs profondeurs initiales et leurs profondeurs après évaporation. Les deux mesures sont effectuées par un profilomètre 2 dimensions TENCOR Alphastep 500 ®.

## Choix du polymère

Comme nous l'avons précisé auparavant, le procédé consiste à déposer un film de polymère protecteur sur une surface de silicium comportant des puits (ou cuvettes) fonctionnalisés. Cette protection permet de sélectionner précisément quel nucléotide est fixé et dans quelles cuvettes. Ce film est éliminé après chaque cycle de synthèse ou, en fonction des ses propriétés, après la phase de détritulation. Cette élimination peut être incluse dans le procédé global de synthèse ou faire l'objet d'une étape particulière en utilisant un solvant compatible avec la procédure expérimentale.

Le choix du polymère doit tenir compte de l'ensemble des étapes comprises dans la synthèse. Le dichlorométhane ( $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ ), l'acétonitrile ( $\text{CH}_3\text{CN}$ ) et le tétrahydrofurane (THF) sont les trois solvants utilisés dans la synthèse et auxquels le couche protectrice de polymère doit résister. De plus, le polymère ne doit pas modifier la mouillabilité des sites sur lesquels il a été

déposé. Le tableau V.2 regroupe les différents polymères sélectionnés pour entrer dans le procédé de synthèse.

Polymer	CH <sub>2</sub> Cl <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub> CN	Etapes de protection
PolyVinylAlcohol	Insoluble	Insoluble	All
PolyStyrene	Soluble	Insoluble	Coupling
PolyvinylCarbazole	Soluble	Insoluble	Coupling
PolyImide XU 5218	Soluble	Insoluble	Coupling
PolyHydroxyStyrene	Insoluble	Soluble	Detritylation
Photoresist XP 8843	Insoluble	Soluble	Detritylation
PolyEthyleneOxide	Soluble	Soluble	Aucune

**Tableau V.2 : solubilité des polymère vis-à-vis des solvants utilisés dans la synthèse.**

Deux polymères sont retenus, le PolyVinylAcool (PVA) pour être insoluble dans les trois solvants et le PolyHydroxyStyrene (PHS) pour sa forte solubilité dans l'acétonitrile. La forte viscosité élongationnelle du PVA rend son éjection difficile, instable et des filaments très longs sont observables. Le PHS est donc retenu comme le polymère utilisé pour la phase de protection des cycles de synthèse ([Kuroiwa et al, 2003-1]).

## Évaporation

Suite à l'éjection du fluide polymérique sur les sites fonctionnalisés, la biopuce est chauffée durant plusieurs minutes pour évaporer le solvant. A la fin de cette cuisson, il ne reste plus sur la surface qu'un film de polymère. Le succès de l'opération de protection est directement lié à l'épaisseur et la forme du film obtenu (des essais ont montré qu'à partir de 0.5µm, cette protection était efficace). Le caractère tridimensionnel des sites mouillants complexifie le problème, notamment pour l'évaporation. De plus, les parois des cuvettes n'ont pas nécessairement la même mouillabilité que la surface supérieure de la biopuce et/ou le fond de la cuvette.

L'observation à l'intérieur de la cuvette étant impossible, l'effet de la mouillabilité de la surface sur la forme du film de polymère est tout d'abord étudié sur surface plane.

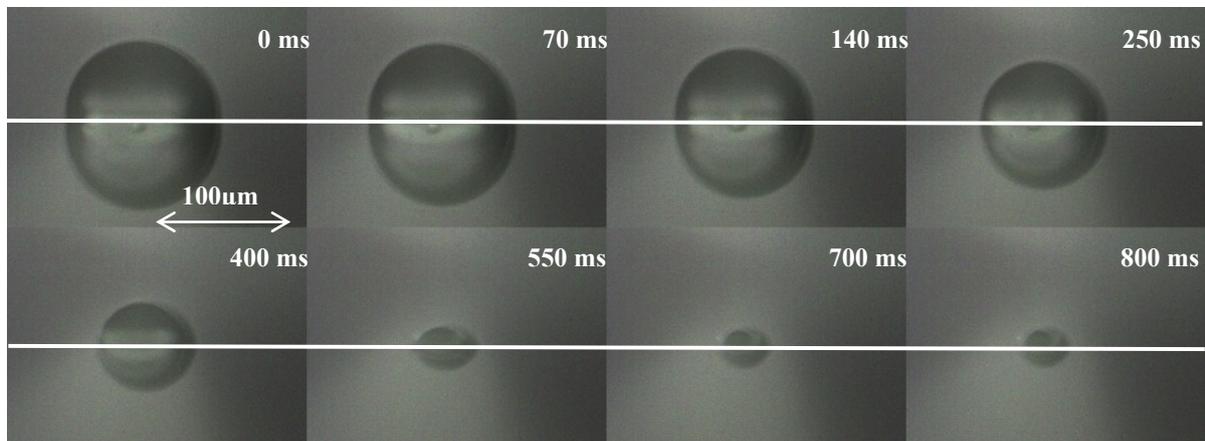
Le mécanisme d'évaporation se traduit par une perte de masse du solvant et le temps caractéristique de ce mécanisme est défini par :

$$t_{\text{évap}} = \frac{R_0^2 \rho L}{k \Delta T} \quad (\text{V.22})$$

où  $\rho$  est la densité du fluide,  $L$  est la chaleur latente de vaporisation,  $R_0$  est le rayon de la goutte sur la surface,  $k$  la conductivité thermique et  $\Delta T$  est l'écart de température entre le liquide et la surface.

La comparaison des temps caractéristiques des deux phénomènes prépondérants (impact et évaporation) montre que  $t_i \ll t_{\text{évap}}$  (dans le cas d'une microgoutte d'eau distillée de  $70\mu\text{m}$  de diamètre à  $25^\circ\text{C}$  impactant sur une surface à  $60^\circ\text{C}$ , le temps d'évaporation théorique est de l'ordre de  $250\text{ms}$  contre quelques dizaines de microsecondes pour le temps caractéristique de l'impact) ; les deux mécanismes peuvent donc être étudiés séparément.

Durant l'évaporation d'une goutte sur une surface plane, elle reste sous la forme d'une sphère tronquée mais avec des modifications au niveau du diamètre et de l'angle de contact. Sur un substrat non mouillant, l'évaporation se déroule à angle de contact constant et à diamètre de contact variable au cours du temps (figure V.44).



**Figure V.44 : Evaporation d'une microgoutte d'eau distillée sur une surface hydrophobe S1 chauffée à  $60^\circ\text{C}$  ( $\theta_{\text{eq}} = 90^\circ\text{C}$ )**

En opposition, sur un substrat mouillant, l'évaporation s'effectue à diamètre de contact constant et à angle de contact variable au cours du temps (figure V.45). Dans ce dernier cas, le diamètre n'évolue pas tant que l'angle de contact est supérieur à l'angle de reculée. A cet instant, le diamètre de la goutte diminue brutalement puis l'angle de contact recommence à décroître jusqu'à ce qu'il atteigne à nouveau l'angle de reculée (effet « stick and slip »). Ce

mécanisme se reproduit jusqu'à la disparition complète de la goutte (figure V.45). Remarquons que le temps d'évaporation est deux fois plus important environ sur la surface à  $\theta_{\text{éq}} = 90^\circ$  par rapport à la surface à  $\theta_{\text{éq}} = 50^\circ$ .

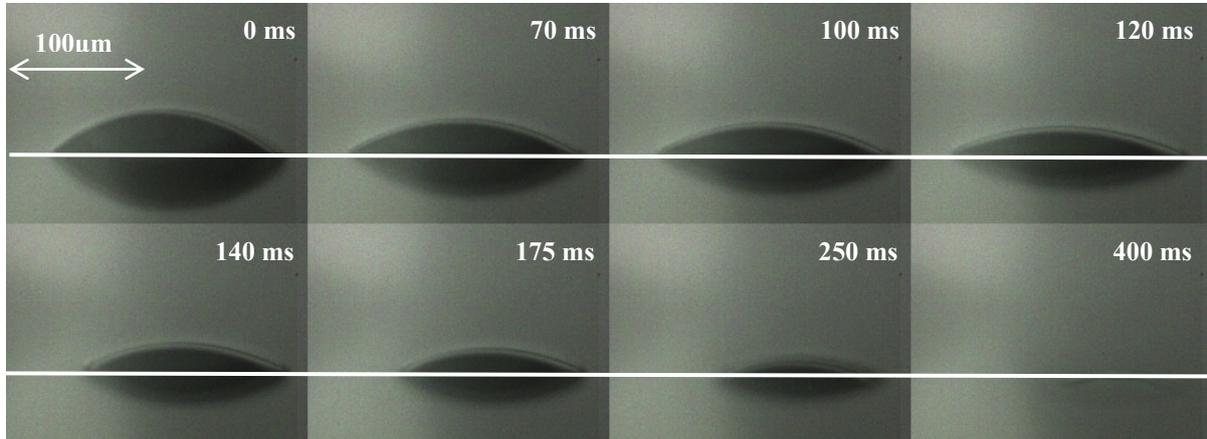


Figure V.45 : Evaporation d'une microgoutte d'eau distillée sur une surface hydrophile S2 chauffée à  $60^\circ\text{C}$  ( $\theta_{\text{éq}} = 50^\circ\text{C}$ )

Donc, la mouillabilité de la surface contrôle la forme de la goutte lors de l'évaporation. En extrapolant ces résultats au cas de la cuvette, il est possible de prévoir le comportement du film de fluide. Dans le cas d'une paroi mouillante, la ligne triple ne se déplace que très peu (voire pas du tout) et une grande partie du polymère se retrouve sur les parois latérales. En revanche, si les parois sont plutôt non mouillantes, nous pouvons penser que la ligne de contact se déplacera vers le fond de la cuvette au fur et à mesure de la diminution du niveau du fluide en gardant une interface parallèle au fond de la cuvette (figure V.46).

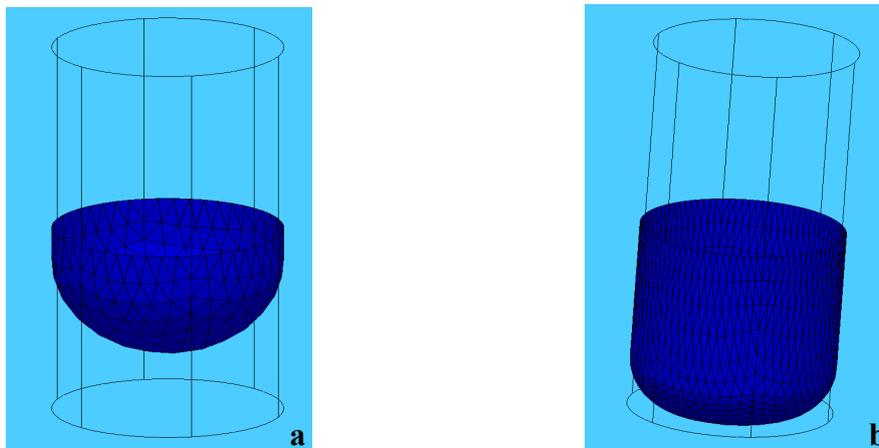


Figure V.46 : Forme de l'interface dans la cuvette, après évaporation du solvant à hauteur de (a) 50% et (b) 90%. (images obtenues à partir de « surface evolver »).

Le problème de l'évaporation dans la cuvette est relativement éloigné de celui de la goutte sur une surface plane. La surface libre a une forme différente de celle d'une sphère tronquée. Rien ne montre que dans le cas de cuvettes avec des parois non mouillantes, le film de fluide se déplace totalement vers le fond de la cuvette et sans laisser de polymère sur les parois. Pour les cuvettes mouillantes, la surface est composée de silicium recouvert d'une couche d'oxyde de silicium d'épaisseur contrôlée. Cette surface est très fortement mouillante pour le DMSO ( $\theta_r < 5^\circ$ ) ce qui conforte l'hypothèse d'un déplacement faible de la ligne de contact.

Enfin, un dernier problème parasite et prépondérant intervient et accentue la différence entre l'évaporation d'une goutte sur surface plane et celle d'une goutte dans une cuvette. Pour que l'évaporation ait lieu, il est impératif que la concentration du solvant sous sa forme gazeuse soit inférieure à la concentration de saturation au niveau de la surface libre (surface d'évaporation). Dans le cas d'une goutte, la zone de chauffage se situe sous la goutte et l'évaporation est maximale au niveau de la ligne de contact ([Frassy et al, 2006], figure V.47).

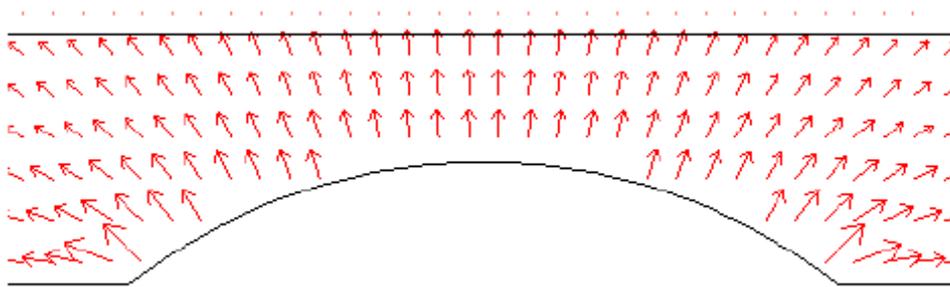


Figure V.47 : Taux d'évaporation à proximité de la goutte, ce taux est traduit par la longueur des flèches (extrait de [Frassy et al, 2006]).

Ceci explique en partie le temps d'évaporation supérieur dans le cas de la surface non mouillante (saturation plus rapide au niveau de la ligne de contact). Dans le cas de la cuvette, le polymère va s'accuser sur le pourtour de la zone mouillable vers les parois et former une couronne ([Ozawa et al, 2005; Mori & Zaitso, 2004]).

### Forme du film de polymère : test sur biopuce

La protection du site est efficace à partir d'une épaisseur minimale de  $0.5\mu\text{m}$  pour le film de polymère. Nous avons donc testé les deux types de cuvettes P1 et P2 (figure V.43). Les

premiers puits sont fabriqués dans une plaque de silicium qui est ensuite oxydée sur le fond et les parois pour former de l'oxyde de silicium  $\text{SiO}_2$ . L'épaisseur d'oxyde est contrôlée et représente plusieurs centaines de nanomètres. Dans ces conditions, toute la biopuce est mouillante vis-à-vis de l'eau et du DMSO ( $\theta_{\text{éq}} < 10^\circ$ ). Par ailleurs, la faible dénivellation entre le fond et la surface de la cuvette (20 $\mu\text{m}$  environ) ne suffit pas à empêcher le fluide de remonter le long des parois et de s'étaler sur l'ensemble de la surface. La position de la goutte déposée doit donc être bien contrôlée pour éviter la pollution de sites autres que celui visé. Le second type de puits est fabriqué à partir de plaque SOI (Silicon On Insulator). Comme nous l'avons vu précédemment, le procédé de gravure permet d'avoir une couche d'oxyde en fond de puits de quelques centaines de nanomètres et des murs en silicium avec un dépôt de matériau hydrophobe au cours de la fabrication. Ce matériau n'est pas retiré et forme avec le DMSO un angle de contact d'environ  $70^\circ$ .

### Protocole expérimental

A l'aide d'un éjecteur Microdrop MDK 140, nous avons éjecté un mélange de DMSO et de PHS à une concentration de 5% en masse (diamètre en vol des gouttes : 56 $\mu\text{m}$ ). La protection efficace d'un site nécessite très souvent plusieurs gouttes ; nous nous trouvons dans le cas de l'impact de goutte sur un film de liquide ([Santiago-Rosanne et al, 2001]). La limite est fixée à cette concentration pour des raisons de reproductibilité et de stabilité de l'éjection. Des puces de chaque type de cuvettes sont utilisées et ces dernières ont un diamètre de 150 $\mu\text{m}$ . Le dépôt est réalisé sur le dispositif expérimental présenté précédemment. Après dépôt, chaque échantillon est placé sur une plaque chauffante à  $80^\circ\text{C}$  pendant quelques minutes. Cette température n'est pas destructrice pour les brins d'oligonucléotides qui résistent jusqu'à  $120^\circ\text{C}$ . Néanmoins la répétition des cycles et la durée en temps de la synthèse peuvent altérer la qualité des brins. Avant chaque test de protection, les puces sont nettoyées sous agitation dans un bain d'acétone, puis d'éthanol, rincées à l'eau distillée et enfin séchées sous azote.

Dans un premier temps, nous allons déterminer quel type de substrat est le plus adéquat pour réaliser la protection. Les premiers impacts ont été faits sur un substrat type 1 comportant des puits d'une profondeur de 5 $\mu\text{m}$ . De manière générale, sur ces surfaces où l'étalement est très prononcé, la profondeur du puits ne suffit pas à confiner le liquide qui peut alors contaminer les cuvettes environnantes. Suite à l'évaporation, une quantité non négligeable du polymère se trouve hors des puits. La seconde conséquence est une faible épaisseur du film de polymère (inférieur à 0.1 $\mu\text{m}$ ) insuffisante en terme de protection.

De la même manière, des tests sur des biopuces de profondeur  $20\mu\text{m}$  et avec du matériau hydrophobe sur les parois ont été réalisés. Dans cette configuration, une cuvette peut contenir jusqu'à 3 gouttes avant débordement. La visualisation au microscope montre un centrage parfait et une très bonne reproductibilité du procédé. Toutefois, les franges d'interférences montrent, tout comme sur les surfaces très mouillantes, une épaisseur de polymère variable (figure V.48). La zone centrale de la cuvette est néanmoins mieux recouverte et aucun débordement n'est observable.

