

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

Damien Vadillo

Grenoble, le 13 Juillet 2007

Thèse réalisée au:

Laboratoire des Écoulements Géophysiques et Industriels

Au sein de l'équipe:

Microfluidique, Interfaces et Particules

Au cours de cette thèse:

- Participation avec des industriels dans le cadre d'un projet Européen (Image-In) pour les applications de jet d'encre
- Collaboration avec le CEA LETI sur un projet de Synthèse *In Situ* d'oligonucléotides

Introduction Générale

Introduction

Le phénomène d'impact de goutte est un problème largement présent au quotidien

Dans la nature



Pulvérisation d'engrais ou d'insecticide

Dans l'industrie



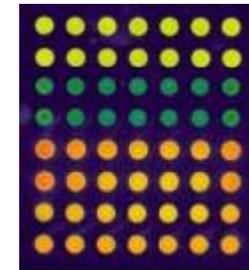
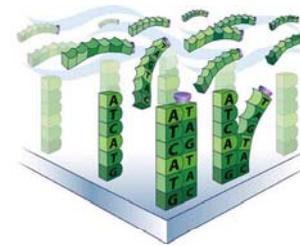
Impression numérique: collection de points de couleur

Introduction

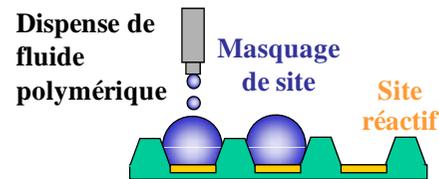
Des domaines nouveaux: diagnostic médical (synthèse *in situ* d'oligonucléotides)



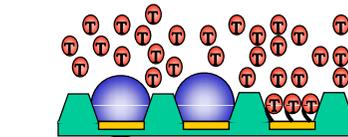
Prélèvement de l'échantillon



Hybridation sur puces à ADN



Masquage par le polymère



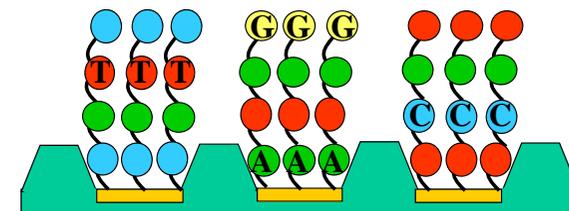
1^{er} couplage de Nucléotide



Déprotection



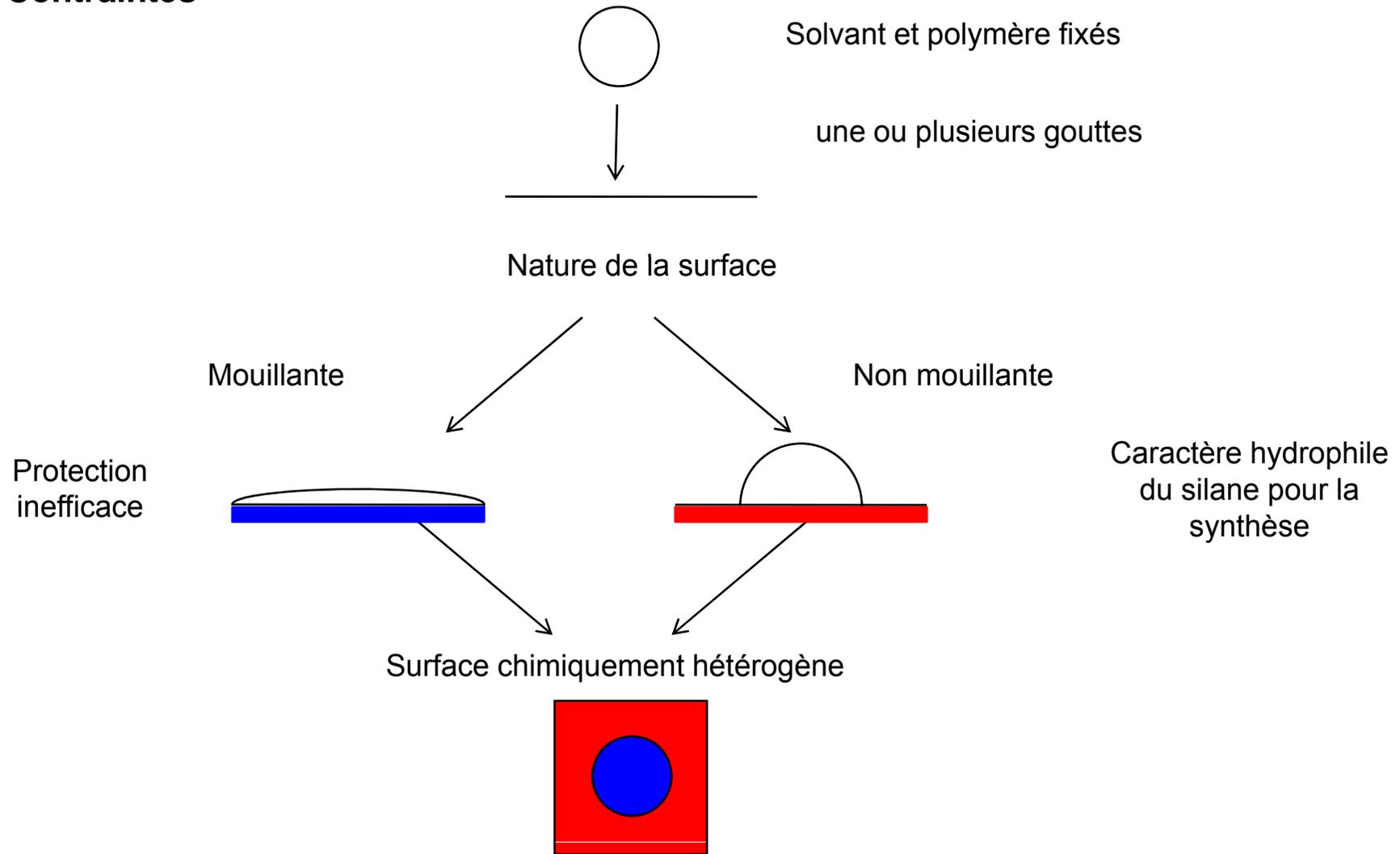
Répétition du processus



Oligonucléotides avec des séquences différentes sur dans chaque cuvette..