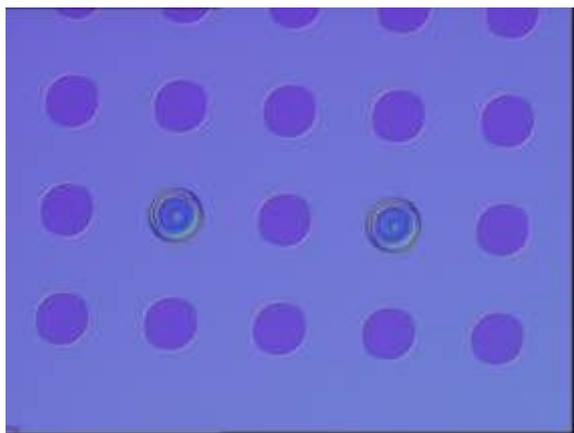


Figure V.48 : Une goutte de DMSO + 5% de PHS sur une biopuce de type 1, image au microscope.

Bien que l'intégralité du liquide reste confinée dans la cuvette, les mesures d'épaisseur de polymère au centre des cuvettes ne sont pas en accord avec les prévisions. En effet, en considérant que le film a la forme d'une sphère tronquée ou même d'un cylindre, ces prédictions sont très éloignées des mesures.

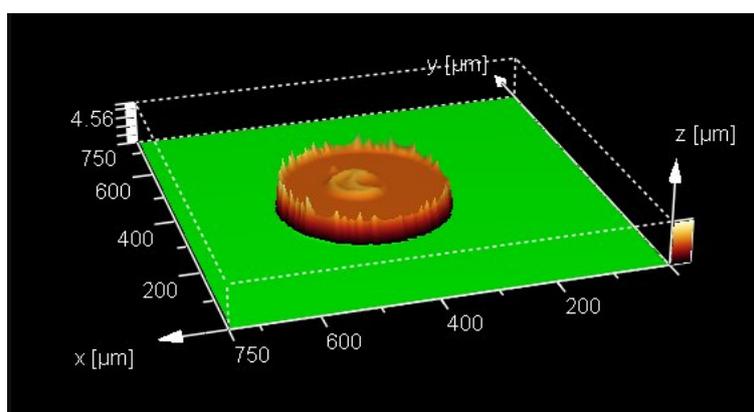
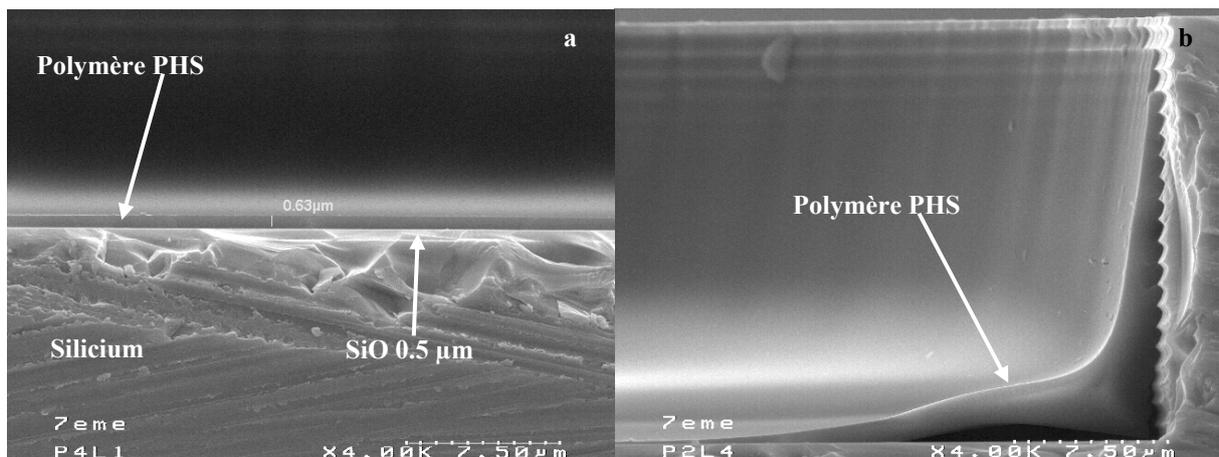


Figure V.49 : Image au microscope confocale LEICA® TCS-SP2 d'une cuvette après cycle de un masquage

Une mesure par microscopie confocale (Système LEICA® TCS-SP2) suite à une expérience de dépôt permet de visualiser la forme en 3D du film de polymère (un colorant fluorescent a été ajouté à la solution de polymère pour améliorer le signal). Le dépôt obtenu est non uniforme et fortement localisé au niveau des parois ([Kuroiwa et al, 2003], figure V.49).

Une observation au microscope électronique à balayage Philips XL 40 permet également d'expliquer l'écart entre la théorie et l'expérience (les cuvettes ont été découpées au centre des puits par une micro scie). Nous distinguons avec précision sur la figure V.50 les écarts à la fois sur la forme et l'épaisseur du film de polymère pour les deux types de biopuces. Dans chacun des cas, on constate que la majorité du polymère est localisé dans les coins et sur les parois des cuvettes et non pas au fond du puits (figure V.50.a et V.50.b).

Des mesures sur les biopuces hydrophiles (type 1) et hydrophobes (type 2) donnent une épaisseur maximale au centre des cuvettes de respectivement  $0.1\mu\text{m}$  et  $0.63\mu\text{m}$ . Dans ce second cas, nous observons également un dépôt largement prépondérant sur les parois (figure V.50.a et V.50.b).



**Figure V.50 : Image au microscope électronique à balayage Philips XL 40 d'une cuvette P2 (avec matériau hydrophobe sur les parois) dans laquelle deux gouttes de DMSO + 5% de PHS ont été déposées. Visualisation (a) au centre et (b) au bord de la cuvette.**

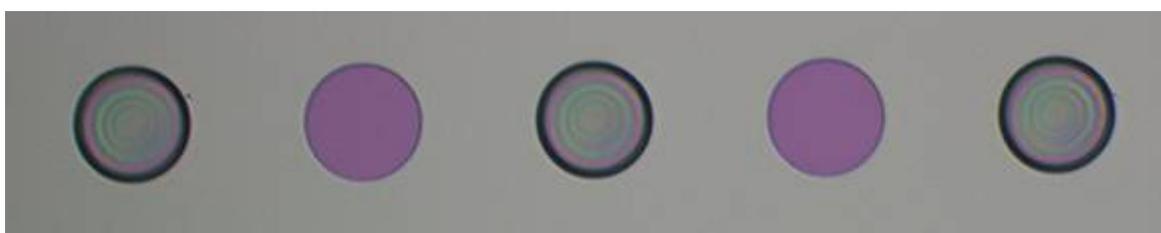
Les résultats présentés ici sont en parfait accord avec des travaux antérieurs à partir de gouttes plus petites ( $35\mu\text{m}$  de diamètre). En particulier, la forme du film, le volume de fluide, la concentration en polymère et l'épaisseur au centre du puits sont très proches ([Rapport interne CEA-LETI]).

### Volume de polymère et température

Le procédé de gravure en déposant un matériau hydrophobe sur les parois améliore de manière significative le procédé de protection des sites de synthèse d'oligonucléotides. Par la suite, nous utiliserons uniquement ce type de biopuce.

L'amélioration de la protection nécessite l'augmentation de l'épaisseur de polymère. Pour ce faire, deux procédés sont envisageables. Le premier consiste à augmenter directement sa quantité dans la solution mère. Cela a un effet néfaste sur l'éjectabilité qui devient impossible avec le Microdrop MDK 140® à partir d'une concentration de 7% (éjection stable à 5%). La deuxième méthode est celle que nous utiliserons. Elle consiste à augmenter le volume de fluide directement dans les cuvettes en tenant compte du volume maximum admissible par ces dernières. Elles peuvent contenir au maximum jusqu'à 3 gouttes (débordement à la 4<sup>ème</sup>), ce qui correspond à multiplier par trois la quantité de polymère. Il est utile de remarquer ici que le mécanisme de superposition de gouttes est très proche des mécanismes de coalescence axisymétrique présentés dans la première partie de ce chapitre. L'étude précédente et les résultats obtenus sont utilisables pour ce procédé.

Nous avons comparé trois puces identiques mais ayant subi un traitement chimique différent avant la phase de protection à savoir sans traitement, rinçage acétone/Ethanol/EDi et activation Brown. L'intérêt de ce nettoyage est d'éprouver la résistance du matériau hydrophobe déposé sur les parois. Sur chacune de ces biopuces, nous avons déposé 1, 2 et 3 gouttes. Enfin, une protection en deux étapes est envisagée, i.e. une double phase de dépôt / cuisson de 3 gouttes. Dans chaque cas, une dizaine de cuvettes sont testées et les résultats sont regroupés dans le tableau V.3.



**Figure V.51 : Image au microscope d'une biopuce sur laquelle deux gouttes de DMSO + 5% de PHS ont été déposées**

L'augmentation de la quantité de polymère améliore la qualité de la protection. Les franges d'interférences visibles au microscope sont d'autant plus resserrées que la quantité de polymère est importante. Cela signifie que la couche de polymère obtenue après évaporation

du solvant a une pente plus prononcée (figure V.51). Par suite, la couche de polymère au centre de la cuvette est plus importante.

Comme précédemment, les mesures d'épaisseur sont réalisées à l'aide du profilomètre TENCOR AlfaStep 500, par différenciation de la profondeur des cuvettes avant et après le processus de protection. Les résultats sont donnés dans le tableau V.3.

Substrat	Traitement Chimique	Nombre de gouttes déposées	Hauteur moyenne au centre ( $\mu\text{m}$ )	Ecart type ( $\mu\text{m}$ )
Substrat 1	Air ambiant	1	0.155	0.043
Substrat 2	Acétone, éthanol et eau distillée	2	0.055	0.05
Substrat 2	Acétone, éthanol et eau distillée	3	0.02	0.04
Substrat 2	Brown	2	0.685	0.085
Substrat 2	Air ambiant	1	0.394	0.026
Substrat 2	Air ambiant	2	0.684	0.027
Substrat 2	Air ambiant	3	0.71	0.03
Substrat 2	Air ambiant	2x3	0.4625	0.052

**Tableau V.3 : Hauteur ( $\mu\text{m}$ ) de polymère au centre des puits sur plusieurs substrats différents et pour différentes quantités de fluide.**

Les dépôts de 2 ou de 3 gouttes de  $56\mu\text{m}$  de diamètre donnent une épaisseur de polymère comparable. De plus, l'épaisseur obtenue avec deux gouttes ( $0,65\ \mu\text{m}$  environ) excède la hauteur minimum requise de protection de l'ADN fixée à  $0,5\ \mu\text{m}$  lors des études précédentes. Deux gouttes sont donc suffisantes pour protéger efficacement la zone de synthèse. Le dépôt successif de trois gouttes avec cuisson entre deux dépôts diminue l'épaisseur du film de polymère. Cela peut s'expliquer par le fait qu'une partie du polymère se dépose quand même sur les parois (le fluide remplit entièrement le puits) rendant le matériau hydrophobe inopérant. De plus, lors du deuxième dépôt, une partie du polymère doit se re-dissoudre dans le DMSO et se re-étaler. La concentration en polymère est augmentée artificiellement dans le

fluide ce qui n'a pas d'influence sur la forme de l'interface liquide lors de l'évaporation. La couche initiale de polymère modifie l'interaction liquide solide entre les nouvelles gouttes et les cuvettes (mouillabilité augmentée donc influence moindre du matériau non mouillant). Les dépôts successifs ne constituent pas une alternative intéressante.

Enfin, le matériau hydrophobe est sensible au traitement chimique que subit la biopuce. Le protocole de rinçage acétone, éthanol et eau distillée semble le détériorer (centre du puits mal protégé pour un dépôt de 2 ou 3 gouttes).

Le dernier paramètre de ce problème concerne l'évaporation et en particulier la température à laquelle elle s'effectue. Les oligonucléotides résistent jusqu'à une température de 120°C. Aussi, l'éjection peut se faire sur une surface maintenue à une température donnée (entre la température ambiante et 100°C).

L'étude de l'effet de la température de la biopuce sur la formation du film protecteur est réalisée en comparant deux méthodes de chauffage. Dans un des cas, la biopuce est maintenue à 100°C alors que dans l'autre, les gouttes sont déposées dans les puits et ensuite le chauffage est effectué. Les microgouttes mesurent 64µm de diamètre (concentration en polymère : 5% en masse) et sont éjectées dans un puits de 300µm de diamètre.

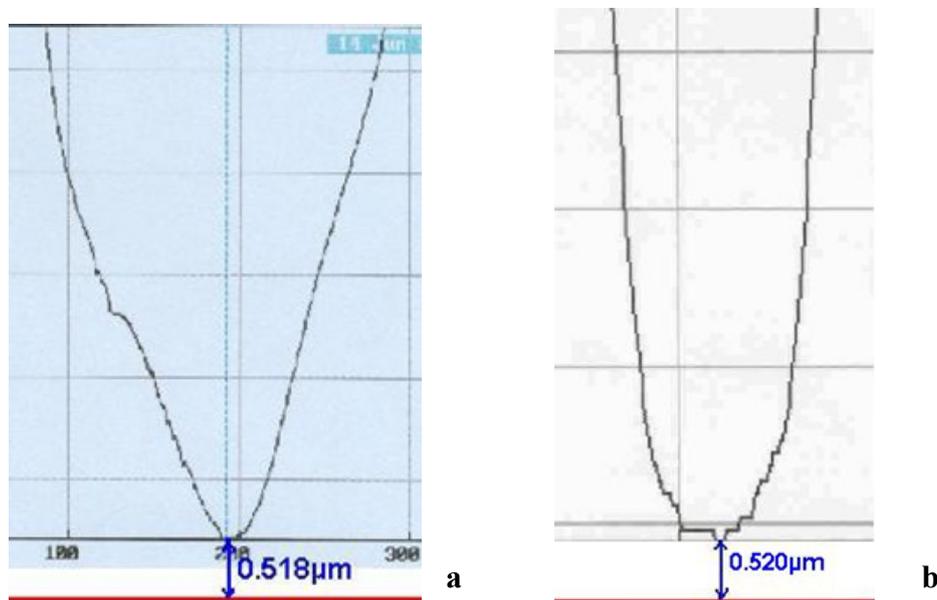


Figure V.52 : Forme et épaisseur du film de polymère obtenue à partir d'une solution de DMSO + 5% de PHS dans un puits de 300µm de diamètre à (a) 20°C avec 25 gouttes et (b) 100°C avec 23 gouttes, diamètre des gouttes : 65µm, la ligne rouge représente le fond du puit.

Expérimentalement, l'écart en terme de nombre de gouttes éjectées pour atteindre la valeur seuil de  $0.5\mu\text{m}$  n'est pas significatif. Pour un film sous la forme d'un cylindre, 5 gouttes seraient suffisantes pour ce seuil. Expérimentalement, la quantité minimale de liquide à déposer est 5 fois plus importante, soit 25 gouttes environ. Ces résultats étaient attendus sachant que la limite de  $100^\circ\text{C}$  fixée pour les nucléotides ne permet pas d'avoir un temps d'évaporation  $t_{\text{év}}$  comparable au temps d'étalement  $t_i$ . De même, les observations au microscope électronique à balayage montrent un dépôt dont la forme est très éloignée d'un cylindre.

D'après les études qui viennent d'être conduites, il faut envisager d'autres méthodes avec pour objectif de maîtriser la forme du film et améliorer la protection. Des mesures de profilométrie montrent cependant, que l'épaisseur au centre croît linéairement avec le nombre de microgouttes déposées (figure V.52). Rappelons que l'épaisseur obtenue lors de nos essais est suffisante pour obtenir une bonne protection. Cela justifie les tests de synthèse *in situ* que nous présentons dans le paragraphe suivant.

## Résultat de synthèse

Le test de la validité de la méthode de synthèse s'effectue sur une biopuce carrée de  $1\text{cm}$  de côté et dont les puits ont un diamètre de  $300\mu\text{m}$  et une profondeur de  $10\mu\text{m}$ . 4 zones identiques de 6 lignes de 10 puits sont utilisées (figure V.53). Sur la première ligne, une séquence de 14 mers (ou nucléotides) est synthétisée. Sur les 4 lignes suivantes, une séquence quasi identique de 15 mers est synthétisée. Chacune des séquences de 15 mers se différencie des 3 autres par une base A, C, T ou G située au milieu de la séquence. Sur la dernière ligne se trouve une séquence de 18 mers. Enfin, l'hybridation est réalisée et avec pour cible le brin complémentaire de 15 mers avec une base C au milieu de la séquence.

Dans cet exemple, la séquence complémentaire est donc celle portant la base G en son centre. Une lecture par fluorescence montre que la séquence complémentaire est effectivement celle dont l'intensité est la plus importante. Par ailleurs, ceci est observable sur les 4 blocs qui composent la biopuce. La méthode de masquage par dépôt de polymère permet une discrimination fine jusqu'à une erreur d'une base dans une séquence d'oligonucléotides de 15 mers.

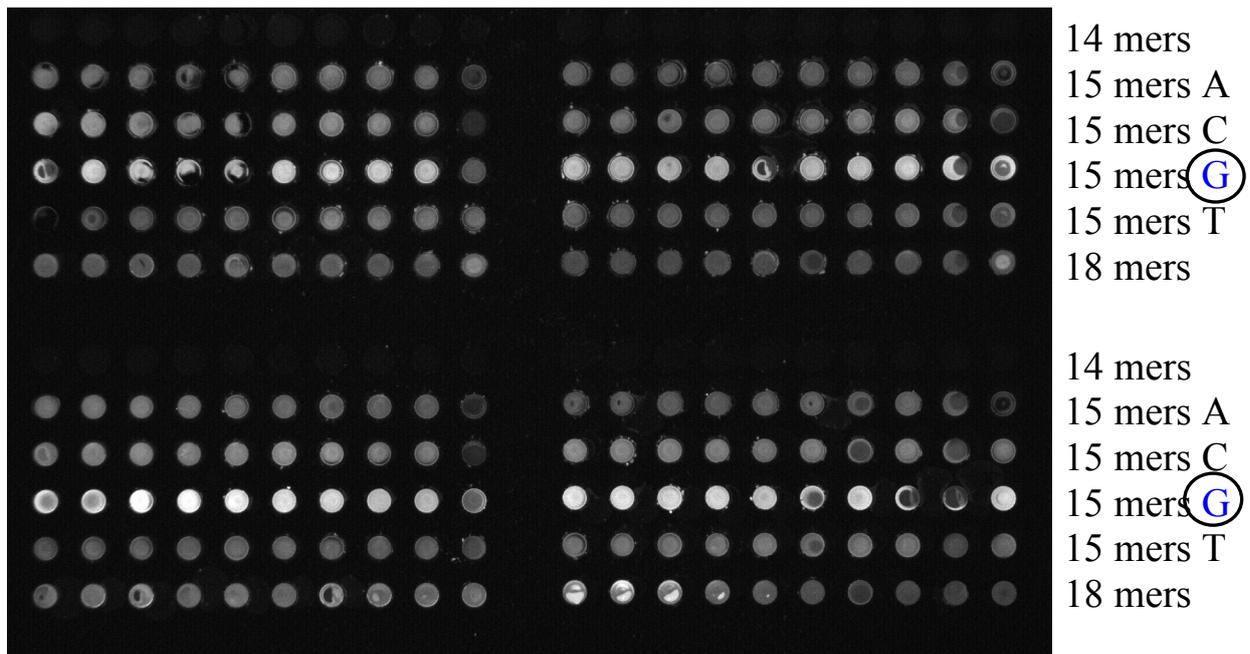


Figure V.53 : Une biopuce avec 4 blocs identiques de 6 lignes comportant chacune une séquence différente

L'hybridation est un phénomène complexe qui n'a pas été étudié en détail ici. Néanmoins, l'utilisation de cibles modèles a permis de valider le concept de la synthèse in situ. Par ailleurs, l'effet de la concentration en cibles modèles a également été étudié et un effet de saturation des sites fonctionnalisés (à partir d'une concentration limite, le signal de fluorescence n'augmente plus) est observé.

Des études complémentaires avec des cibles biologiques réelles sont encore à réaliser, ainsi que des travaux sur les biopuces elles mêmes.

En conclusion, les travaux conduits pour cette étude sur la forme du film de polymère, les mécanismes d'évaporation ou encore l'influence de la mouillabilité des différentes parties des cuvettes ont largement contribué à la compréhension et à l'efficacité des biopuces. Cependant, les résultats présentés ici mettent en avant un certain nombre de limitations à l'utilisation des cuvettes pour ce procédé de synthèse in situ d'oligonucléotides. Il est nécessaire, en effet, de rechercher d'autres types de substrats pour améliorer à la fois l'efficacité des biopuces et la densité de sites fonctionnalisés sur une plaque de silicium. De la même manière, d'autres alternatives en terme de chauffage doivent également être envisagées dans ce but.

## Conclusions et perspectives

### Conclusions

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés au cas de l'impact d'une goutte suivi de dépôt. Dans un esprit de cohérence avec les applications utilisant des microgouttes et présentées dans ce travail (impression numérique et synthèse in situ d'ADN), les conditions opératoires sont restreintes à des nombres de Weber et de Reynolds respectivement inférieures à 80 et 2400. Expérimentalement, nous avons observé la présence des quatre phases distinctes dites cinématique, d'étalement, de transition et capillaire. Une cinquième phase, liée au caractère partiellement mouillant des surfaces utilisées a également été observée et comparée à un modèle de la littérature. Rappelons ici les principales conclusions de nos travaux.

L'originalité de nos travaux se situe dans l'investigation systématique de l'influence des paramètres de contrôle du phénomène d'impact et d'étalement. Ainsi, l'effet de la vitesse d'impact, du diamètre de la goutte (comparaison des macrogouttes et des microgouttes), de la tension de surface et de la viscosité des liquides ont fait l'objet d'une étude systématique.

Chaque paramètre de contrôle a été étudié indépendamment des autres (un paramètre variable et tous les autres fixes). La variation de l'altitude de chute a permis de modifier la vitesse d'impact. Une viscosité comprise entre 1mPa.s et 100mPa.s a été obtenue à partir de mélange d'eau distillée et de glycérol pour une tension de surface très proche (entre 68mN/m et 73mN/m). A l'inverse, des mélanges d'eau distillée et d'éthanol ont conduit à abaisser la tension de surface jusqu'à 30mN/m sans modification de la viscosité. La variation de diamètre initial est obtenu à partir de gouttes générées par une pompe pousse seringue équipée d'une aiguille calibrée de 150 $\mu$ m et des gouttes formées à partir d'éjecteur piézoélectrique. La gamme de diamètres s'étend donc de 2.28mm jusqu'à environ 30 $\mu$ m. De surcroît, l'influence de la mouillabilité de la surface a été isolée et quantifiée avec précision pour la première fois à notre connaissance. Pour ce faire, des surfaces industrielles, mais également des surfaces modèles, ont été utilisées. Ces dernières sont constituées de plaques de silicium chimiquement

et topographiquement modifiées (greffage de silane) permettant d'obtenir un angle d'équilibre avec de l'eau distillée allant de  $5^\circ$  jusqu'à plus de  $170^\circ$ .

Enfin, l'intégralité de ces études porte sur les quatre phases qui constituent le phénomène d'impact et d'étalement (soit 6 ordres de grandeur en temps, de la microseconde à la seconde pour les microgouttes). Nos observations ont notamment montré que la tension de surface, la viscosité, la vitesse d'impact et la mouillabilité de la surface ont une influence non linéaire sur le diamètre transitoire, la valeur du diamètre maximum ou encore l'angle de contact dynamique. En revanche, le diamètre initial ne semble pas intervenir puisque des profils et des comportements similaires entre macrogouttes et microgouttes sont observés pour des nombres sans dimensions de Weber et Reynolds proches.

### Dispositif expérimental (chapitre II)

Pour réaliser cette étude, nous avons conçu et mis en place un dispositif expérimental basé sur la combinaison d'une caméra à enregistrement rapide (plusieurs milliers d'images par seconde avec un temps d'obturation minimal de  $2\mu\text{s}$ ) et des systèmes d'illuminations particuliers. L'objectif était de maximiser la détection des interfaces et de minimiser les incertitudes de mesure. Dans le cas d'un éclairage continu, un intensificateur de lumière permet de diminuer la durée d'obturation jusqu'à  $200\text{ns}$ . Un système d'éclairage alternatif, de type lumière pulsée, conduit à la diminution de la durée d'éclairage jusqu'à  $25\text{ns}$ . Les images obtenues par l'utilisation de ces dispositifs expérimentaux montrent pour la première fois et de manière indiscutable, que les déformations de la surface libre sont similaires entre les microgouttes et les macrogouttes, pourvu que les nombres de Weber et de Reynolds soient conservés. Ainsi, nous avons montré le principe de similitude de la dynamique des gouttes de quelques dizaines de micromètres et des gouttes de quelques millimètres.

La qualité des images obtenues à partir de ces montages expérimentaux a rendu possible le développement d'algorithmes de traitement automatique d'image. En particulier, l'intégralité de la surface libre est détectée. La mesure du diamètre et de la hauteur de contact est réalisée, tout comme le suivi temporel de l'angle de contact. La mesure automatique de cette dernière grandeur est réalisée sur l'ensemble des liquides (et pas seulement pour le cas des viscosités importantes) et avec une précision de  $3^\circ$ .

### Les phases de l'impact (chapitre III)

L'impact d'une goutte de liquide sur une surface solide passe par quatre phases distinctes. Nous rappelons ici succinctement les principaux résultats sur chacune d'elle.

### *Phase cinématique*

Les résultats que nous avons obtenus lors de la première phase cinématique sont en accord avec la littérature. En particulier, le diamètre de contact, en représentation adimensionnelle, évolue comme une fonction puissance  $\frac{1}{2}$  du temps. Toutefois, cette évolution est mise en défaut lorsque la viscosité du fluide constituant la goutte devient trop importante. Nous avons montré que son effet intervenait dès la première phase de l'impact en limitant l'étalement. Cela a pour conséquence la diminution des déformations de la surface libre et la réduction du développement de la lamelle au fur et à mesure que la viscosité du liquide augmente pour des nombres de Reynolds suffisamment importants.

### *Phase d'étalement*

Dans la phase d'étalement, l'influence de la tension de surface, de la viscosité, de la vitesse d'impact et du diamètre initial de la goutte est étudiée en détail. Un intérêt particulier est porté sur l'influence de la mouillabilité de la surface et sur l'angle de contact dynamique. Pour cela, nous utilisons nos surfaces modèles de silicium ayant subies le greffage de silanes plus ou moins hydrophobes. Ainsi, et pour la première fois à notre connaissance, l'effet de l'angle de contact d'équilibre est isolé et ceci avec une rugosité variant peu (quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres). En conservation des nombres de Weber et de Reynolds d'une expérience à l'autre, cela nous a permis de quantifier l'influence de ce paramètre sur la valeur du diamètre à l'étalement maximum et sur l'évolution de l'angle de contact dynamique.

Nous montrons également que la valeur de cet angle de contact dynamique varie très peu sur la majeure partie de cette phase (avancée de la ligne de contact à angle dynamique constant, effet de plateau). En outre, pour des mouillabilités inférieures à  $140^\circ$ , l'angle de contact dynamique montre un comportement linéaire en fonction de la mouillabilité. La viscosité joue le rôle inverse ; la dépendance de la valeur du plateau à l'angle d'équilibre diminue. Elle devient même nulle pour des viscosités égales à  $100\text{mPa.s}$ . Pour des mouillabilités supérieures à  $140^\circ$ , l'angle de contact semble montrer une valeur de saturation aux alentours de  $150^\circ$ .

De plus, nos travaux mettent en évidence que les lois classiques ([Hoffman, 1975 ; Tanner, 1979 ; Shikhmurzaev, 1997 ; Sciffer, 2000]) qui lient la vitesse de la ligne de contact à l'angle de contact dynamique ne sont pas adaptées pour décrire l'évolution de l'angle de contact dynamique. En particulier, dans le cas d'une surface partiellement mouillante, ces lois sont très éloignées des résultats expérimentaux.

Concernant l'étalement maximum, nous avons, à partir de nos résultats, modifié le modèle de [Ukiwe & Kwok, 2005]. L'angle à l'étalement final ([Pasandideh-Fard et al, 1996]) ou l'angle d'avancée thermodynamique ([Ukiwe & Kwok, 2005]) est remplacé par l'angle de contact dynamique. La durée pour atteindre l'étalement maximum est également adaptée. La cohérence entre les hypothèses géométriques de la forme de la goutte durant son impact et les profils transitoires observés varie avec les conditions opératoires. Aussi, le temps d'étalement expérimental est compris entre 0.5 et 8/3 de temps caractéristique. Théoriquement, nous avons établi que ce diamètre peut être atteint à 1 fois le temps caractéristique inertiel de l'impact (soit  $D_0/U$ ). Ces deux modifications améliorent sensiblement ce modèle, notamment dans le cas d'un angle d'équilibre faible.

Enfin, pour cette phase d'étalement, nous montrons que le diamètre de contact dynamique n'évolue pas comme une fonction puissance  $\frac{1}{2}$ , contrairement à ce qui est établi dans la littérature. La valeur de cette puissance est variable avec les conditions expérimentales (donc en fonction des déformations de la goutte) et des valeurs aux alentours de 0.3 ont pu être mesurées. Ces observations sont en accord avec des simulations récentes ([Khatavkar, 2005]).

#### *Phase intermédiaire*

Dans la phase intermédiaire, la relation entre les oscillations des gouttes et la mouillabilité des surfaces a été étudiée. A partir de la fréquence d'oscillations d'une goutte dans l'air, un modèle empirique a été proposé en utilisant un coefficient dépendant de l'angle d'équilibre. Nous avons également noté un effet de saturation de cette fréquence dès lors que l'angle de contact d'équilibre est supérieur à  $60^\circ$  ; la valeur du coefficient est proche de  $\frac{4}{\pi}$ . Le

démouillage du liquide, lorsque le diamètre maximum excède le diamètre d'équilibre, a été suivi. Un accord correct a été constaté avec le modèle de [Bartolo et al, 2005] concernant le taux de rétraction maximum, mais avec un coefficient d'ajustement 23% plus petit.

Une équation est proposée pour déterminer la durée de cette phase. Les résultats ont un ordre de grandeur cohérent avec les mesures expérimentales, mais l'écart augmente rapidement avec la vitesse d'impact.

#### *Phase capillaire*

Dans la phase capillaire, nous avons montré, en utilisant à la fois des microgouttes et des macrogouttes, que l'évolution du diamètre de contact dans la phase capillaire est identique à celle obtenue lors d'un dépôt, en particulier le comportement comme une puissance du temps

prédit dans la littérature ( $1/7$  ou  $1/10$  pour les surfaces complètement mouillantes). Ceci confirme l'hypothèse selon laquelle dans la phase capillaire, la vitesse d'impact n'a aucun rôle. Un travail sur des surfaces partiellement mouillantes a mis en évidence la décroissance de l'exposant de la loi puissance (des valeurs deux à trois fois inférieures ont été mesurées) lorsque l'angle d'équilibre sur la surface augmente.

### *Simulations*

Pour terminer sur les surfaces homogènes, deux méthodes de simulation ont été mises en œuvre pour prédire le comportement des gouttes. La première méthode, dite méthode variationnelle, basée sur une géométrie fixe de sphère tronquée, permet rapidement et simplement d'obtenir l'évolution du diamètre et de la hauteur de la goutte. La seconde, dite méthode d'intégrale de frontière, permet d'obtenir l'intégralité des déformations de la surface libre lors de l'impact. Ces méthodes présentent des intérêts conséquents en termes de temps de calcul et de mise en œuvre, mais les résultats obtenus ne sont pas satisfaisants.

## Surfaces hétérogènes (chapitre IV)

### *Surface super hydrophobe*

Un travail particulier a été effectué sur l'étude de l'impact de gouttes sur des surfaces super hydrophobes et des surfaces hétérogènes. Dans le premier cas, une surface de silicium a été traitée d'un point de vue chimique puis texturée d'un point de vue topographique pour devenir super hydrophobe.

Sur cette surface, où les critères de suspension de [Extrand, 2002 ; Esxtrand, 2004] sont respectés pour une goutte d'eau distillée, nous avons pu observer que la vitesse d'impact ne permet pas de forcer le mouillage. En particulier, un rebond complet est obtenu expérimentalement pour des gouttes de 2.28mm et 150 $\mu$ m de diamètre.

### *Surface chimiquement hétérogène*

Concernant l'impact sur une surface divisée en une partie mouillante et une partie non mouillante, le liquide réagit en fonction de la nature de la surface sur laquelle il se trouve. Plus précisément, lors de l'étalement de la lamelle sur une zone de la surface hétérogène, le comportement du diamètre transitoire et de l'angle de contact est identique à celui observé sur la surface homogène de même angle d'équilibre. L'évolution des rayons et des angles de contact des parties mouillantes et non mouillantes entraîne une forte dissymétrie de la goutte.

Immédiatement après l'étalement maximum, la goutte se déplace ensuite de la partie non mouillante vers la partie mouillante par un effet de « stick and slip ».

Sur les temps longs, la dissymétrie de la goutte s'accroît encore jusqu'à obtenir une forme, en vue de dessus, différente de celle d'une ellipse et d'un cercle.

Aucun effet de la géométrie de l'hétérogénéité n'a été observé sur la vitesse de déplacement de la goutte (résultats identiques avec un site mouillant circulaire). Il en est de même pour la vitesse d'impact.

Nos résultats ont montré un excellent accord avec un modèle de la littérature basé sur l'action des forces non compensées de Young qui sont à l'origine de la vitesse constante de déplacement ([Daniel et al, 2004]).

### Applications (chapitre V)

Nous avons traité en dernier lieu deux applications du problème de l'étalement d'une goutte : l'impression numérique et la protection de site fonctionnalisé pour la synthèse in situ d'ADN.

#### *Impression numérique*

Dans le premier cas, nous avons considéré les interactions qui apparaissent lors de la coalescence axisymétrique et non axisymétrique de deux gouttes de liquide. Dans chacun de ces deux cas, une goutte est disposée sur la surface et vient ensuite être percutée par une autre goutte (à son sommet ou sur le côté). Pour ces deux configurations, tout comme dans le cas de l'impact d'une goutte seule, nous utilisons les mêmes surfaces et les mêmes mélanges d'eau distillée / glycérol et eau distillée / éthanol. Les paramètres de contrôle, qui sont la tension de surface, la viscosité, la vitesse d'impact, le diamètre initial (comparaison microgouttes et macrogouttes) et la mouillabilité de la surface, ont été étudiés en détail et indépendamment les uns des autres.

Pour la coalescence axisymétrique, plusieurs scénarios apparaissent en fonction des conditions opératoires : coalescence par traversée de la goutte au repos, coalescence avec écrasement mutuel et coalescence après rebond. Nous avons montré que la vitesse d'impact est un paramètre prépondérant. Pour une vitesse suffisante (0.8m/s pour une macrogoutte), la goutte incidente traverse la goutte au repos comme un corps dur dans un corps mou. En augmentant la vitesse jusqu'à 2m/s, une couronne de liquide se développe. Cette dernière se brise en gouttelettes sous l'action des instabilités de couronne lorsque la vitesse d'impact est supérieure à 3m/s. En revanche, pour une vitesse faible (0.22m/s) et une surface mouillante,

un écrasement apparaît. Un rebond est sur le point de se produire lorsque la coalescence intervient effectivement. La viscosité, quant à elle, a tendance à diminuer les effets d'écrasement et de rebond. Enfin, des comportements similaires dans les cas de traversée et d'écrasement mutuel ont pu être observés avec des microgouttes.