Introduction

Contraintes

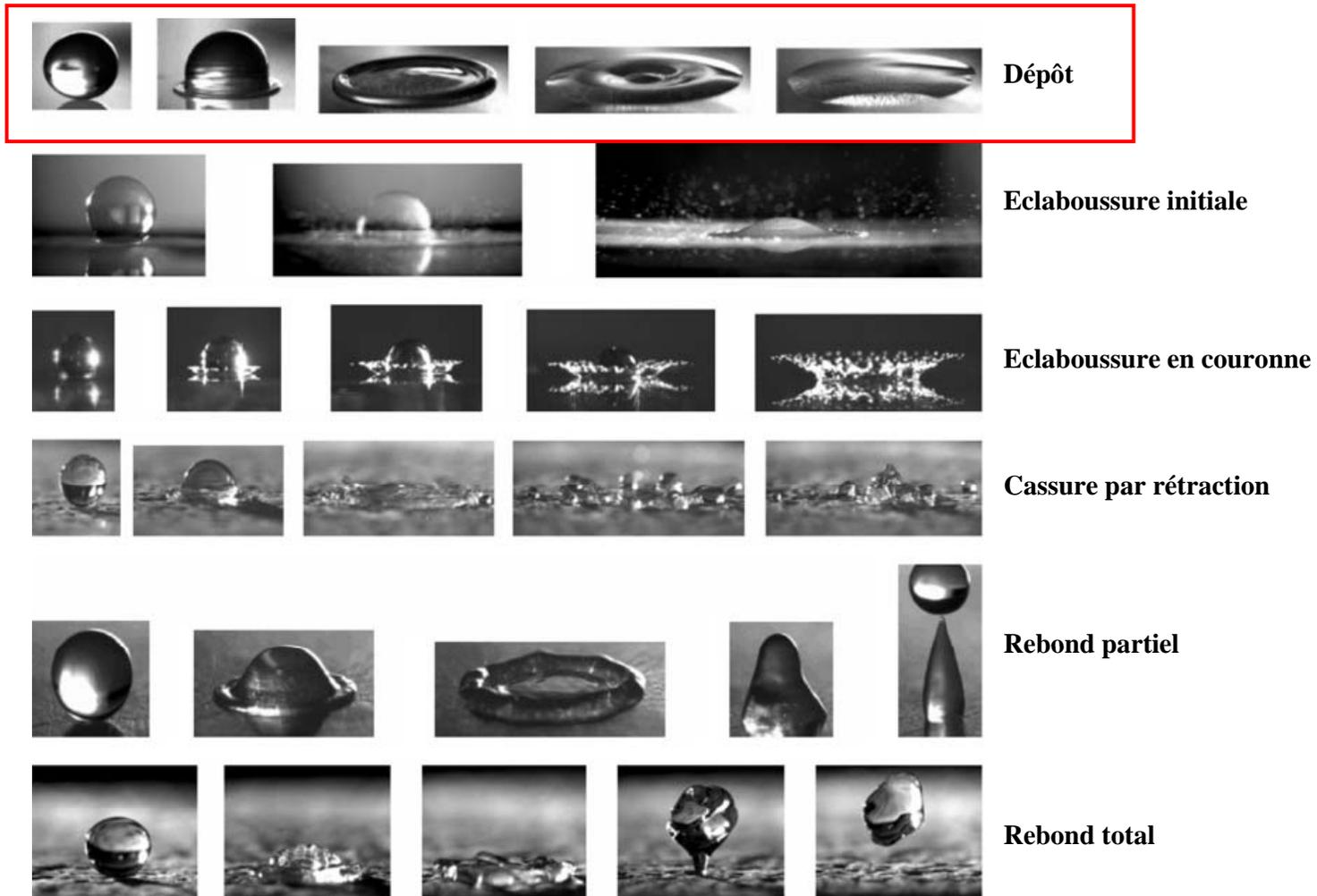


Plan général de la présentation

- Contexte Scientifique
- Dispositifs Expérimentaux
- Impact sur Surface Homogène
- Coalescence
- Impact sur Surface Hétérogène
- Conclusions et Perspectives

Contexte Scientifique

Phénomène d'impact



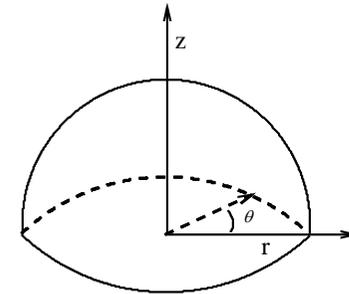
Les comportements possibles lors de l'impact d'une goutte

Tiré de Rioboo et al (2001), Atomization Sprays 11.

Nombres sans dimension

Échelles:

- Vitesse: vitesse d'impact **U**
- Longueur: diamètre initial de la goutte en vol **D₀**
- Temps: **t_c = D₀/U**



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

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

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

$$We = \frac{\rho D_0 U^2}{\sigma}, \quad Re = \frac{\rho D_0 U}{\mu},$$

$$Mc = \frac{U}{c}, \quad Fr = \frac{U^2}{g D_0}$$

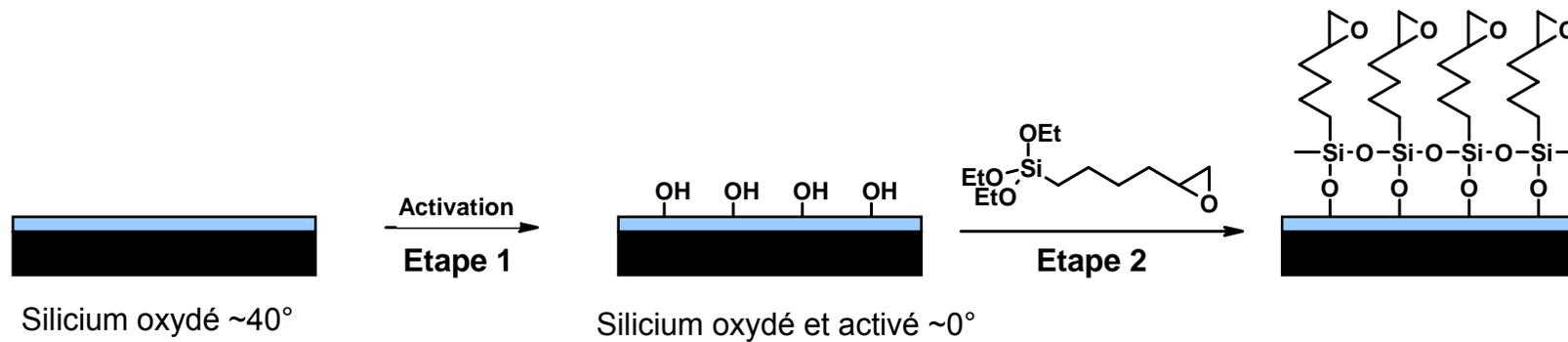
	We	Re	Mc	Fr
D ₀ = 2mm, U = 0.5m/s, ρ = 1000kg/m ³ , μ = 1 mPa.s σ = 73mN/m	6.8	1000	3.3 · 10⁻⁴	1.7
D ₀ = 50μm, U = 5m/s, ρ = 1000kg/m ³ , μ = 10 mPa.s σ = 30mN/m	41	25	3.3 · 10⁻⁴	5.1 · 10⁴

Dispositifs Expérimentaux

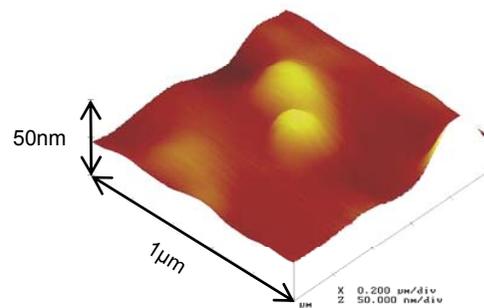
Surfaces modèles

Surfaces parfaitement caractérisées

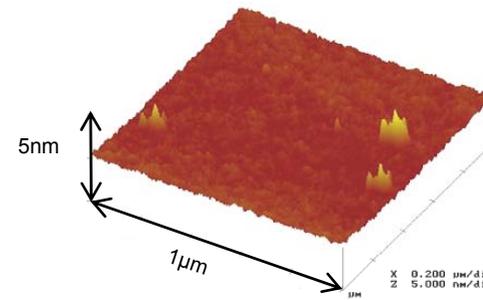
Large gamme de mouillabilité: de **5° à 110°**



Rugosité faible et très peu variable entre les plaques (mesure AFM: de 5 à 50 nm)