Finalement, suite à la coalescence, une phase de démouillage et / ou d'oscillations peut apparaître. Lorsque c'est effectivement le cas, des résultats similaires au cas d'une goutte seule ont été obtenus. Bien entendu dans ce cas, il faut tenir compte du doublement du volume de la goutte.

Enfin, un modèle basé sur la conservation de l'énergie a été construit pour déterminer l'évolution du diamètre de contact au cours du temps dans le cas de la traversée de la goutte au repos. Ce modèle montre un accord correct compte tenu des hypothèses géométriques effectuées.

Pour la coalescence non axisymétrique, les gouttes pouvaient être constituées d'un même liquide ou de deux liquides différents. De manière générale et quelle que soit la configuration, nous avons observé que suite à la coalescence, l'hystérésis entre angle de contact d'avancée et l'angle de contact de reculée conduit la masse de liquide à une forme d'ellipse ou de cercle. L'utilisation de deux gouttes de liquides différents a mis en avant l'influence d'un gradient de viscosité et / ou de tension de surface ; notamment, un déplacement de l'une ou l'autre des gouttes a été observé.

#### *Synthèse in situ d'oligonucléotides*

Pour l'application à la synthèse in situ d'ADN, l'objectif était de former une couche de polymère protectrice sur un site fonctionnalisé à partir du dépôt d'une microgoutte d'une solution polymérique. Pour cette application, les surfaces utilisées étaient hétérogènes puisque les microgouttes étaient éjectées dans des cuvettes. Cette géométrie particulière pose un certain nombre de problèmes puisqu'elle conditionne la forme du film de protection. La température d'évaporation du solvant ne modifie en rien cette forme ou son épaisseur. Sur ce dernier point, la concentration en polymère ou le nombre de gouttes permet d'augmenter l'épaisseur bien que la majorité du polymère se localise dans les coins du puits.

En opposition, l'utilisation de parois hydrophobes contribue à augmenter sensiblement l'épaisseur de polymère au centre du site (de 0.1 $\mu$ m à 0.6 $\mu$ m) pour obtenir une protection efficace. Ce résultat a permis de réaliser un test complet de synthèse de protection qui atteste

de la validité du procédé. Malgré tout, la tendance naturelle de ce polymère à se positionner dans les coins des sites n'a pas été résolue.

### ***Limites et perspectives***

Dans ce travail, nous avons cherché à apporter autant de réponses que possible à un problème d'une très grande complexité. Il en résulte, comme bien souvent, de plus nombreuses questions tout aussi complexes et tout aussi intéressantes. En définitive, et malgré le travail réalisé, le problème de l'impact d'une goutte sur une surface homogène ou hétérogène n'est pas réglé. Par exemple, l'angle de contact dynamique ne suit pas une loi monotone. Les interactions au niveau moléculaire doivent être prises en compte pour pouvoir traduire les effets de dissipation au niveau de la ligne de contact en fonction de la viscosité du liquide mais également de la mouillabilité de la surface.

Dans la phase capillaire, aucune description théorique ne permet de prédire exactement l'évolution du diamètre de contact en fonction des conditions opératoires.

Sur les surfaces hétérogènes d'un point de vue chimique, un travail spécifique est nécessaire pour quantifier avec exactitude l'effet de chaque paramètre. Nous pouvons par exemple nous interroger sur l'influence du gradient de mouillabilité d'une surface à l'autre ou encore quel serait l'effet si l'on conservait le gradient de mouillabilité mais en modifiant la tension de surface du liquide.

Sur les surfaces super hydrophobes, il serait intéressant de réaliser des expériences à vitesse d'impact plus importante (nos expériences se limitent à une vitesse d'impact de 1m/s) afin de voir s'il est possible de forcer le mouillage d'une telle surface.

En ce qui concerne la coalescence non axisymétrique, le paramètre de distance entre les deux gouttes à l'instant de l'impact n'a pas été étudié en détail, tout comme celui du volume de liquide en présence sur la surface. De la même manière, il semble que tous les paramètres influents n'aient pas été identifiés. En effet, lorsque l'on répète plusieurs fois la même expérience, nous n'obtenons pas systématiquement les mêmes résultats. Notamment, il semble que le déplacement d'une des deux gouttes reste du domaine aléatoire ou que tous les paramètres de contrôle du problème ne soient pas encore identifiés. Un travail précis sur ce problème est nécessaire. Pour la coalescence axisymétrique, plusieurs comportements ont été

identifiés mais ne sont pas expliqués en détail. Par ailleurs, l'influence du volume de liquide de la goutte au repos n'a pas été traitée ici.

Dans ce travail, nous avons largement mis l'accent sur l'influence de la mouillabilité de la surface. Toutefois, ce caractère est directement en relation avec la tension de surface du liquide qui peut elle-même être séparée en sa composante polaire et sa composante dispersive. Il serait particulièrement intéressant d'étudier l'influence de chacune de ces deux composantes sur la mouillabilité et sur le comportement de l'angle de contact dynamique. L'effet des rugosités, en terme de forme, de répartition ou encore de taille n'est pas encore très clair à l'heure actuelle. Sur ces points particuliers, un travail spécifique de profondeur est indispensable.

Enfin et parce qu'il faut bien terminer, des expériences de Vitesse à Image de Particules lors de l'impact et / ou du dépôt d'une goutte serait un plus significatif. Ces travaux conduiraient notamment à la connaissance précise du champ de vitesses dans la goutte en fonction des conditions expérimentales. Dans cet esprit, le dispositif combinant caméra rapide / laser 250mW modulé ultra-rapide a été réalisé. Ces travaux constitueraient un apport significatif dans la compréhension des mécanismes qui interviennent dans ce problème.

## **Annexes**

**Planches expérimentales:**

Dans cette première partie des documents annexes, nous présentons un certain nombre de planches expérimentales. Ces dernières correspondent aux principales bornes de notre domaine d'étude en terme de vitesse d'impact, de mouillabilité et viscosité. Elles ne concernent l'impact et le dépôt que de macrogouttes uniquement.

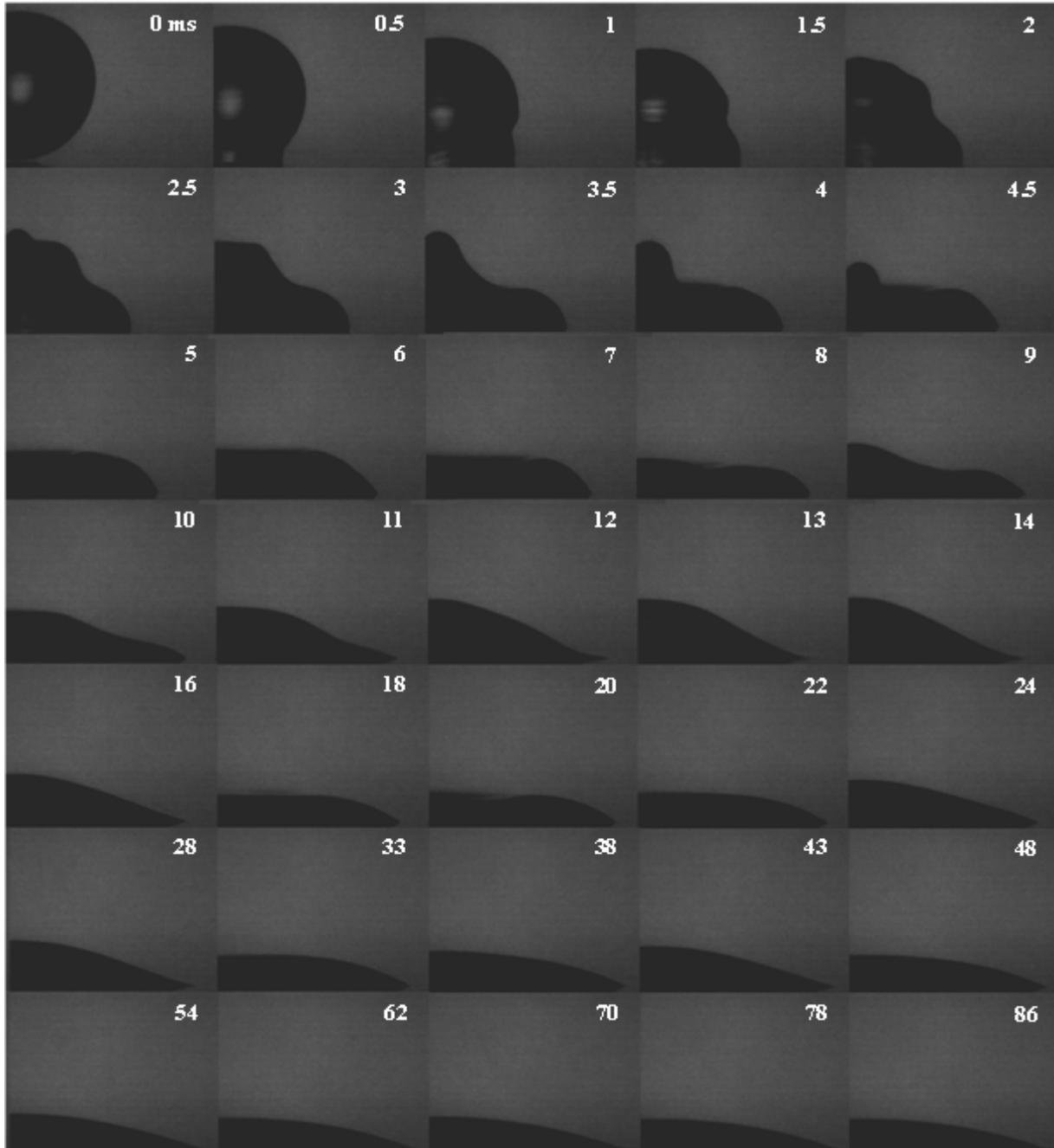


Figure VI.1 : Camera NAC et intensificateur de lumière Hamamatsu, temps d'obturation = 200ns, Eau distillée,  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 72\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $U = 0.3\text{m/s}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 5^\circ$

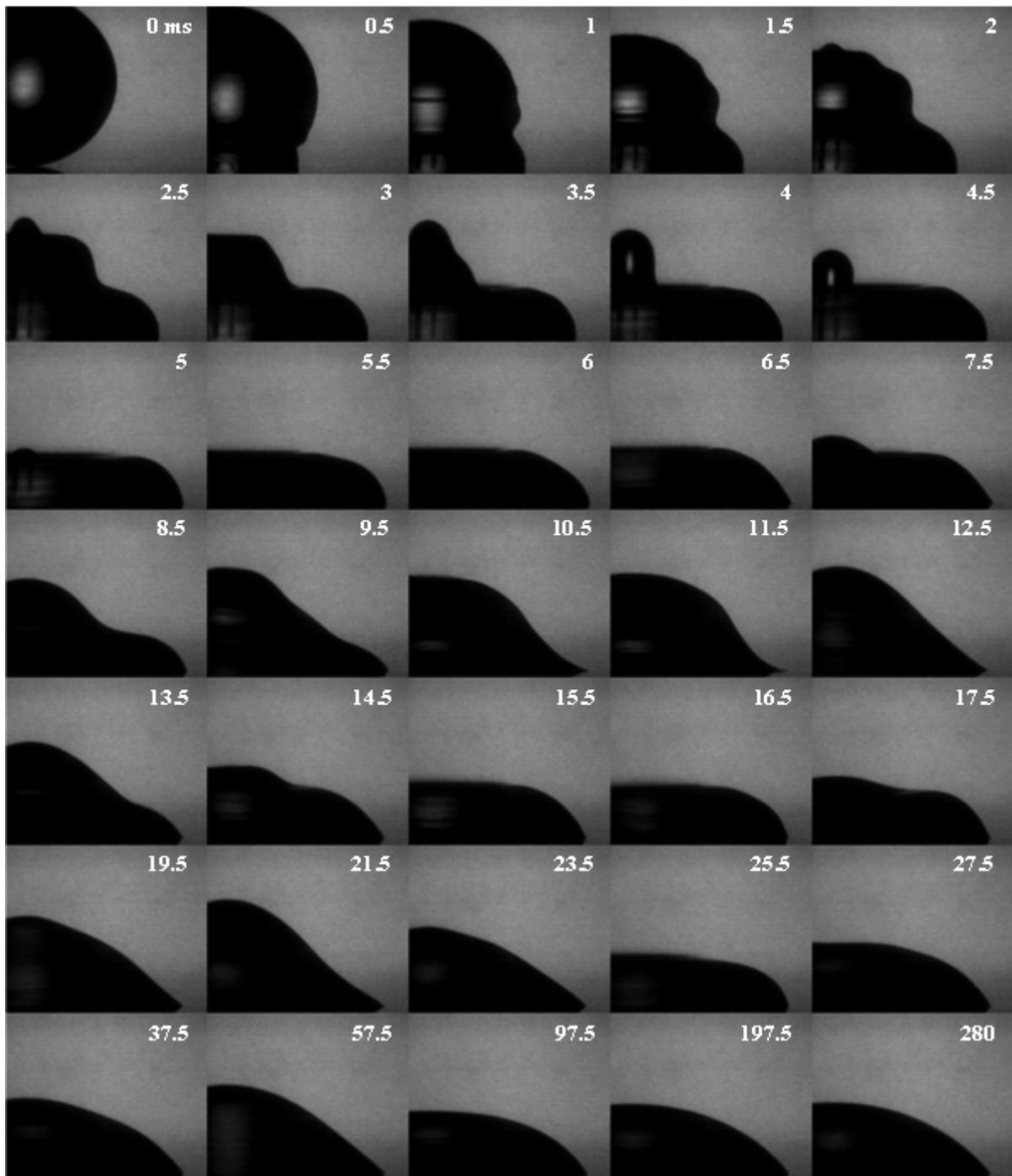


Figure VI.2 : Camera NAC et intensificateur de lumière Hamamatsu, temps d'obturation = 200ns, Eau distillée,  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 72\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $U = 0.3\text{m/s}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 50^\circ$

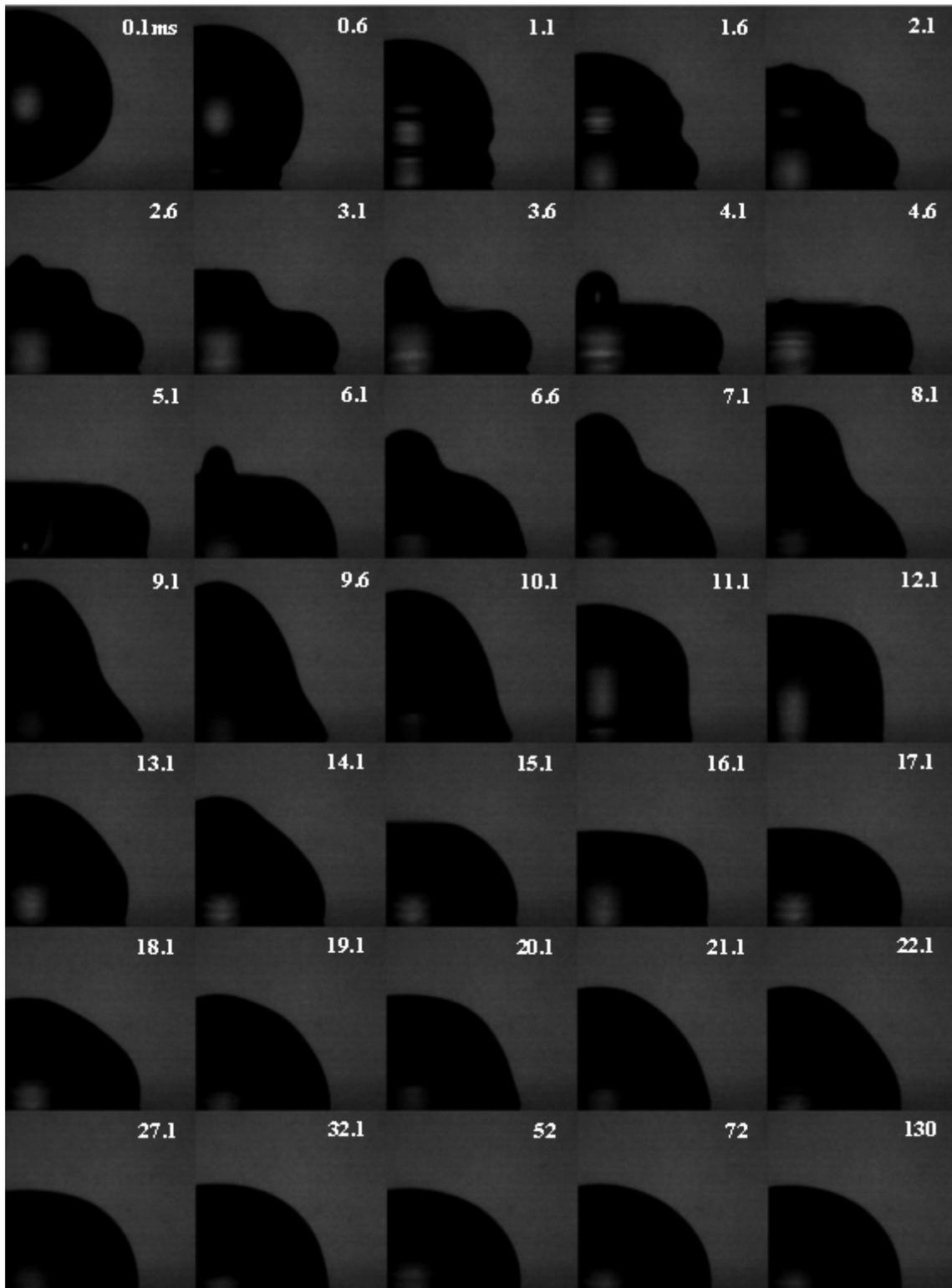


Figure VI.3 : Camera NAC et intensificateur de lumière Hamamatsu, temps d'obturation = 200ns, Eau distillée,  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 72\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $U = 0.3\text{m/s}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 88^\circ$

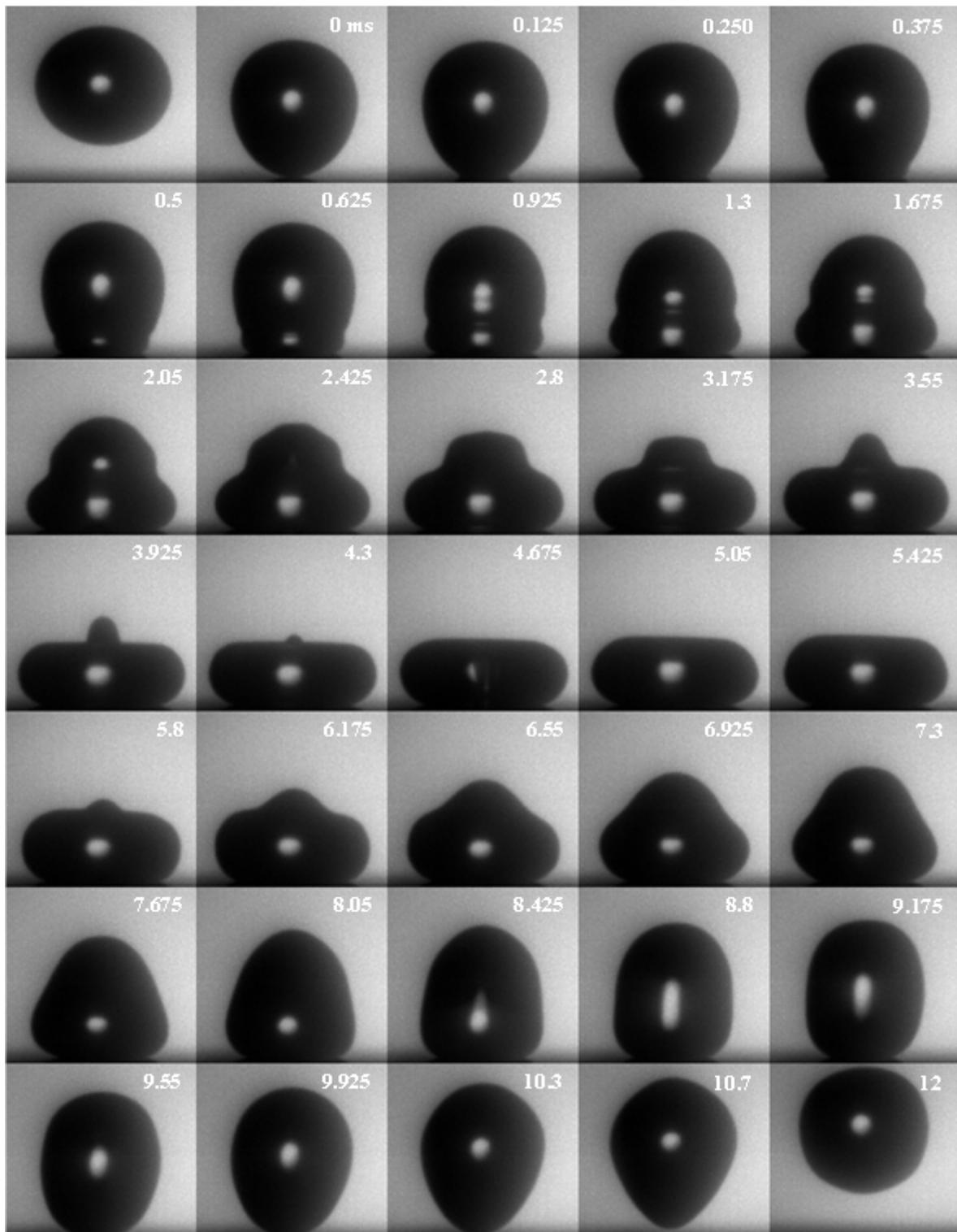


Figure VI.4 : Camera Phantom V7.0, temps d'obturation =  $2\mu\text{s}$ , Eau distillée,  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 72\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.2\text{mm}$ ,  $U = 0.5\text{m/s}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 180^\circ$

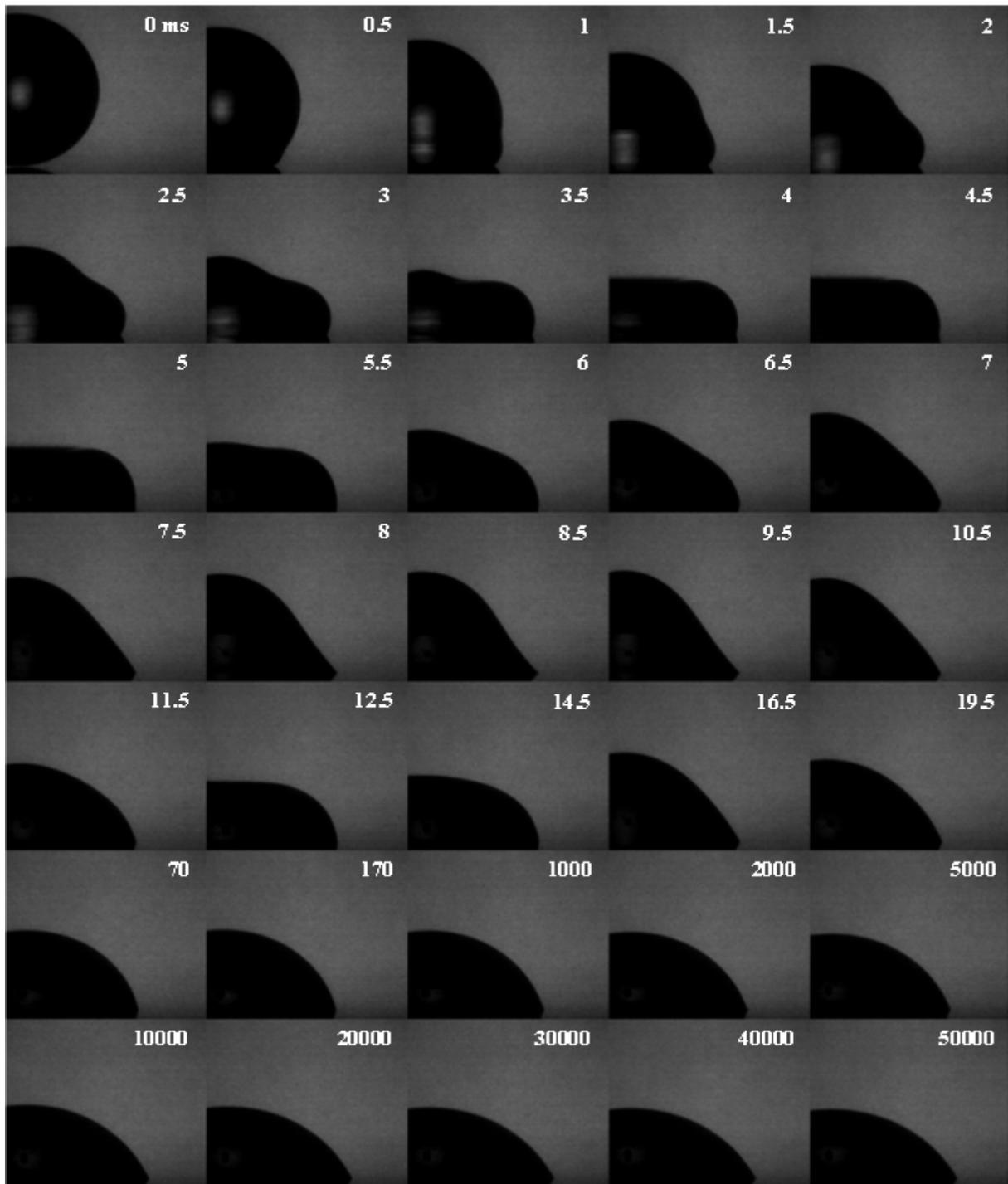


Figure VI.5 : Camera NAC et intensificateur de lumière Hamamatsu, temps d'obturation = 200ns, Eau distillée + 59% de glycérol,  $\mu = 9.6\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 68\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $U = 0.3\text{m/s}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 55^\circ$

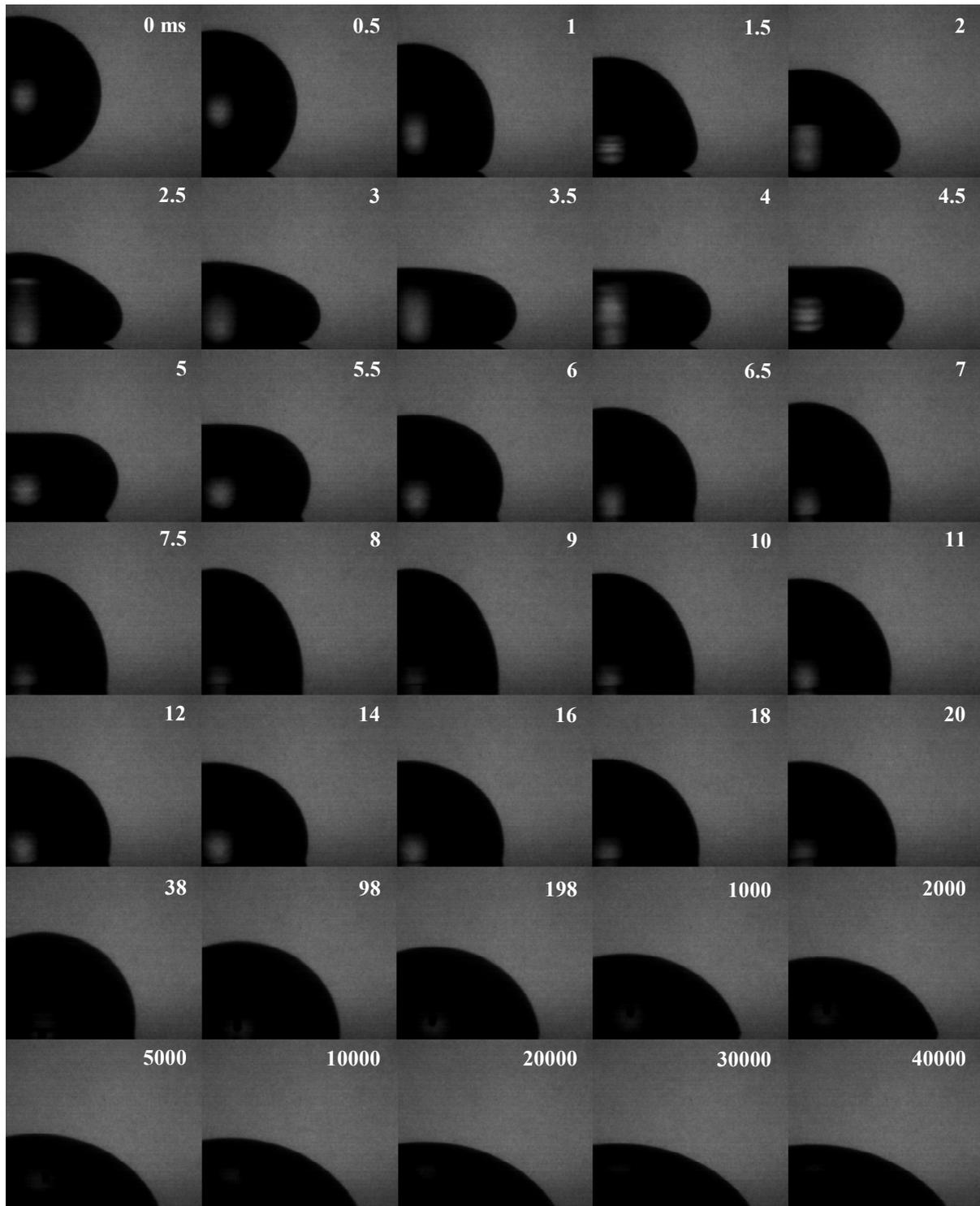


Figure VI.6 : Camera NAC et intensificateur de lumière Hamamatsu, temps d'obturation = 200ns, Eau distillée + 85% de glycérol,  $\mu = 96\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 67\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $U = 0.3\text{m/s}$ ,  $\theta_{\text{éq}} = 50^\circ$

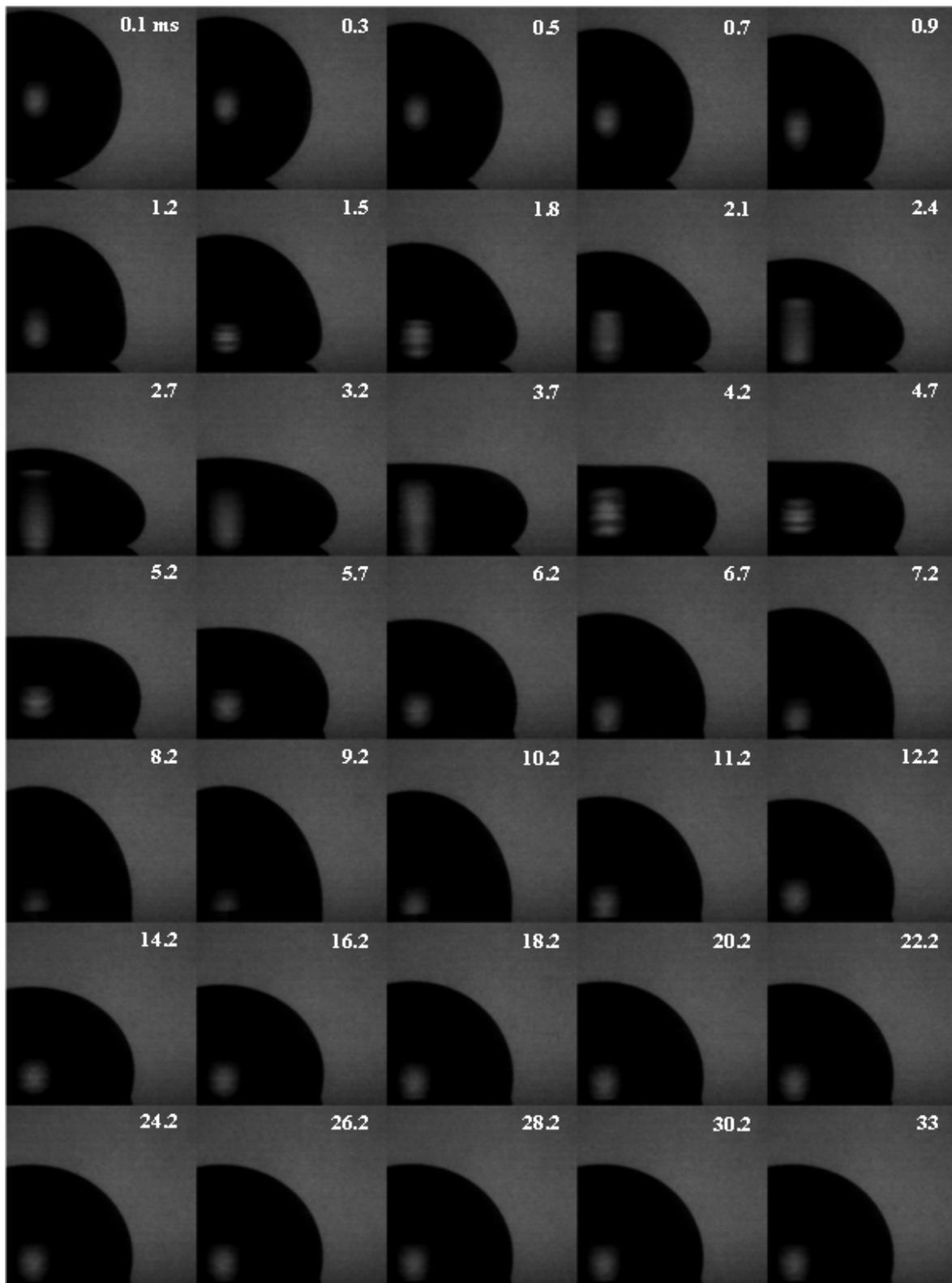


Figure VI.7 : Camera NAC et intensificateur de lumière Hamamatsu, temps d'obturation = 200ns, Eau distillée + 85% de glycérol,  $\mu = 96\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 67\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $U = 0.3\text{m/s}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 105^\circ$