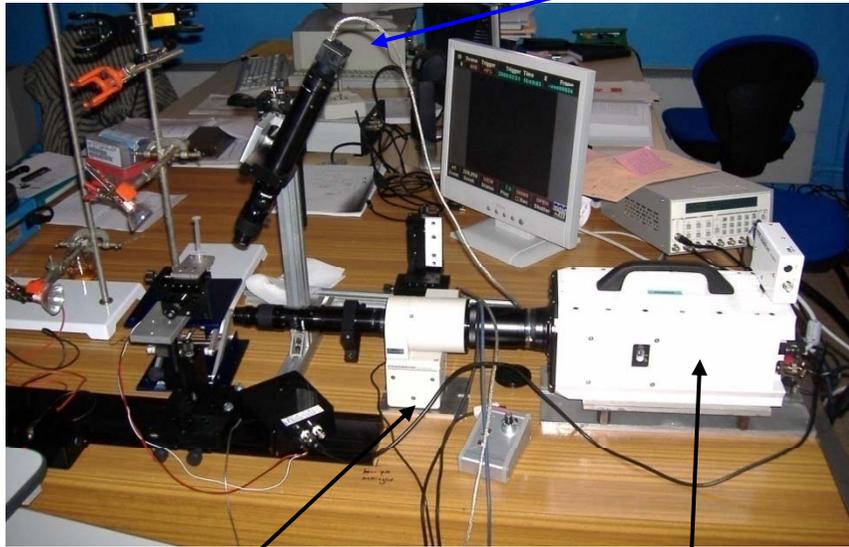
Silicium oxydé



Silicium silanisé

Dispositifs de visualisation

Camera CCD

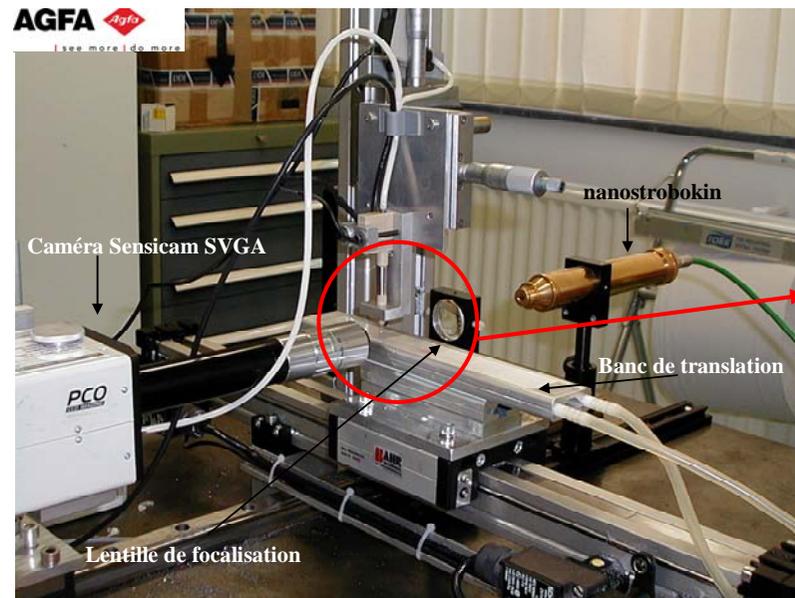


Intensificateur de lumière

Obturation de 10ns à 1µs

Camera Nac

Jusqu'à 168 000 i/s

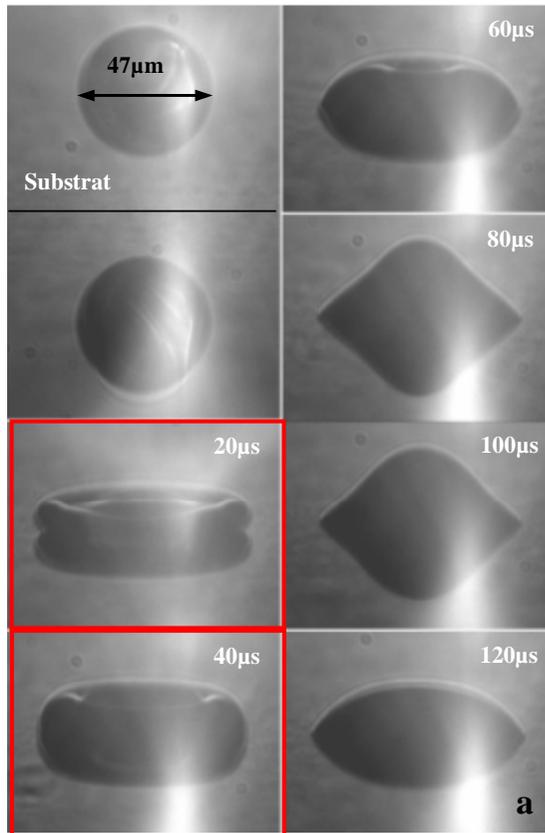


20000 flashes / seconde

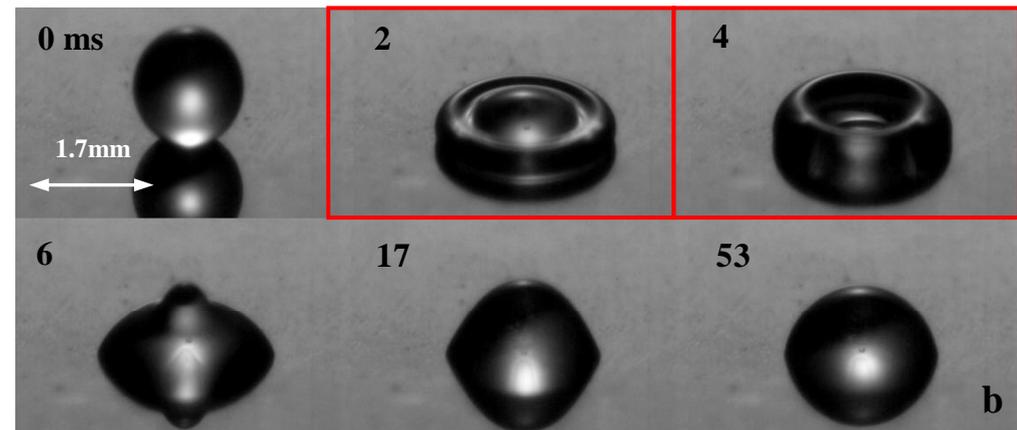
Durée de 20ns

Mourougou-Candoni et al (1997), Journal of Colloid and Interface Science, vol.192
Rozhkov et al (2002), Physics of Fluids, vol.14

Dispositifs de visualisation



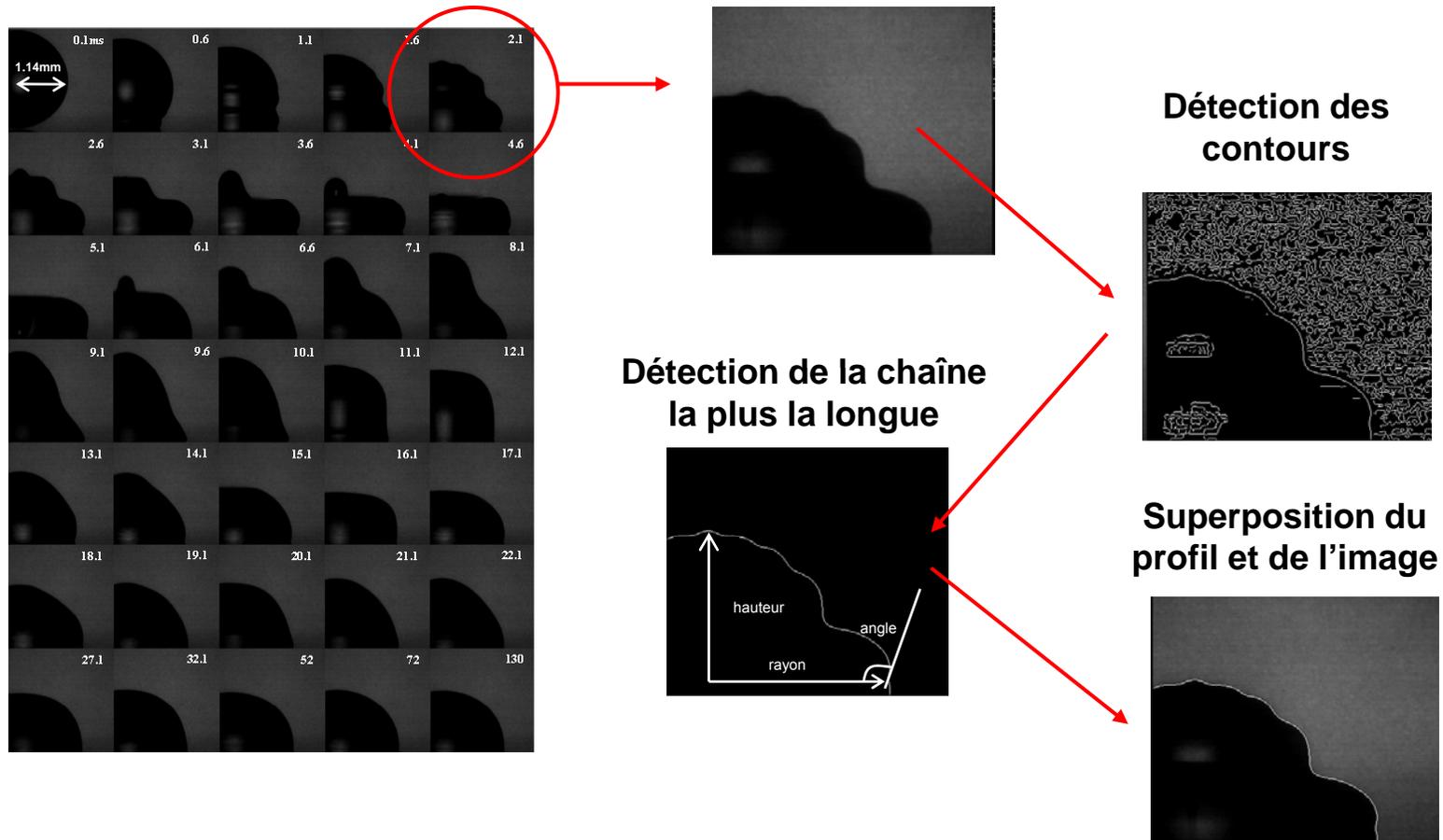
$We = 12.7, Re = 44$



$We = 15.6, Re = 62$

Traitement automatique d'image

Traitement d'image spécifique et automatique (boîtes à outils Matlab ®, développement d'une interface utilisateur)