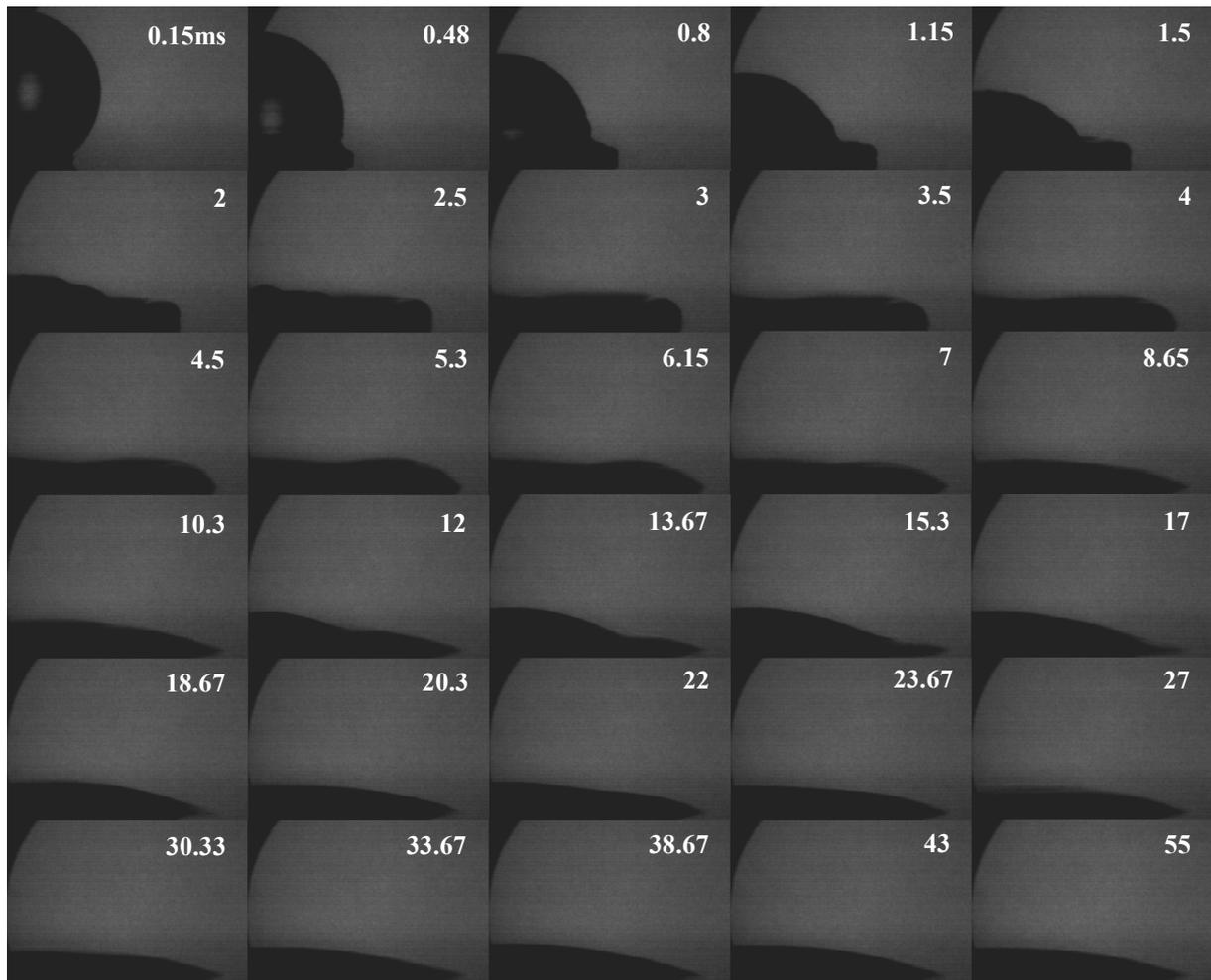


Figure VI.8 : Camera NAC et intensificateur de lumière Hamamatsu, temps d'obturation = 200ns, Eau distillée,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $U = 1\text{m/s}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 5^\circ$

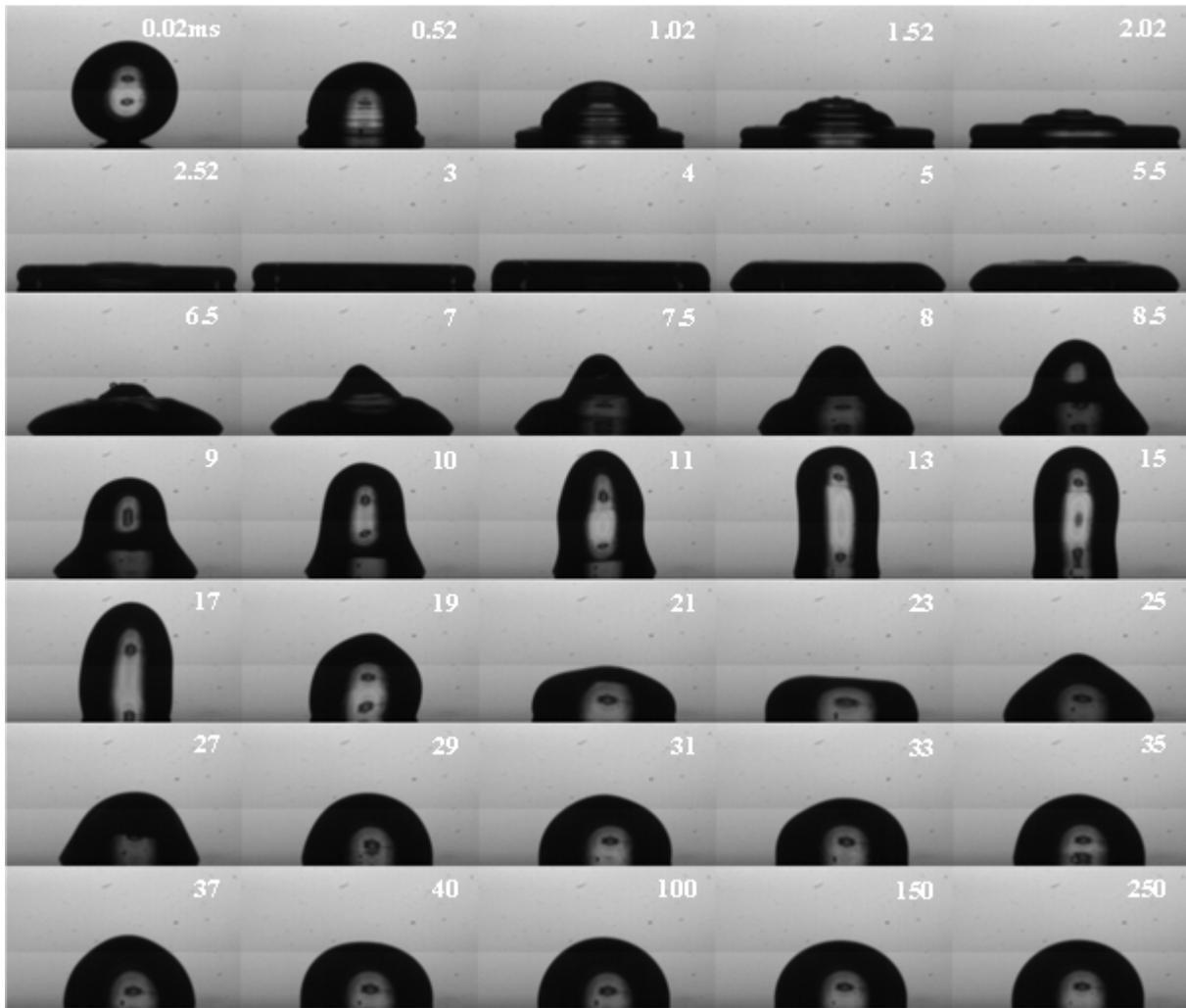


Figure VI.9 : Camera Phantom V4.2, temps d'obturation =  $2\mu\text{s}$ , Eau distillée,  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 72\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.3\text{mm}$ ,  $U = 1\text{m/s}$ ,  $\theta_{\text{eq}} = 88^\circ$

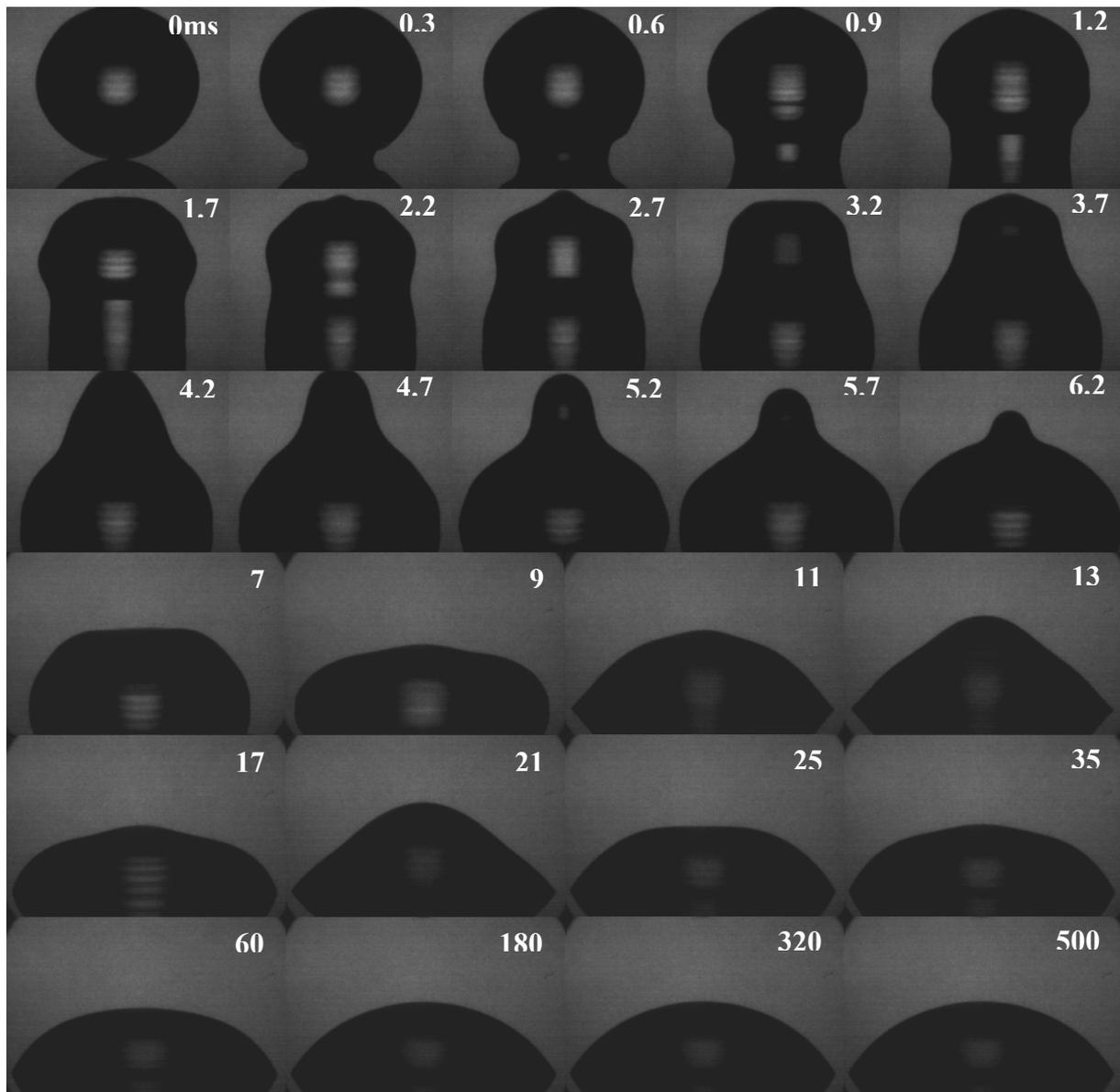


Figure VI.10 : Camera NAC et intensificateur de lumière Hamamatsu, temps d'obturation = 200ns, Eau distillée,  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 72\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ , dépôt,  $\theta_{\text{eq}} = 55^\circ$

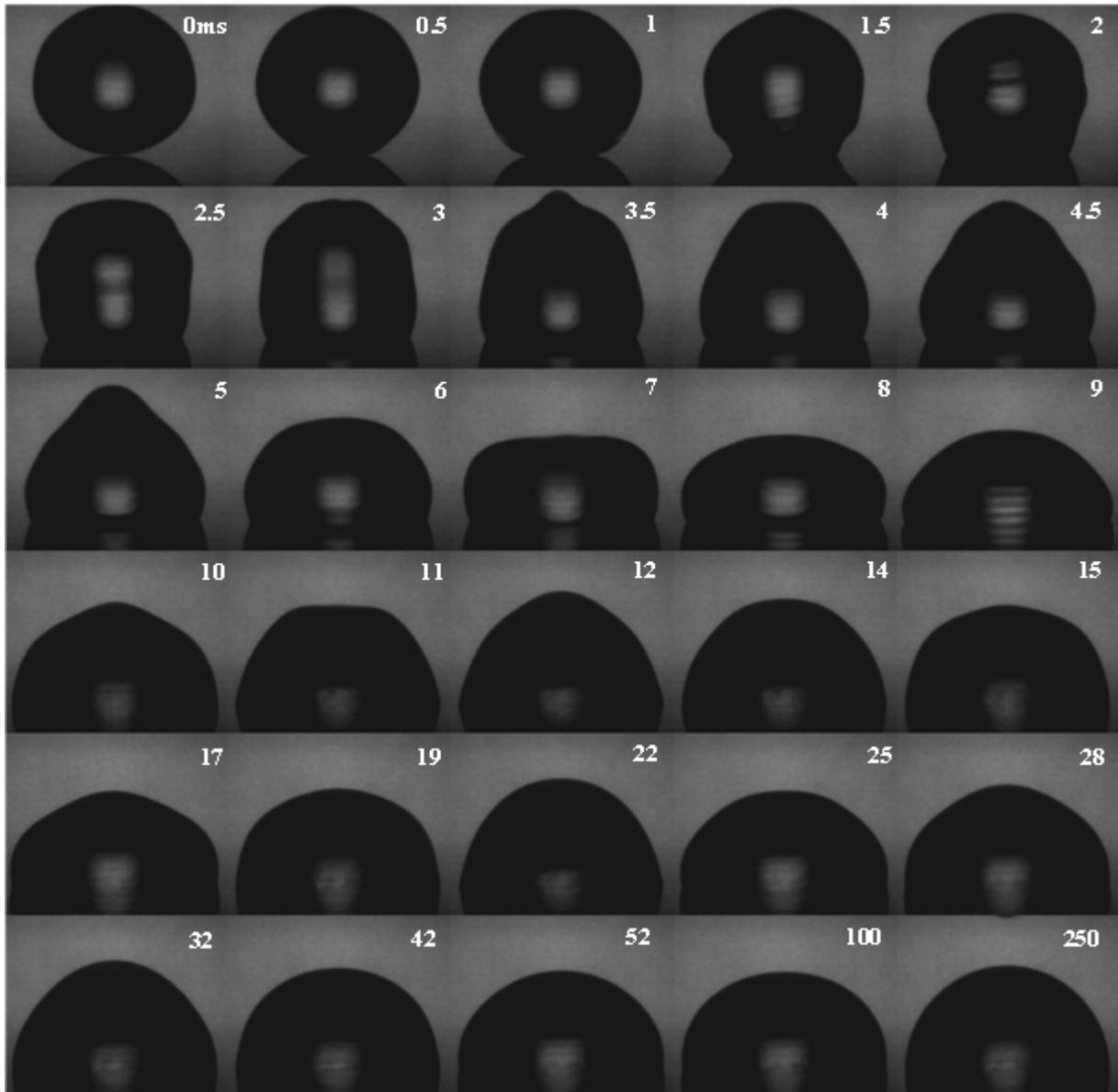


Figure VI.11 : Camera NAC et intensificateur de lumière Hamamatsu, temps d'obturation = 200ns, Eau distillée,  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 72\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ , dépôt,  $\theta_{\text{eq}} = 90^\circ$

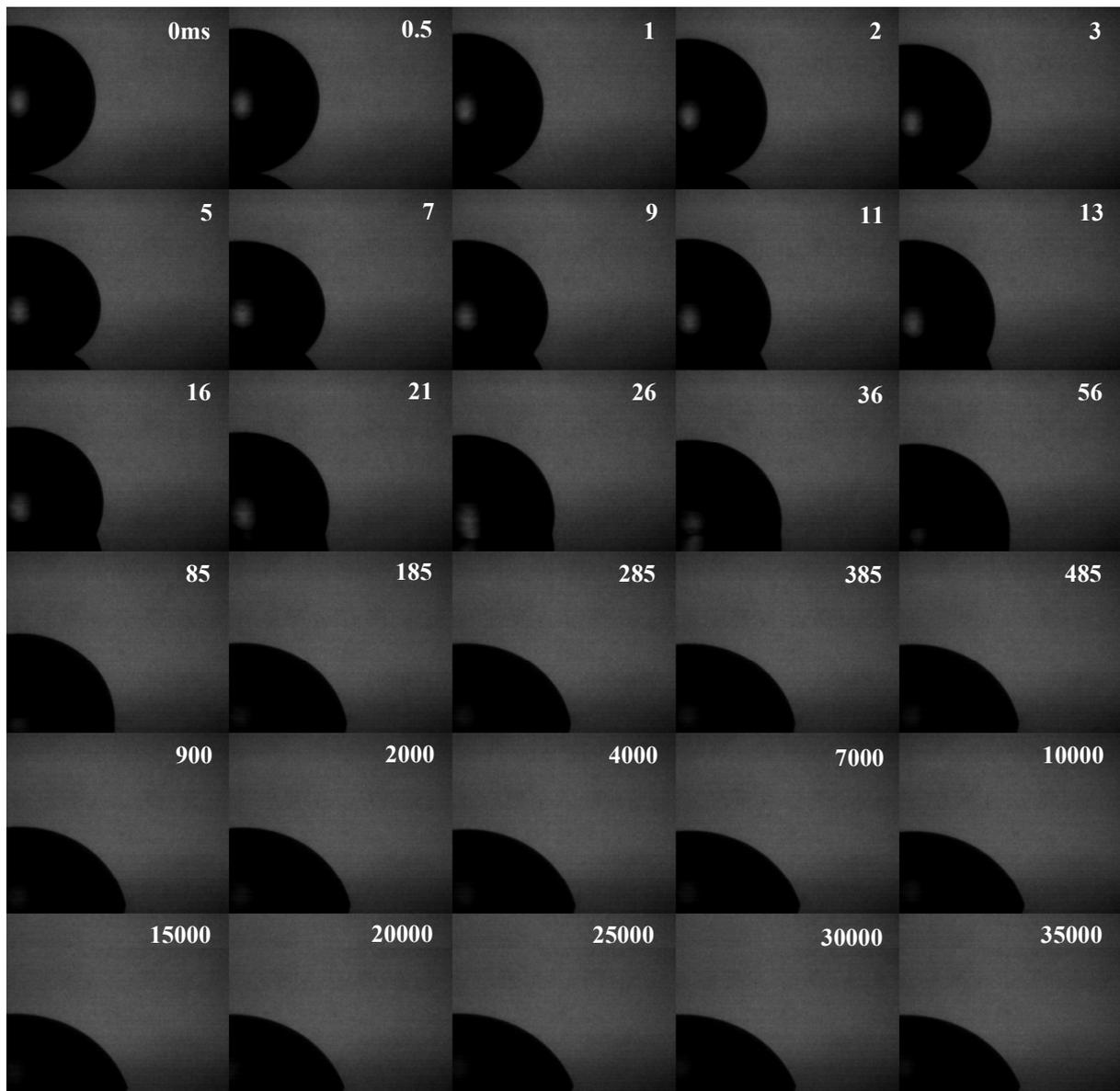


Figure VI.12 : Camera NAC et intensificateur de lumière Hamamatsu, temps d'obturation = 200ns, Eau distillée + 85% de glycérol,  $\mu = 96\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 67\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ , dépôt,  $\theta_{\text{eq}} = 50^\circ$

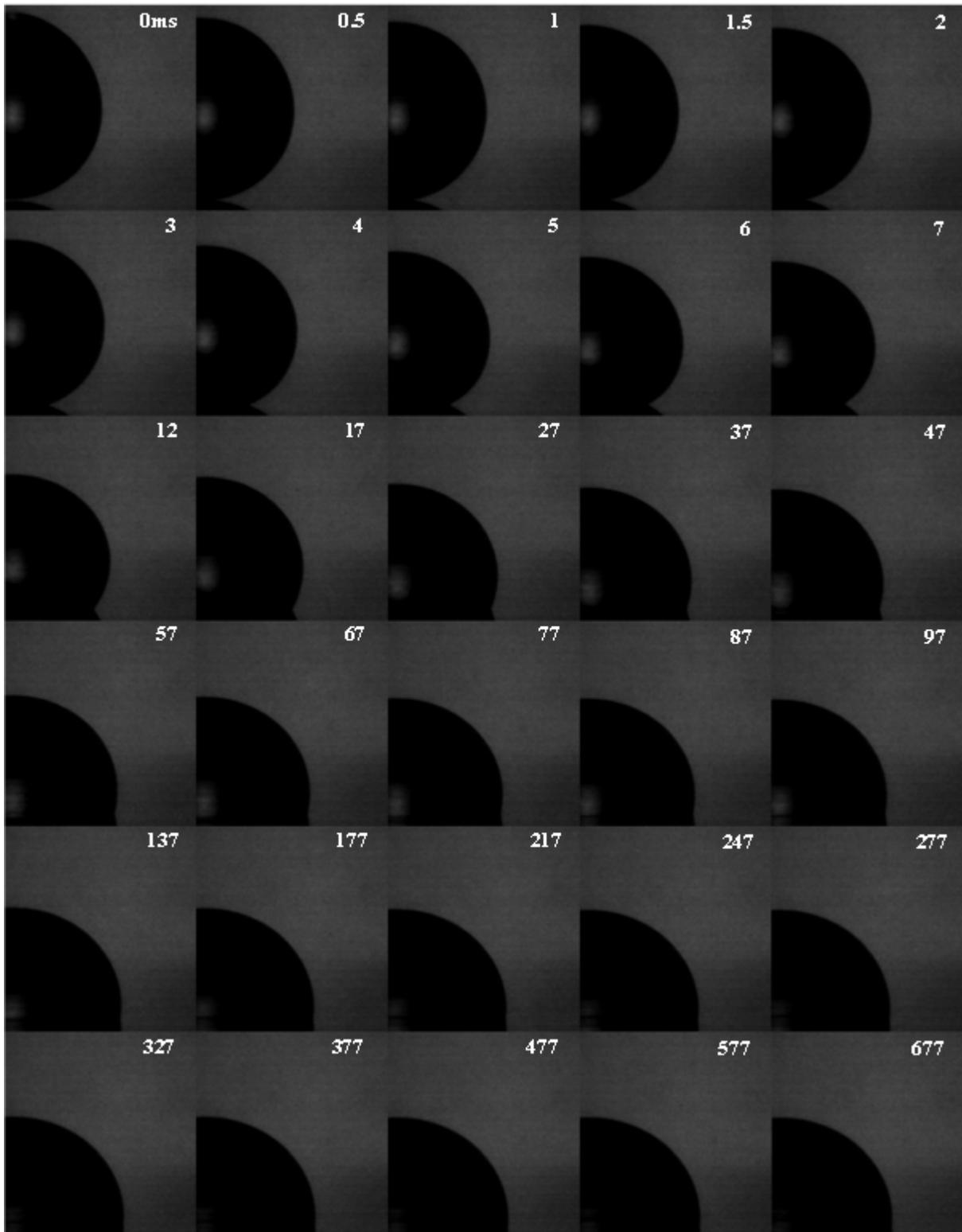


Figure VI.13 : Camera NAC et intensificateur de lumière Hamamatsu, temps d'obturation = 200ns, Eau distillée + 85% de glycérol,  $\mu = 96\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 67\text{mN/m}$ ,  $D_0 = 2.28\text{mm}$ , dépôt,  $\theta_{\text{eq}} = 90^\circ$

## Impact de gouttes contenant du tensioactif

Dans le cadre de l'application lié au jet d'encre, nous avons effectué un certain nombre d'expériences sur des gouttes d'eau distillée contenant plus ou moins de surfactant. Un surfactant de référence, le tergol a été utilisé. De l'eau distillée et deux mélanges d'eau distillée et de tergol (respectivement à 0.1 et 1 la concentration micellaire critique (CMC)) ont été testés. La tension de surface a été mesurée par Pression Maximale de Bulle et est reportée sur la figure VI.14.a. La figure VI.14.b présente l'évolution du diamètre de contact au cours du temps. L'étalement maximum est identique entre l'eau distillée et le mélange d'eau distillée et du tergol à 1CMC. En revanche, la solution d'eau distillée et tergol à 0.1CMC a un diamètre maximum 17% plus petit que l'eau distillée. Cela peut s'expliquer par un effet Marangoni chimique au niveau de la ligne de contact. L'interface est saturée en tensioactif au niveau de cette ligne de contact alors qu'elle ne l'est pas plus haut. Cet effet Marangoni ajoute une force supplémentaire qui s'oppose à l'étalement. Ce résultat est en accord avec les observations de [Mourougou-Candoni, 1999].

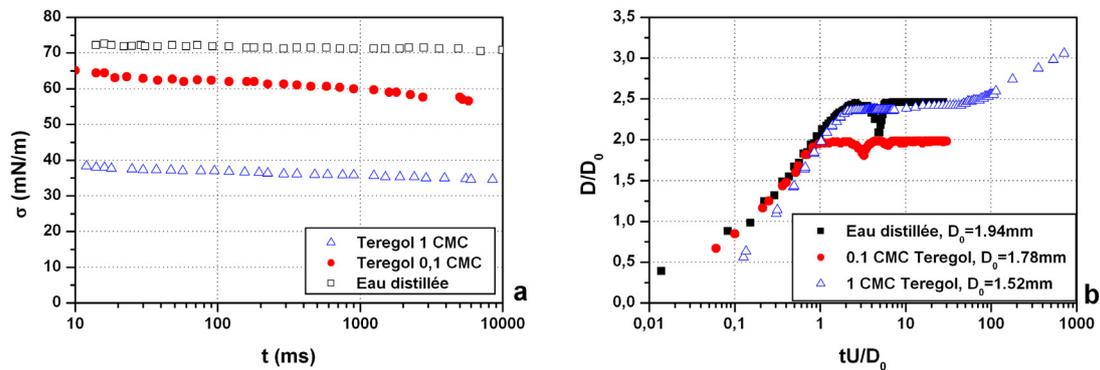


Figure VI.14: (a) tension de surface des différentes solutions mesurée par MBP, (b) évolution du diamètre de contact au cours du temps,  $U = 0.54\text{m/s}$

### Evolution de microgoutte

Dans cette dernière partie, nous présentons l'évolution du diamètre de contact de microgoutte d'une encre industrielle base eau ( $\mu = 3.2$  mPa.s,  $\sigma = 33.2$  mN/m,  $\rho = 996$  kg/m<sup>3</sup>,  $We = 2.85$ ,  $Re = 24$ ) lors de son étalement sur 4 surfaces. La première est une plaque de verre, la seconde est en polyéthylène, la troisième est du papier photo recouvert d'une couche polymérique et la dernière correspond à un papier photo microporeux. La tête d'éjection est un Spectra® SE128. La vitesse d'impact est  $U = 1.2$  m/s, le diamètre initial est de  $64\mu\text{m}$  et la méthode d'acquisition est de la pseudo-cinématographie à déphasage contrôlé (caméra Sensicam SVGA).

L'évolution du diamètre montre bien une forte similitude au début de l'impact (phase d'étalement et transition). Les différences deviennent significatives dans la phase d'étalement capillaire avec notamment une absorption de l'encre sur la surface microporeuse. Notons à ce sujet que le phénomène d'impact intervient environ 3 ordres de grandeur plus tôt ( $\sim 10\mu\text{s}$ ) que le phénomène d'absorption ( $\sim 10\text{ms}$ ).

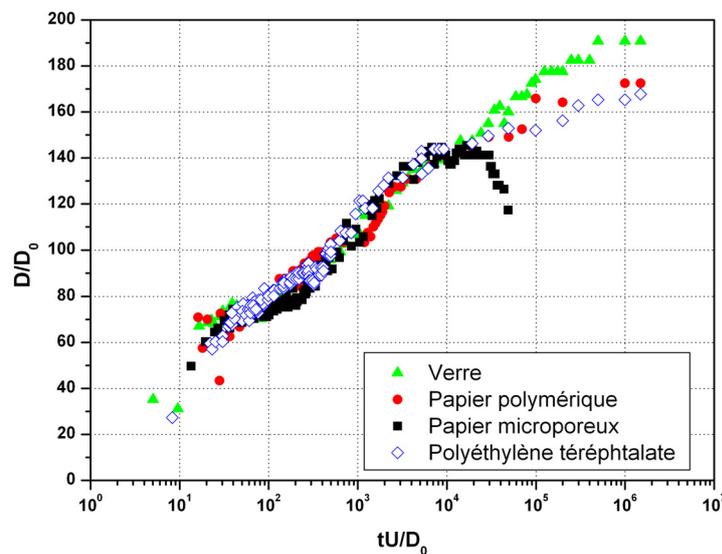


Figure VI.15: Evolution d'une goutte d'encre industrielle base eau ( $D_0 = 64.7\mu\text{m}$ ,  $U = 1.21$  m/s,  $\mu = 3.2$  mPa.s,  $\sigma = 33.2$  mN/m,  $\rho = 996$  kg/m<sup>3</sup>,  $We = 2.85$ ,  $Re = 24$ .) sur 4 surfaces différentes.

## Bibliographie

- [Adler, 2003] Adler M., Mouillage force des gouttes de solutions de tensio-actives, Cours CEA Grenoble (2003)
- [Allaman et al, 2003-1] Allaman S., Desie G., Vadillo D. and Soucemarianadin A., Impact et étalement de micro-gouttes sur des substrats solides, *Mécanique et Industrie*, 443-455 (2003)
- [Allaman et al, 2003-2] Allaman S., Desie G., Vadillo D. and Soucemarianadin A., Impact et étalement de micro-gouttes sur des substrats solides, *Mécanique et Industrie*, 443-455 (2003)
- [Asai et al, 1993] Asai A., Shioya M., Hirasawa S. and Okazaki T., Impact of an ink drop on paper, *J. of Imaging Science and Technology*, vol 37, pp 205-207 (1993)
- [Ayon et al, 1999] A.A. Ayon, R. Braff, C.C. Lin, H.H. Sawin, M.A. Schmidt, *Journal of Electrochemical Society*, 146, 339-349 (1999)
- [Bartolo et al, 2005] Bartolo D., Josserand C. and Bonn D., Retraction Dynamics of Aqueous Drops upon Impact on Non-wetting Surfaces, *Journal of Fluid Mechanic* vol. 545, 329-338 (2005)
- [Bayer & Mégaridis, 2006] Bayer I.S. and Mégaridis C.M., Contact angle dynamics in droplets impacting on flat surfaces with different wetting characteristics, *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 558, 415–449 (2006)
- [Bechtel et al, 1981] Bechtel S.E., Bogy D.B., Talke F.E., Impact of a Liquid Drop Against a Flat Surface, *INIST CNRS* vol.6, 963-971, (1981)
- [Besser & Shin, 2003] R.S. Besser and W.C. Shin, *Journal of Vacuum Science and Technology B*, 21, 912-915 (2003)
- [Bhardwaj et al, 1997] J. Bhardwaj, H. Ashraf, A. McQuarrie, Symposium on Microstructures and Microfabricated Systems at the Annual Meeting of the Electrochemical Society, Montreal, Quebec, Canada, May 4-9 (1997)
- [Blake, 1988] Blake T.D., Wetting kinetics – How do you wetting lines move?, *AICHE International Symposium on the mechanics of thin-film coating*, New Orleans (1988)
- [Blake & Haynes, 1969] Blake T.D. and Haynes K.J., Kinetics of liquid /liquid displacements, *Journal of Colloid and Interface Science* vol.30, 421-423 (1969)
- [Brandon et al, 2003] Brandon S., Haimovich N., Yeger E. and Marmur A., Partial wetting of chemically patterned surfaces : The effect of drop size, *Journal of Colloid and Interface Science* vol. 263, 237-243 (2003).

- [Brebba et al, 1984] Brebba C. A., Telles J. C. F. and Wrodel L. C., Boundary Element Techniques. Theory and applications in engineering. Springer-Verlag (1984)
- [Cassie & Baxter, 1944] Cassie A.B.D. and Baxter S., Trans. Faraday Society, vol. 40, 546 (1944)
- [Chen & Wada, 1992] Chen J.D. and Wada N., Edge profiles and dynamic contact angle on a solid, Journal of Interface Science, vol. 122, 60 (1992)
- [Clanet et al, 2005] Clanet C., Béguin C., Richard D. and Quéré D., Maximal Deformation of an Impacting Drop, Journal of Fluid Mechanics vol. 517, 199-208 (2005)
- [Clift et al, 1978] R. Clift, J.R. Grace and M.E. Weber, 1978, Bubbles, drops and particles, Academic, New York, pp 187-188
- [Daniel et al, 2004] Daniel S., Sircar S., Gliem J. and Chauhury M.K., Ratcheting motion of liquid drops on gradient surfaces, Langmuir, vol.20, 4085-4092 (2004)
- [Kim et al, 2003] Kim H-Y, Park S-Y and Min K., Imaging the high-speed impact of microdrop on solid surface, Review of Scientific Instruments, vol.74 n°11, 4930-4937 (2003)
- [Deckerg & Garoff, 1996] Decker E.L. and Garoff S., Langmuir, vol.12, 2100 (1996)
- [Delattre et al., 2005] Delattre C., Vadillo D. and Soucemarianadin A., Formation of Polymer Films During DNA In-Situ Synthesis, Euromech Colloquium 472 (2005)
- [DeGennes 1985] De Gennes P.G., Wetting: statics and dynamics, Review of Modern Physics, (1985)
- [De Ruijter et al, 1999] De Ruijter M.J., De Coninck J. and Oshanin G., Droplet Spreading: Partial Wetting Regime Revisited, Langmuir vol.15, 2209-2216 (1999)
- [DeRuitjer et al, 2000] De Ruitjer M.J., Charlot M., Voué M. and De Coninck J., Experimental Evidence of Several Time Scales in Drop Spreading, Langmuir vol.16, 2363-2368 (2000)
- [Desie et al, 2003] Desie G., Monteux A., Vadillo D. and Soucemarianadin A., Multiple Drop Interactions with Substrates, Non Impact Printing 19, September 28 - October 3 2003, New Orleans, Louisiana (2003)
- [Desie et al, 2004] Desie G., Kerdraon P., Vadillo D. and Soucemarianadin A., Multi-Color Printing, Non Impact Printing 19, October 31 to November 5 2004, Salte Lake City, Utah
- [El Hammoumi et al, 2003] El Hammoumi M., Canot E., Davoust L. and Lachkar D., Numerical Simulation of the buoyancy-driven of a 2-D bubble at a horizontal wall, Theoretic Computational Fluid Dynamic (2003)
- [Engel, 1955] Engel O., Water drop collisions with solid substrate, J. Res. Nat. Bur. Stand., vol. 54, 281-298 (1955)

- [Eggers et al, 1994] Eggers M., Hogan M., Reich R. K., Lamture J., Ehrlich, D., Hollis M., Kosicki B., Powdrill, T., Beattie, K. Smith S., *Biotechnics*, vol. 17, 516-525 (1994).
- [Eggers et al, 1999] Eggers J., Lister J., Stone H. A., Coalescence of liquid drops, *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 401 , 293 (1999)
- [Extrand, 2002-1] Extrand C.W., Criteria for Ultralyophobic Surfaces, *Langmuir* vol. 20, 5013-5018 (2002)
- [Extrand, 2002-2] Extrand C.W., Model for Contact Angles and Hysteresis on Rough and Ultraphobic Surfaces, *Langmuir* vol. 18, 7991-7999 (2002)
- [Extrand, 04] Extrand C.W., Contact Angles and Their Hysteresis as a Measure of Liquid-Solid Adhesion, *Langmuir* vol. 20, 4017-4021 (2004)
- [Fukai et al, 1993] Fukai J., Zhao Z., Poulikakos D., Megaridis C.M., Miyatake O., Modeling of the Deformation of a Liquid Droplet Impinging upon a Flat Surface, *Physics of Fluids A* vol.5, 2588-2598 (1993)
- [Fujimoto et al, 2001] Fujimoto H., Ogino T., Takuda H., Hatta N., Collision of a Droplet with a Hemispherical Static Droplet on a Solid, *International Journal of Multiphase Flow* vol.27, 1227-1245 (2001)
- [Frassy et al, 2006].Frassy J., Lecot C., Delattre C. and Soucemarianadin A., Droplet evaporation on solid substrates of different wetting behavior, SHF-Microfluidics 2006, Toulouse France
- [Glasstone et al, 1941] Glasstone S., Laidler K. and Eyring H., *The theory of rate process*. McGraw-Hill (1941)
- [Heilmann et al, 2002] Heilmann J., Measuring dynamic interactions between paper and microscale ink drops, *NIP* 17, pp 735-738 (2001)
- [Hoffman, 1975] Hoffman R.L., A Study of the Advancing Interface, *Journal of Colloid and Interface Science* vol. 50 n°2, 228-241 (1975)
- [Holman, 2001] Holman R. K., Cima M.J., Uhland S.A. and Sachst E., Spreading and infiltration of inkjet-printed polymer solution droplets on a porous substrate, *J. of Colloid and Interface Science*, 249, pp 432-440 (2002)
- [Jansen et al, 1995] H. Jansen, M. De Boer, R. Legtenberg and M. Elwenspoek, *Journal of Micromechanical Microengineering*, **5**, 115-120 (1995)
- [Khatavkar, 2005] Khatavkar V., Capillary and low inertia spreading of a microdroplet on a solid surface, PhD. Thesis, 2005, Eindhoven University of Technology.