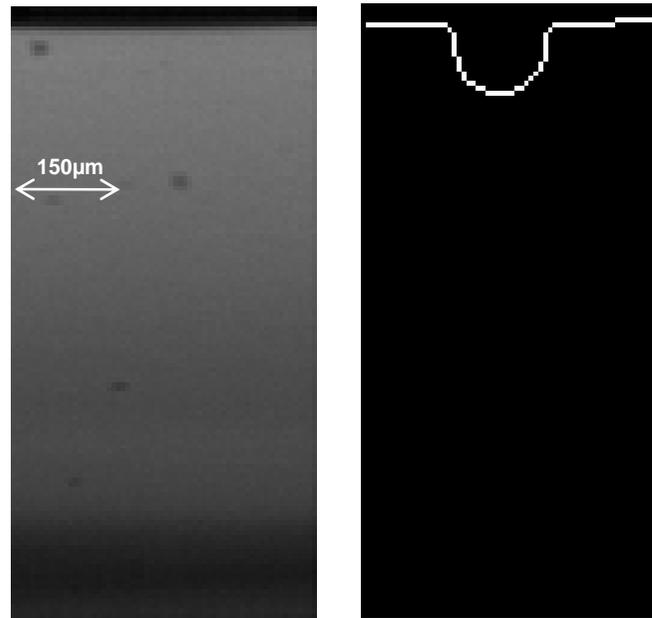


Incertitude de détection: 1 pixel soit 7 μ m

Traitement automatique d'image

Mécanisme d'éjection

Cinématographie rapide (Phantom v4.2)
Lumière continue (50W)



Fréquence: 40000 i/s

Filtre « Canny »

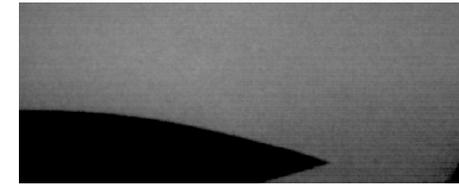
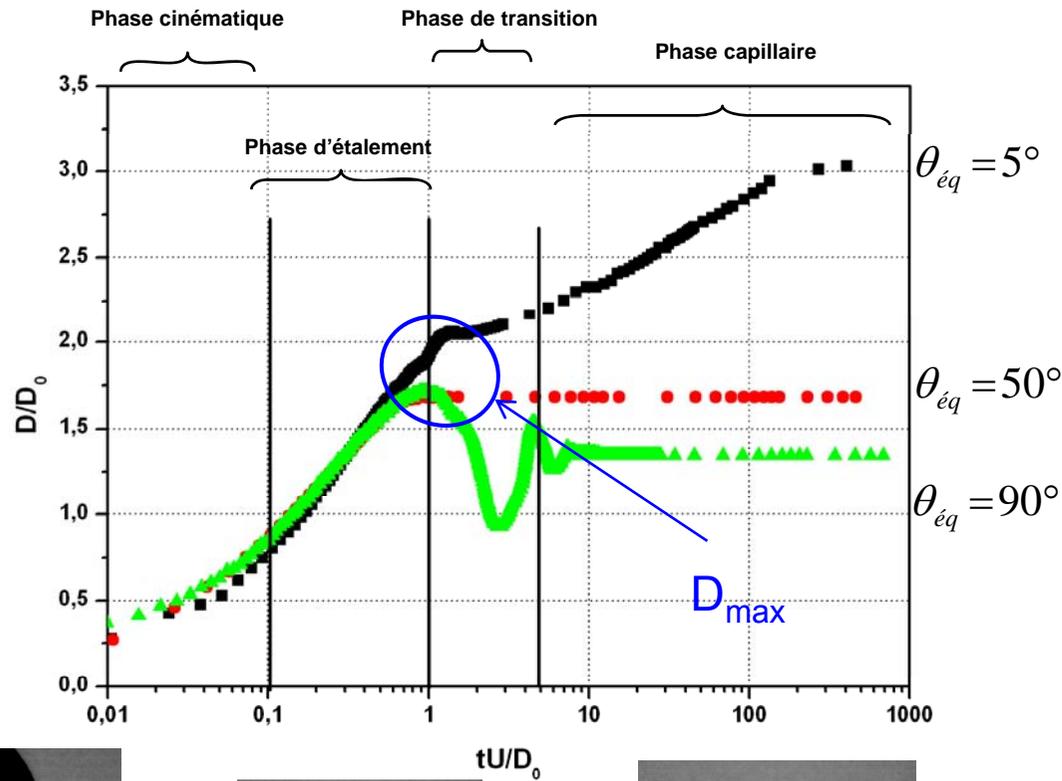
Obturation à 2 μ s

D_{buse} : 150 μ m

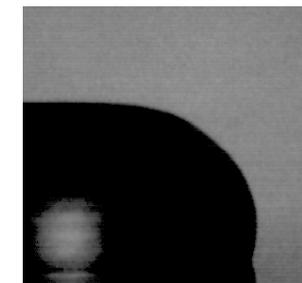
Incertitude: 1 pixel soit 2 μ m

Impact sur Surface Homogène

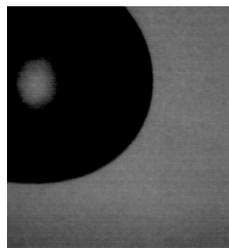
Les différentes phases



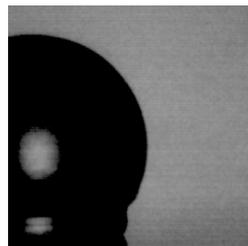
Phase capillaire: étalement capillaire



Phase capillaire: oscillations



Phase cinématique

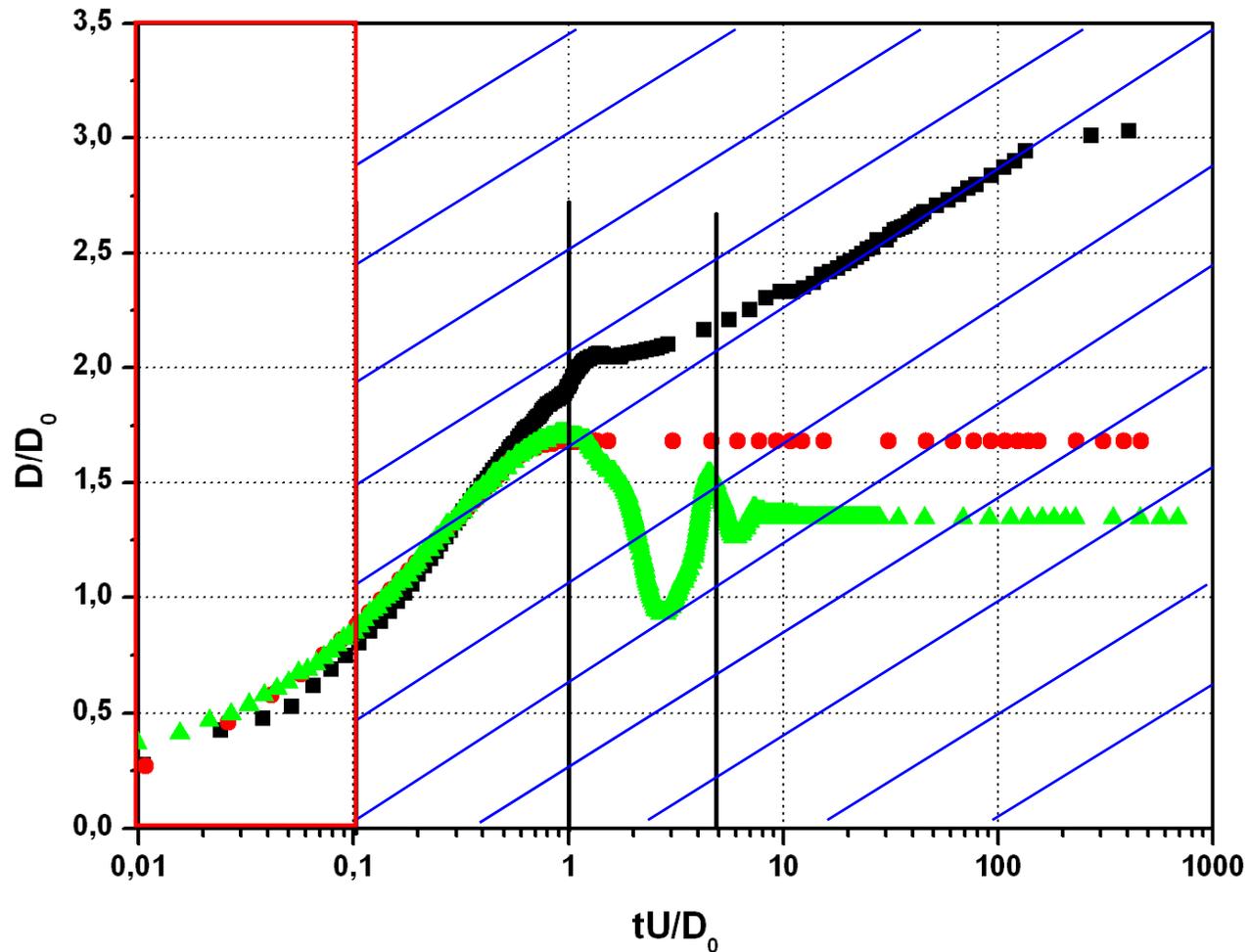


Phase d'étalement

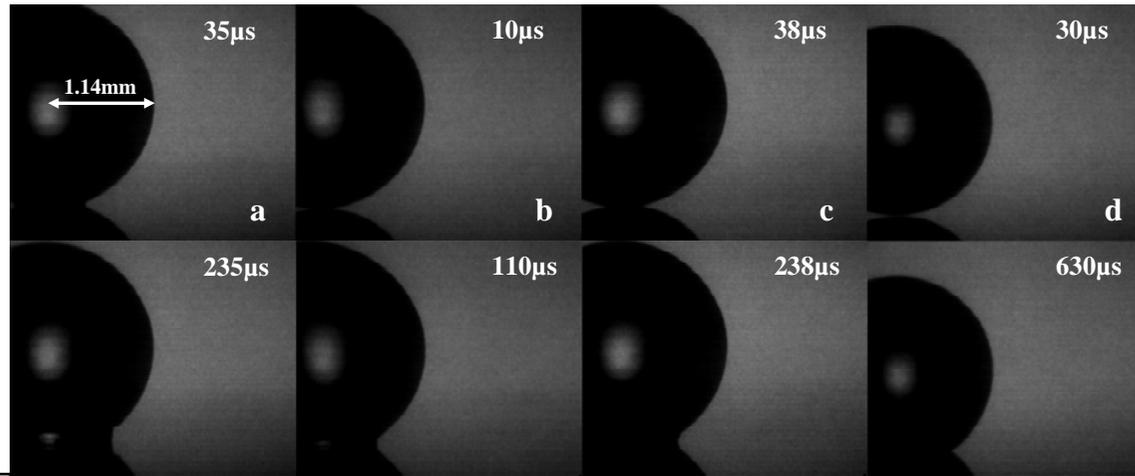


Phase de transition

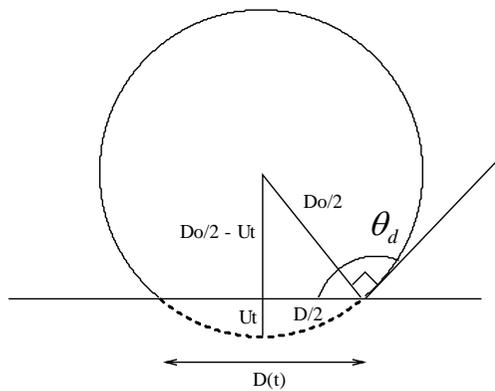
La phase cinématique



La phase cinématique



U (m/s)	0.35	1	0.35	0.35
μ (mPa.s)	1	1	1	100
θ_{éq} (°)	35°	35°	90°	35°



$$\frac{D(t)}{D_0} = 2\beta \sqrt{\frac{t}{t_c} \left(1 - \frac{t}{t_c}\right)}$$

$$\frac{U_{CL}}{U} = \frac{\beta}{2} \frac{1 - 2\frac{t}{t_c}}{\sqrt{\frac{t}{t_c} \left(1 - \frac{t}{t_c}\right)}}$$

$$\theta_d(t) = \frac{180}{\pi} \left(\frac{\pi}{2} + \arccos\left(\frac{D(t)}{D_0}\right) \right)$$

β = paramètre ajustable

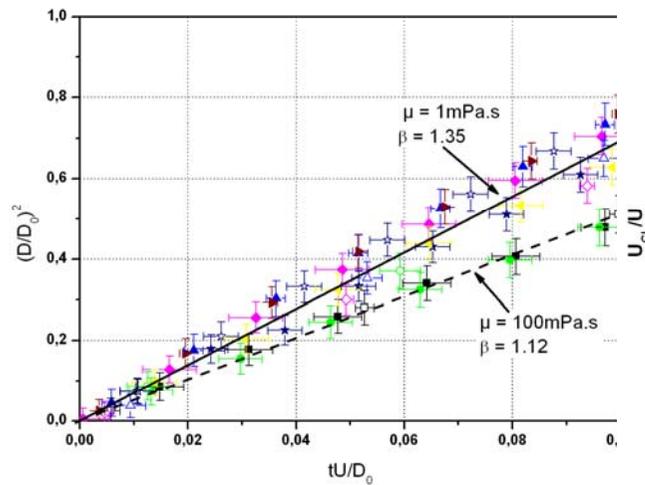
La phase cinématique

Évolution du diamètre de contact

$$\frac{D(t)}{D_0} = 2\beta \sqrt{\frac{t}{t_c} \left(1 - \frac{t}{t_c}\right)}$$

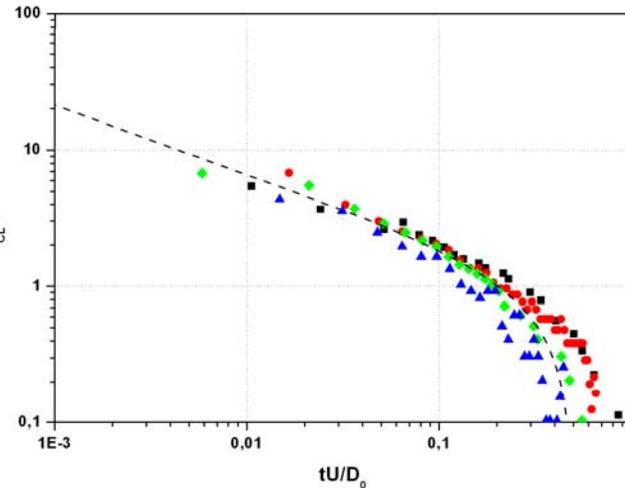
$$\frac{U_{CL}}{U} = \frac{\beta}{2} \frac{1 - 2\frac{t}{t_c}}{\sqrt{\frac{t}{t_c} \left(1 - \frac{t}{t_c}\right)}}$$

$$\theta_d(t) = \frac{180}{\pi} \left(\frac{\pi}{2} + \arccos\left(\frac{D(t)}{D_0}\right) \right)$$