- [Kim et al, 2000] Kim H.Y., Feng Z.C. and Chun J.H., Instability of a liquid jet emerging from a droplet upon collision with a solid surface, *Physics of Fluids* vol.12, 531-541 (2000)
- [Kim & Chun, 2001] Kim H.Y. and Chun J.H., The recoiling of liquid droplets upon collision with Solid Surfaces, *Physics of Fluids* vol.13 n°3, 643-659 (2001)
- [Kim & Kim, 2002] J. Kim and C.J. Kim, 15<sup>th</sup> IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems, Las Vegas, NV, USA, 479-482 (2002)
- [Kuroiwa et al, 2003-1] Kuroiwa T., Goshoo Y., Ishikawa N., Obara D., Vinet F. and Soucemarianadin A., Biomem's DNA In Situ Synthesis based on Polymeric Droplet Dispensing, Minatec, September 22-26 2003, Grenoble (France)
- [Kuroiwa et al, 2003-2] Kuroiwa T., Ishikawa N., Obara D., Vinet F., Ang E.S., Guelbi A. and Soucemarianadin A., Dispensing of Polymeric Fluid for BIO-MEMS Applications, Non Impact Printing 19, September 28 - October 3 2003, New Orleans, Louisiana (2003)
- [Kwok & Neumann, 1999] Kwok D.Y. and Neumann N.W., Contact Angle Measurement and Contact Angle Interpretation, *Advances in Colloid and Interface Science* vol. 81, 167-249 (1999)
- [Lam et al, 2001] Lam C. N. C., Ko H. Y., Yu L. M. Y., Li D., Hair M. L., and A. W. Neumann, Dynamic cycling contact angle measurements: study of advancing and receding contact angles, *Journal of Colloid and Interface Science* 243, 208–218 (2001)
- [Lopez et al, 2002] Lopez B., Vadillo D., Pierron P. and Soucemarianadin A., Transient Phenomena During Drop Formation In DoD Printing, Non Impact Printing 18, San Diego, September 29 (2002)
- [Mackay & Mason, 1963] Mackay G.D.M. and Mason S.G., The Gravity Approach and Coalescence of Fluid Droplets and liquid Interfaces, *Canadian Journal of Chemical Engineering* vol. 41, 203 (1963)
- [Machane, 1997] Machane R., Contribution de la méthode intégrale aux frontières au suivi d'interfaces, Thèse UJF Grenoble (1997)
- [Machane & Canot, 1997] Machane R., Canot E., High order schemes in Boundary Element Methods for transient non-linear free-surface problems, *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, vol. 24, pp 1049-1072 (1997)
- [Marchand et al, 2005] Marchand G., Delattre C., Campagnolo R., Pouteau P. and Ginot F, Electrical Detection of DNA Hybridization Based on Enzymatic Accumulation Confined in Nanodroplets, *Analytical Chemistry*, vol. 77, 5189-5195 (2005).

- [Marmur, 2004] Marmur A., The lotus effect: superhydrophobicity and metastability, *Langmuir* vol.20, 3517-3519 (2004)
- [Menchaca-Rocha et al, 2001] Menchaca-Rocha A., Martínez-Dávalos A., Núñez R., Popinet S. and Zaleski S., Coalescence of liquid drops by surface tension, *Physical Review. E* vol. 63, 046309 (2001)
- [Meiron et al, 2004] Meiron T.S., Marmur A. and Saguy S., Contact angle measurement on rough surfaces, *Journal of Colloid and Interface Science*, vol.274, 637-644 (2004)
- [Middleman, 1995] Middleman S., *Modeling axisymmetric flows: dynamics of films, jets and drops*. Academic Press.
- [Mock et al, 2005] Mock U., Michel T., Tropea C., Roisman I. and Rühle J., Drop impact on chemically structured arrays, *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 17, S595-S605 (2005)
- [Mori & Zaitsev, 2004] Mori Y. and Zaitsev K., Particulate Deposition in Evaporating Droplets of Polystyrene Latex Suspension on Hydrophilic and Hydrophobic Substrates, *Journal of Chemical Engineering of Japan* vol. 37 n°5, 657-667 (2004)
- [Michel et al 2005] Michel T., Mock U., Roisman I.V., Rühle J. and Tropea C, The Hydrodynamics of Drop Impact onto Chemically Structured Surfaces, *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 17, S607-S622 (2005)
- [Mourougou-Candoni et al, 1997] Mourougou-Candoni M., Prunet-Foch B., Legay F., Vignes-Adler M. and Wong K., Influence of dynamic surface tension on the spreading of surfactant solution droplets impacting onto low-surface-energy solid substrate, *Journal of Colloid and Interface Science* vol.192, 129-141 (1997)
- [Mourougou-Candoni et al, 1999] Mourougou-Candoni M., Prunet-Foch B., Legay F. and Vignes-Adler M., Retraction phenomena of surfactant solution drops upon impact on a solid substrate of low surface energy, *Langmuir* vol.15, 6563-6574 (1999)
- [Park et al, 2002] Parks H., Carr W.W. and Zhu J., Interactions of single ink-jet drop with well-characterized surfaces, *NIP* 18, 620-626 (2002)
- [Narhe et al, 2004] Narhe R., Beysens D. and Nikolayev V.S., Contact line dynamics in drop coalescence and spreading, *Langmuir* vol. 20, 1213-1221 (2004).
- [Okamura et al, 2003] Okamura K., Chevy F., Quéré D. and Clanet C., Water spring : A model for bouncing drops, *Europhysics Letters* vol.62, 237-243 (2003)
- [Ozawa et al, 2005] Ozawa K., Nishitani E. and Doi M., Modeling of the Drying Process of Liquid Droplet to Form thin film, *Japanese Journal of Applied Physics* vol. 44 n°6A, 4229-4234 (2005)

- [Pasandideh-Fard et al, 1996] Pasandideh-Fard M., Qiao Y.M., Chandra S., Mostaghimi J., Capillary Effects during Droplet Impact on a Solid Surface, *Physics of Fluids* vol. 8, 650-659 (1996)
- [Pasandideh-Fard et al, 1996] Pasandideh-Fard M., Qiao Y.M., Chandra S., Mostaghimi J., Capillary Effects during Droplet Impact on a Solid Surface, *Physics of Fluids* vol. 8, 650-659 (1996)
- [Pasandideh-Fard, 1998] Pasandideh-Fard M., Bhola R., Chandra S., Mostaghimi J., Deposition of Thin Droplets on a Steel Plate: Simulation and Experiments, *International Journal of Heat and Mass Transfer* vol.41, 2929-2945 (1998)
- [Quéré, 1998] Quéré D., Drops at Rest on a Tilted Plane, *Langmuir* vol. 14, 2213-2216 (1998)
- [Range & Feuillebois, 1998] Range K. and Feuillebois F., Influence of surface roughness on liquid drop impact, *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 203, 16-30 (1998)
- [Rein, 1993] Rein M; Phenomena of liquid drop impact on a solid and liquid surfaces, *Fluid Dynamics Research*, vol.12, 61-93 (1993)
- [Renardy et al, 2003] Renardy Y., Popinet S., Duchemin L., Renardy M., Zaleski S., Josserand C., Drumright-Clarke M. A., Richard D., Clanet C. and Quéré D., Pyramidal and toroidal water drops after impact on a solid surface, *Journal of Fluid Mechanics* vol. 484, 69–83 (2003).
- [Référence 1] <http://www.agilent.com>
- [Référence 2] <http://www.affymetrix.com/index.affx>
- [Rioboo et al, 2001-1] Rioboo R., Roisman I.V. and Tropea C., Description of spreading, receding and single vertical jetting of a drop impacting a dry wall, ILASS-Europe (2001)
- [Rioboo et al, 2001-2] Rioboo R., Tropea C. and Marengo M., Outcomes from a drop impact on solid surfaces, *Atomization Sprays* 11, 155-165 (2001)
- [Rioboo et al, 2002] Rioboo R., Marengo M., Tropea C., Time evolution of liquid drop impact onto solid dry surfaces, *Experiments in Fluids*, vol. 33, 112-124 (2002)
- [Rioboo, 2003] Rioboo R., Thèse de doctorat : « Impact de gouttes sur surfaces solides et sèches », Université Paris 6 (2003)
- [Roisman et al, 2001] Roisman I.V., Rioboo R. and Tropea C., Normal impact of a liquid drop on a dry surface: model for spreading and receding, *Proceeding of the Royal Society of London* 458, 1411-1430 (2001)
- [Roisman & Tropea, 2001] Roisman I.V. and Tropea C., Impact of a drop on a liquid film: Description of crown propagation, ILASS-Europe (2001)

- [Roisman et al, 2002] Roisman I.V., Prunet-Foch B., Tropea C. and Vignes-Adler M., Multiple Drop Impact onto a Dry Solid Substrate, *Journal of Colloid and Interface Science* vol. 256, 396-410 (2002)
- [Roisman & Tropea, 2002] Roisman I.V. and Tropea C., Impact of a drop onto a wetted wall: description of crown formation and propagation, *Journal of Fluid Mechanics* vol.472, 373-397 (2002)
- [Rosilio et al, 2000] Rosilio C., Vinet F., Vauchier C. and Clerc JF., Method for producing a matrix of sequence of chemical or biological molecules for chemical or biological for analysis device, Brevet (2000).
- [Roux & Cooper, 2004] Roux D.C.D. and Cooper-White J.J., Dynamics of Water Spreading on a Glass Surface, *Journal of Colloid and Interface Science* vol.277, 424-436 (2004)
- [Rozhkov et al, 2002] Rozhkov A., Prunet-Foch B. and Vignes-Adler M., Impact of water drops on small targets, *Physics of Fluids* vol.14, 3485-3501 (2002)
- [Rozhkov et al, 2003] Rozhkov A., Prunet-Foch B. and Vignes-Adler M., Impact of drops of polymer solutions on small targets, *Physics of Fluids* vol.14, 2006-2019 (2003)
- [Rura & Fort, 2001] Roura P. and Fort J., Equilibrium of drop on inclined hydrophilic surface, *Physical Review*, vol. 64, issue 1 (2001)
- [Santiago-Rosanne et al, 2001] Santiago-Rosanne M., Vignes-Adler M. and Velarde M.G., On the spreading of partially miscible liquids, *Journal of Colloid and Interface Science* vol. 234, 375-383 (2001)
- [Semal et al, 1999] Semal S., Voué M. and De Coninck J., Dynamics of Spontaneous Spreading on Energetically Adjustable Surfaces in a Partial Wetting Regime, *Langmuir* vol.15, 7848-7854 (1999)
- [Schiaffino & Sonin, 1997] Schiaffino S. and Sonin A.A., Molten droplet deposition and solidification at low Weber number, *Physics of Fluids* vol.9, 3172-3187 (1997)
- [Schnell et al, 2000] M. Schnell, R.Lüdemann and S. Schaefer, 28th IEEE Photovoltaic Specialists Conference, Anchorage, September 19-22, 367-370 (2000)
- [Sciffer, 2000] Sciffer S., A phenomenological model of dynamic contact angle, *Chemical engineering Science* vol.55, 5933-5936 (2000)
- [Smith & Lindberg, 1978] Smith T. and Lindberg G., *Journal of Colloid and Interface Science*, vol.66, 363 (1978)
- [Shikhmurzaev, 1993] Shikhmurzaev Y.D., The moving contact line on a smooth solid surface, *International Journal of Multiphase Flow* vol.19, 589-610 (1993)

- [Shikhmurzaev, 1997] Shikhmurzaev Y.D., Moving Contact Lines in Liquid/Liquid/Solid Systems, *Journal of Fluid Mechanics* vol. 334, 211-249 (1997)
- [Sikalo et al, 2003] Sikalo S., Marengo M., Tropea C. and Ganic E.N., Analysis of impact of droplets on horizontal surfaces, *Experimental Thermal and Fluid Science* vol.25, 503-510 (2003)
- [Sikalo et al, 2005] Sikalo S., Wilhelm H.D., Roisman I.V., Jakirlic S. and Tropea C., Dynamic Contact Angle of Spreading Droplets: Experiments and Simulation, *Physics of Fluid* vol.17, 062103-1 062103-13 (2005)
- [Soucemarianadin, 2004] Soucemarianadin A., Dynamic Interactions between Drops and Patterned Substrates: Control of Instabilities, EEC, 2004
- [Starov et al, 2002] Starov V.M., Kosvintsev J.S., Sobolev V.D., Velarde M.G. and Zhdanov S.A., Spreading of liquid drops over saturated porous layers, *Journal of Colloid and interface Science* 246, 372-379 (2002)
- [Tanner, 1979] Tanner L.H., The spreading of oil drops on horizontal surfaces, *Journal of Physic: D Applied Physics*, vol.12, 1473 (1979)
- [Thoroddsen et al, 2003] Thoroddsen S.T., Etoh T.G. and Takehara K., Air entrapment under an impacting drop, *Journal of Fluid Mechanics* vol. 478, 125-134 (2003).
- [Thoroddsen et al, 2005] Thoroddsen S.T., Etoh T.G., Takehara K., Ootsuka N. and Hatsuki Y., The air bubble entrapped under a drop impacting on a solid surface, *Journal of Fluid Mechanics* vol. 545, 203-212 (2005).
- [Ukiwe & Kwok, 2005] Ukiwe C. and Kwok D.Y., On the Maximum Spreading Diameter of Impacting Droplets on Well-Prepared Solid Surfaces, *Langmuir* vol. 21, 666-673 (2005)
- [Vadillo et al, 2003] Vadillo D., Canot E., Lopez B. and Soucemarianadin A., Collision of Single and Multiple Drops onto Solid Walls, ICLASS 2003
- [Vadillo, 2003] Vadillo D., Impact de gouttes et de macrogouttes sur différents substrats, stage de DEA Mécanique des Fluides et Transferts, Institut National Polytechnique Grenoble (2003)
- [Vadillo et al, 2006] Vadillo D., Delattre C., Desie G., Roux D. and Soucemarianadin A., Drop dynamics during impact onto homogeneous and patterned solid substrates, *Microfluidics Toulouse* (2006)
- [Wenzel, 1936] Wenzel R.N., *Industrial Engineering Chemical*, vol. 28, 988 (1936)
- [Worthington, 1876] Worthington A.M., On the forms assumed by drops of liquids falling vertically on a horizontal plate, *Proceeding of the Royal Society London*, vol. 25, 261-271 (1876)

[Worthington, 1877] Worthington A.M., A second paper on the forms assumed by drops of liquids falling vertically on a horizontal plate, Proceeding of the Royal Society London, vol. 25, 498-503 (1877)

**Résumé :** L'objectif principal de ce travail est la compréhension des mécanismes physiques liés au phénomène d'impact orthogonal d'une ou de plusieurs gouttes sur des surfaces solides sèches. Les surfaces modèles utilisées sont réalisées à partir de plaques de silicium sur lesquelles un traitement chimique a permis d'obtenir des angles de contact d'équilibre couvrant une très large gamme de hydrophile à superhydrophobe. A l'aide de ces briques de base, des surfaces hétérogènes de différents types ont été fabriquées et leur comportement étudié.

Les expérimentations sont basées sur l'acquisition des profils transitoires lors de l'impact d'une goutte unique ou de plusieurs gouttes. Les méthodes de visualisation utilisées sont la cinématographie ultra-rapide et la pseudo-cinématographie à déphasage contrôlé. Les mesures sont effectuées automatiquement à partir d'algorithmes de traitement d'images spécifiquement développés pour le cas de l'étalement. Ces observations ont permis d'étudier en détail les quatre phases de l'impact.

A partir de ces résultats, deux applications, où l'interaction solide/liquide lors de l'étalement joue un rôle prépondérant, ont été étudiées : l'impression numérique et la synthèse *in situ* d'oligonucléotides. Les simulations numériques proposées reposent sur la méthode variationnelle et la méthode des intégrales de frontières pour les cas axisymétriques. Les résultats obtenus sont discutés.

**Mot clés :** Impact de goutte unique et de multi-gouttes, mouillabilité, angle de contact, substrat homogène, substrat hétérogène

**Abstract:** The main goal of this work is the understanding of physical mechanism related to the orthogonal impact phenomena of one or several drops onto solid and dry surfaces. Model surfaces used are made using silicon plate on which ones chemical treatment allowed to reach equilibrium contact angles covering a wide range from hydrophilic to super hydrophobic. Thanks to this technique, different kinds of heterogeneous substrate have been built and the influence of their behavior is studied.

These experiments are based on acquiring transient profiles during impact process of one or several drops. Visualization techniques used are high speed cinematography and pseudo-cinematography with phase shifts. Measurements are automatically made from algorithms of image processing specifically developed for wetting mechanism. These observations allowed to study in details the four different phases of drop impact.

From these results, two applications, where solid/liquid interaction has a preponderant role, have been investigated: digital printing and *in situ* DNA synthesis. Proposed numerical simulations are based on variational method and boundary element method. The obtained results are discussed.

**Keywords:** drop and multi-drop impact, wettability, contact angle, homogeneous and heterogeneous substrates