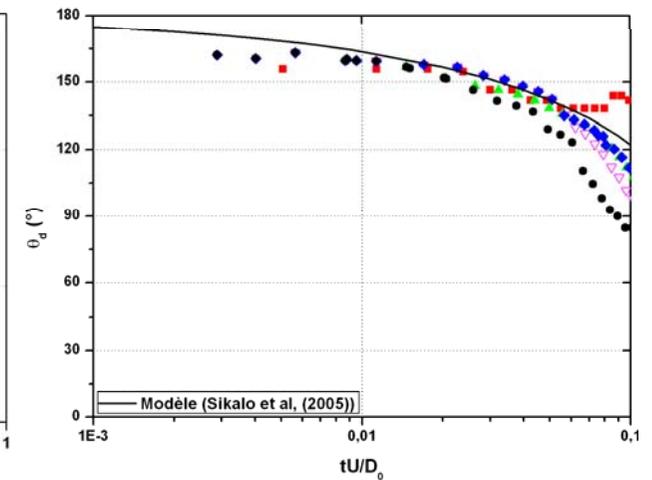
$\theta_{\text{éq}} \in [5; 110]$

$U \in [0.3; 1]$



$\mu (\text{mPa.s}) \in [1; 100]$

$U (\text{m/s}) \in [0.3; 1]$



$\theta_{\text{éq}} \in [5; 110]$

$U = 0.5 \text{ m/s}$

Sikalo et al (2005) Physics of Fluid vol. 17

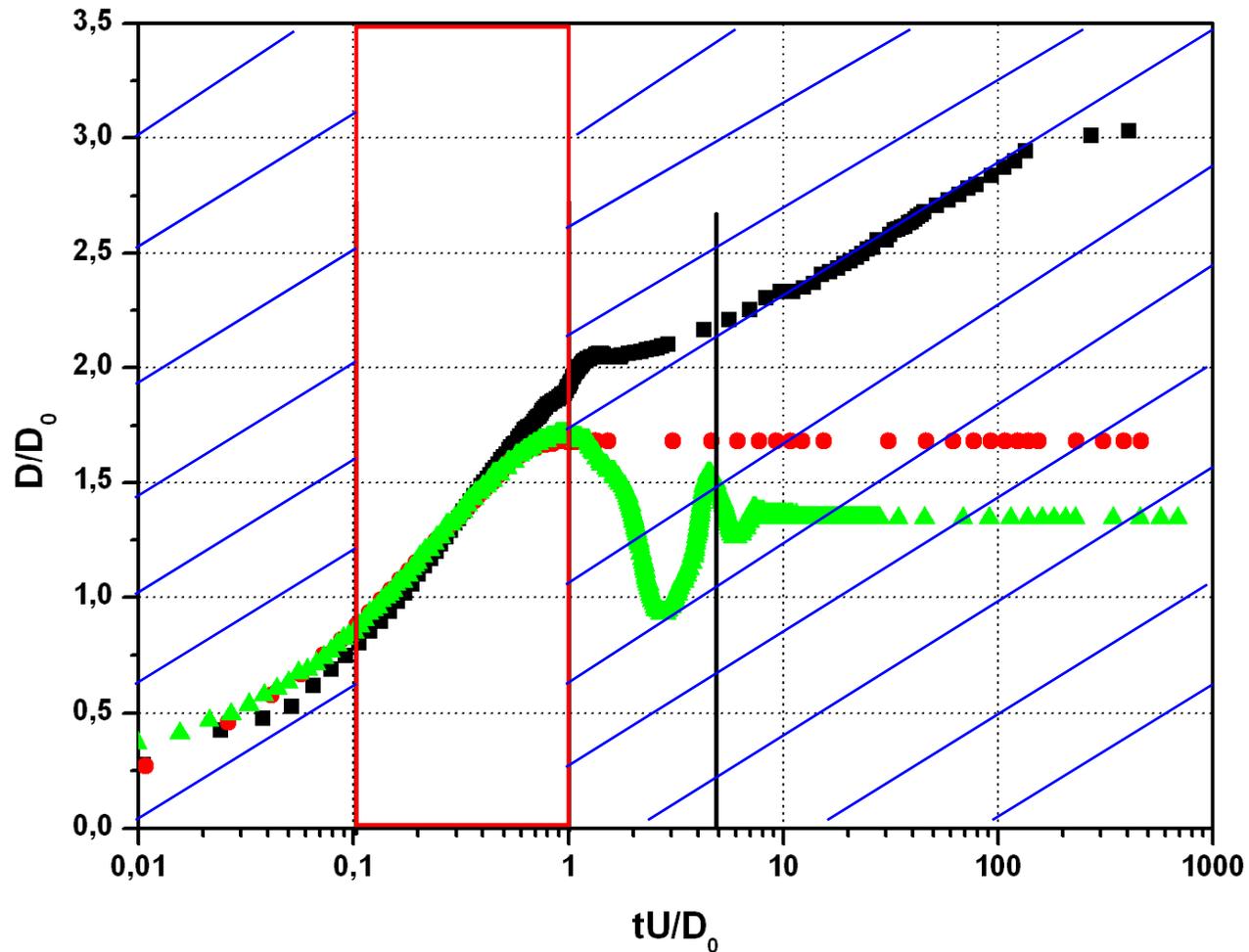
Résumé

Phase cinématique:

Bon accord entre modèles géométriques et expériences

Paramètre ajustable dépendant de la viscosité

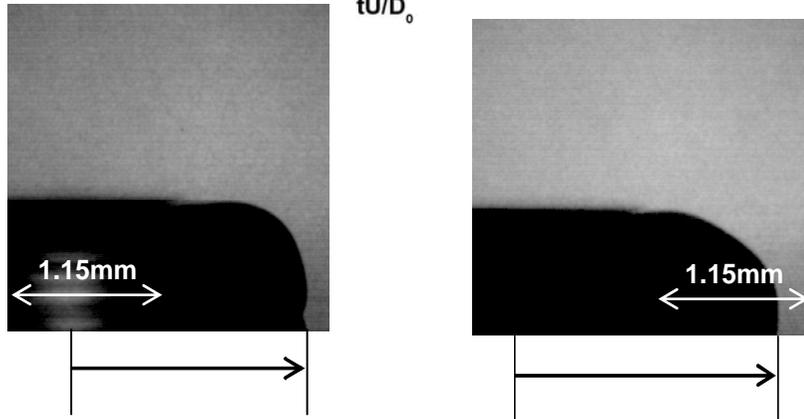
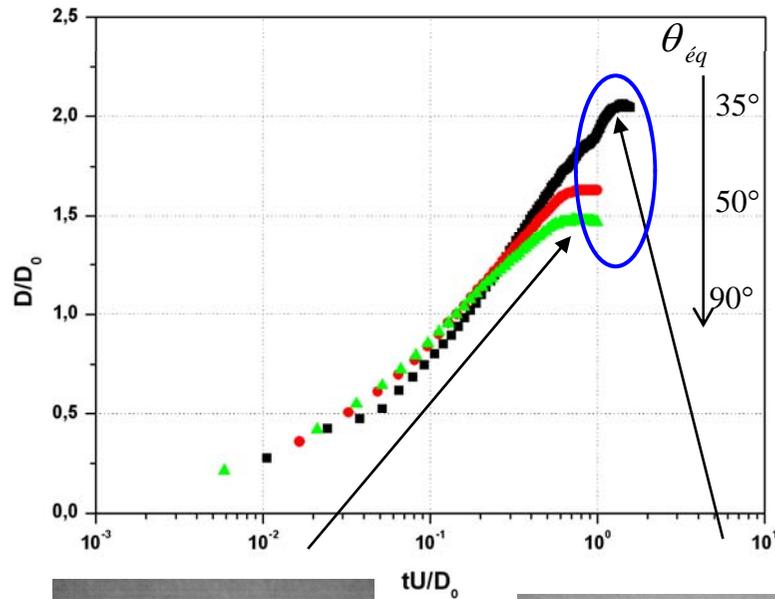
La phase d'étalement



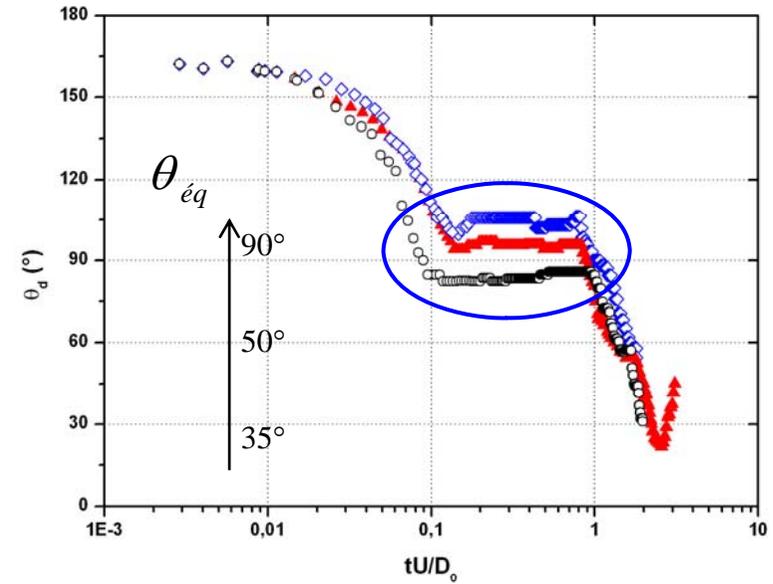
La phase d'étalement

Effet de la mouillabilité de la surface

Sur le diamètre de contact



Sur l'angle de contact dynamique

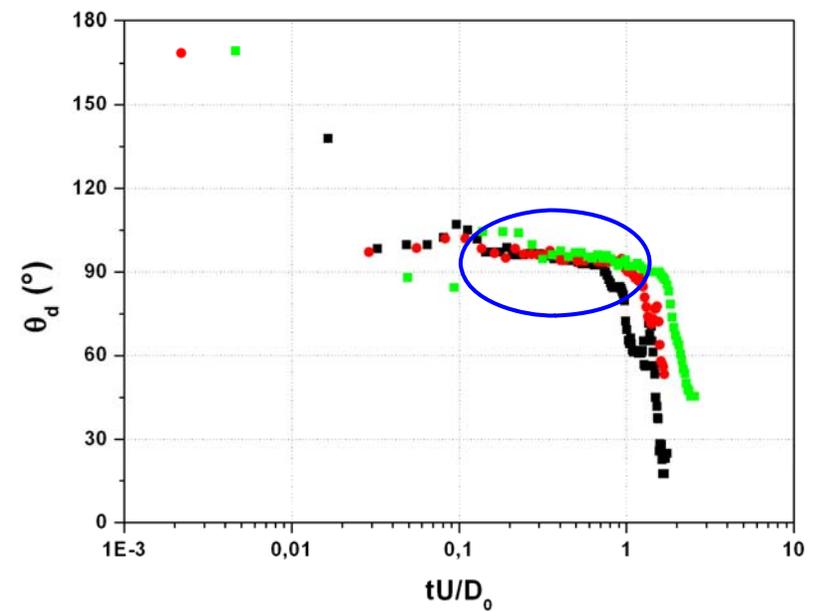
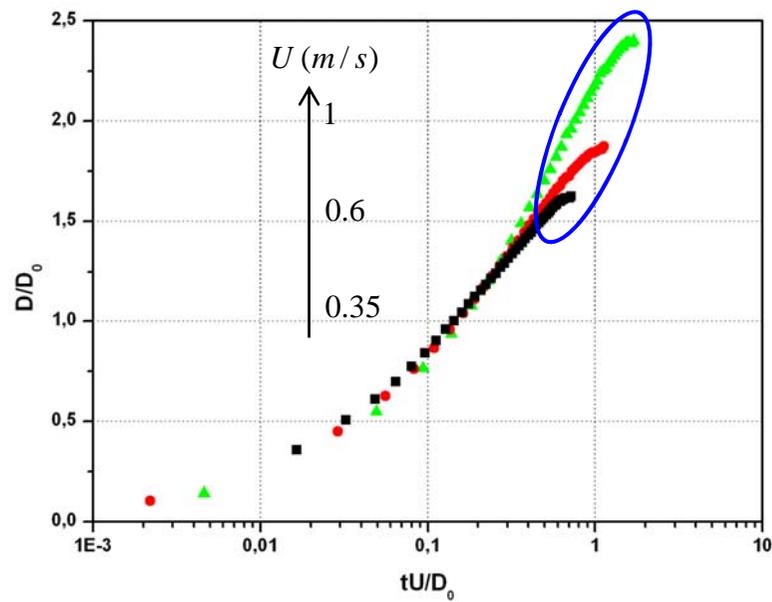


$$D_0 = 2.28\text{mm}, \mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}, \sigma = 73\text{mN/m}, U = 0.35\text{m/s}$$

La phase d'étalement

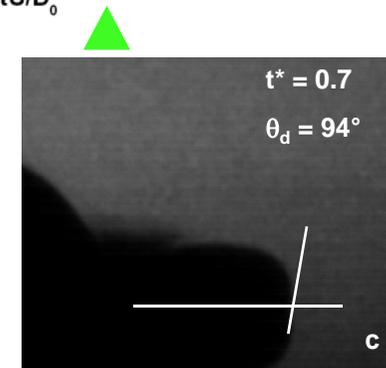
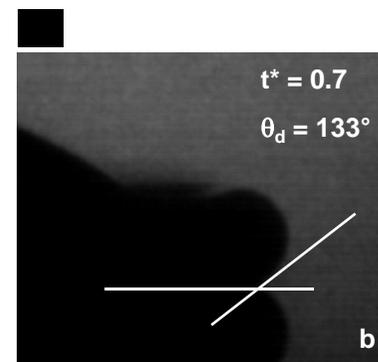
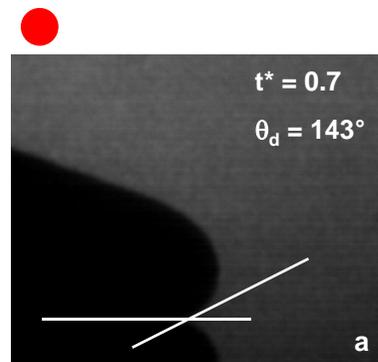
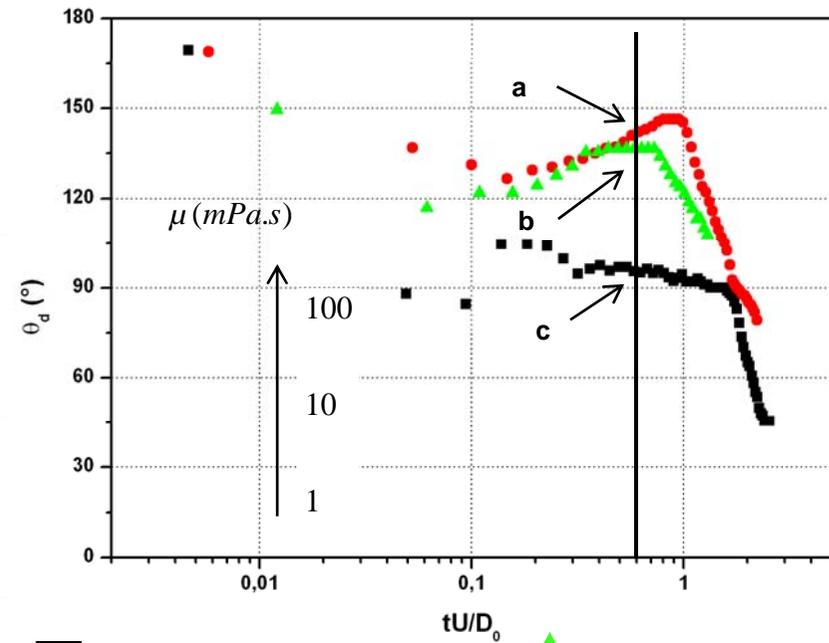
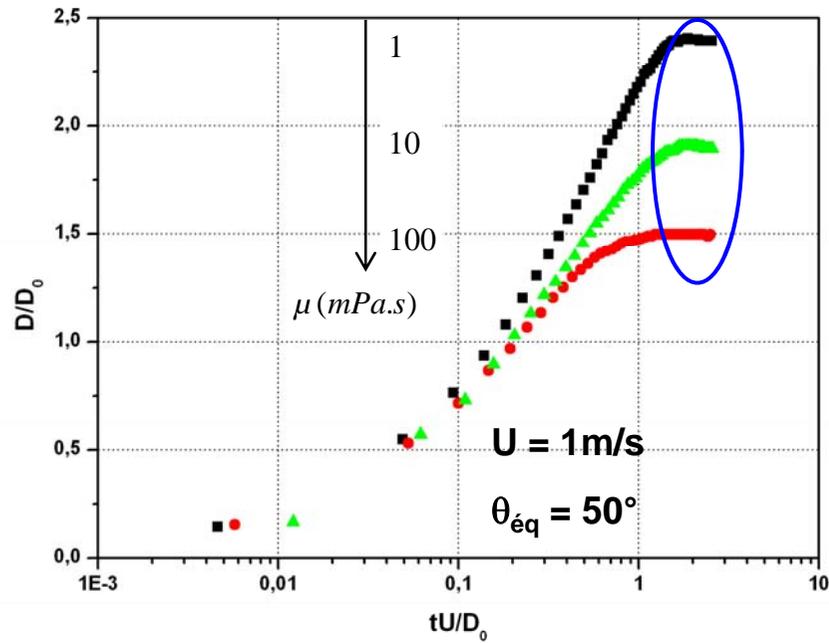
Effet de la vitesse d'impact

$D_0 = 2.28\text{mm}$, $\mu = 1\text{mPa.s}$, $\sigma = 73\text{mN/m}$, $\theta_{\text{éq}} = 50^\circ$



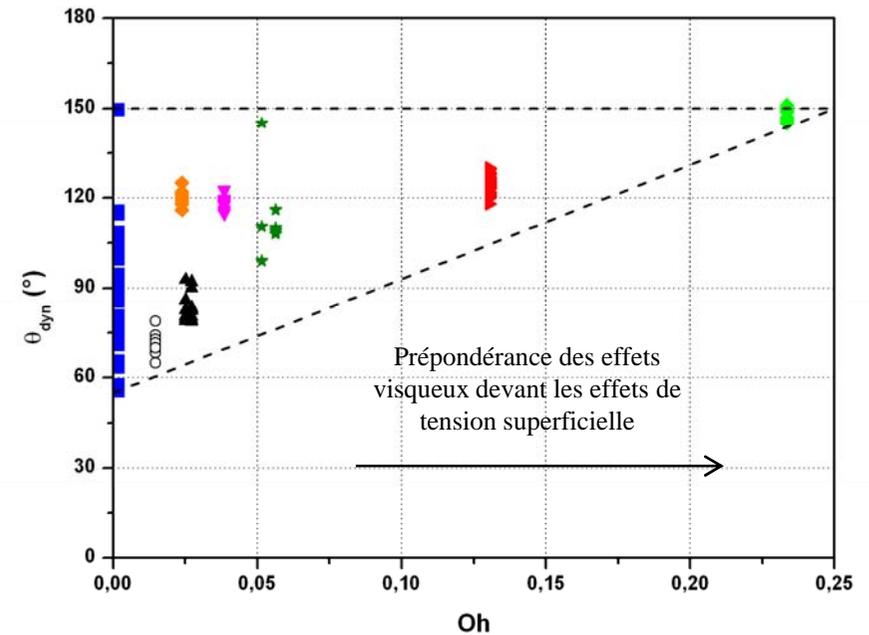
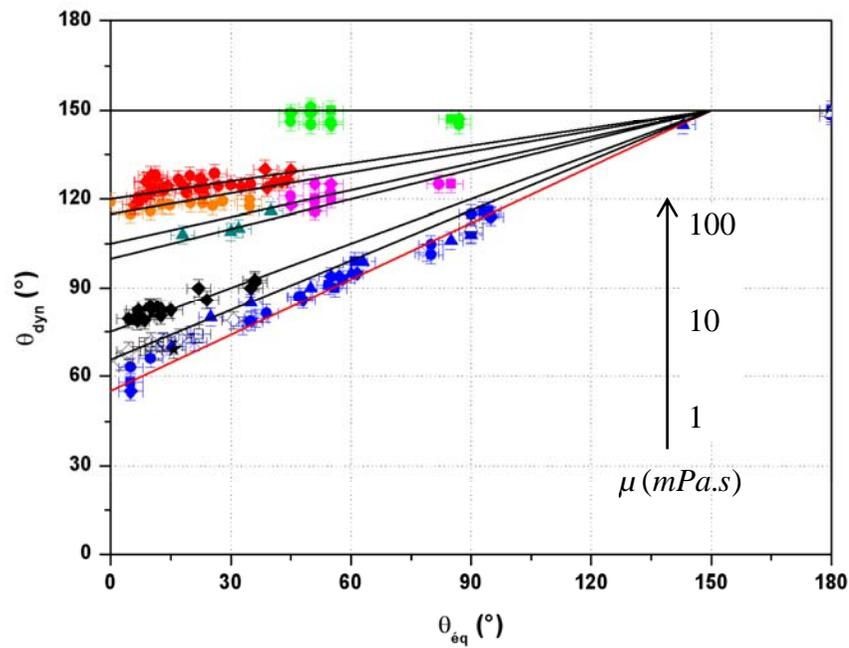
La phase d'étalement

Effet de la viscosité



La phase d'étalement

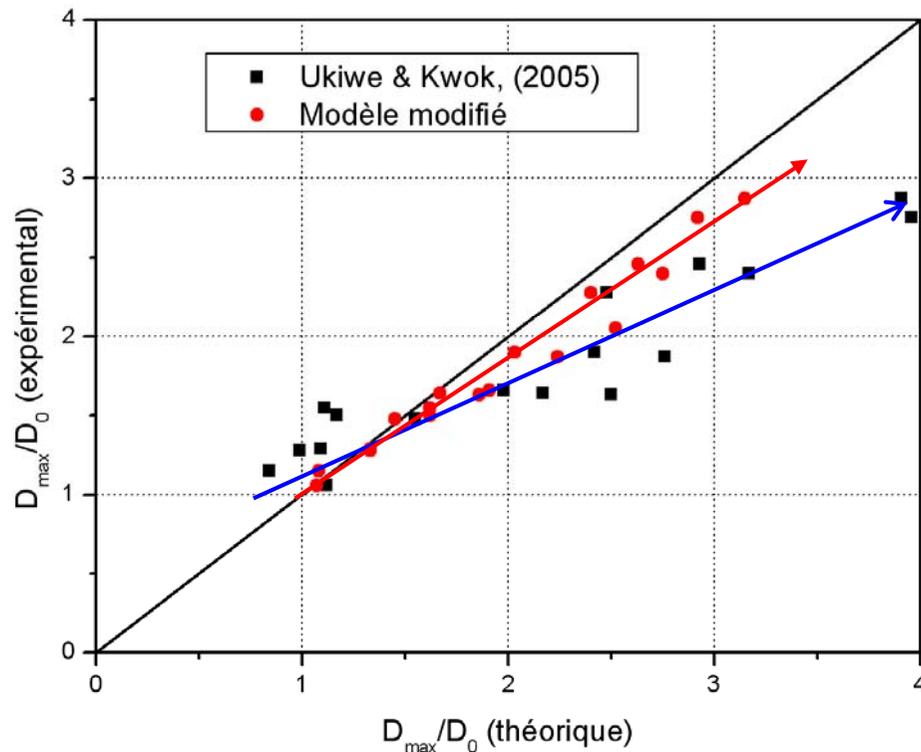
Angle de contact dynamique



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

La phase d'étalement

Détermination du diamètre à l'étalement maximum le modèle de Ukiwe & Kwok (Langmuir, 2005)



Modèle de Ukiwe & Kwok

(Langmuir, 2005)

$$(We + 12) \frac{D_{\max}}{D_0} = 8 + \left(\frac{D_{\max}}{D_0} \right)^3 \left[3(1 - \cos \theta_{av}) + 4 \frac{We}{\sqrt{Re}} \right]$$

Modèle modifié

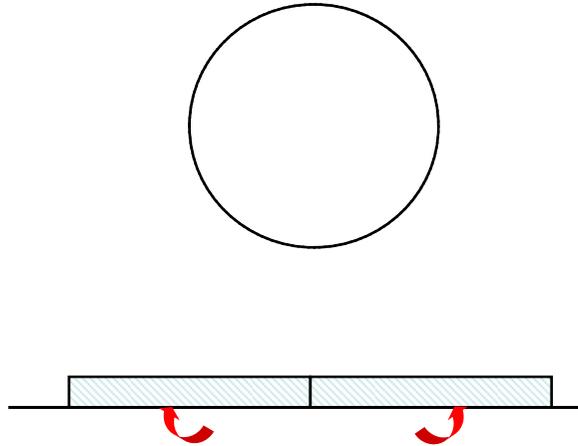
$$(We + 12) \frac{D_{\max}}{D_0} = 8 + \left(\frac{D_{\max}}{D_0} \right)^3 \left[3(1 - \cos \theta_{dyn}) + \frac{3}{2} \delta \frac{We}{\sqrt{Re}} \right]$$

$$1t_c \leq \delta \leq \frac{8}{3}t_c$$

δ correspond au temps que met la goutte pour atteindre l'étalement maximum

La phase d'étalement

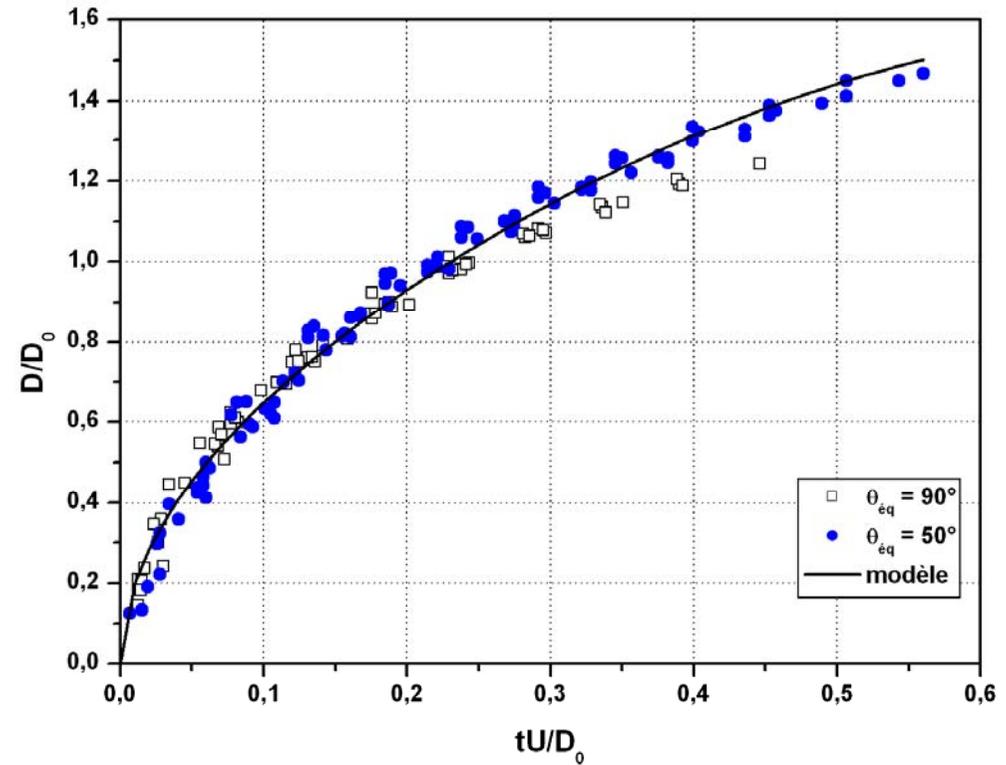
Évolution temporelle du diamètre de contact



$$\frac{D(t)}{D_0} = \sqrt{4 \frac{t}{t_c} + \left(\frac{2D_0}{h(t)} - 4\right) \left(\frac{t}{t_c}\right)^2 - \frac{4}{3} \left(\frac{t}{t_c}\right)^3 \frac{D_0}{h(t)}}$$

avec

$$\frac{h(t)}{D_0} = \frac{2}{3} \frac{D_0^2}{D_{\max}^2 (1 - \exp(-\frac{t}{t_c}))}$$



Résumé

Phase d'étalement:

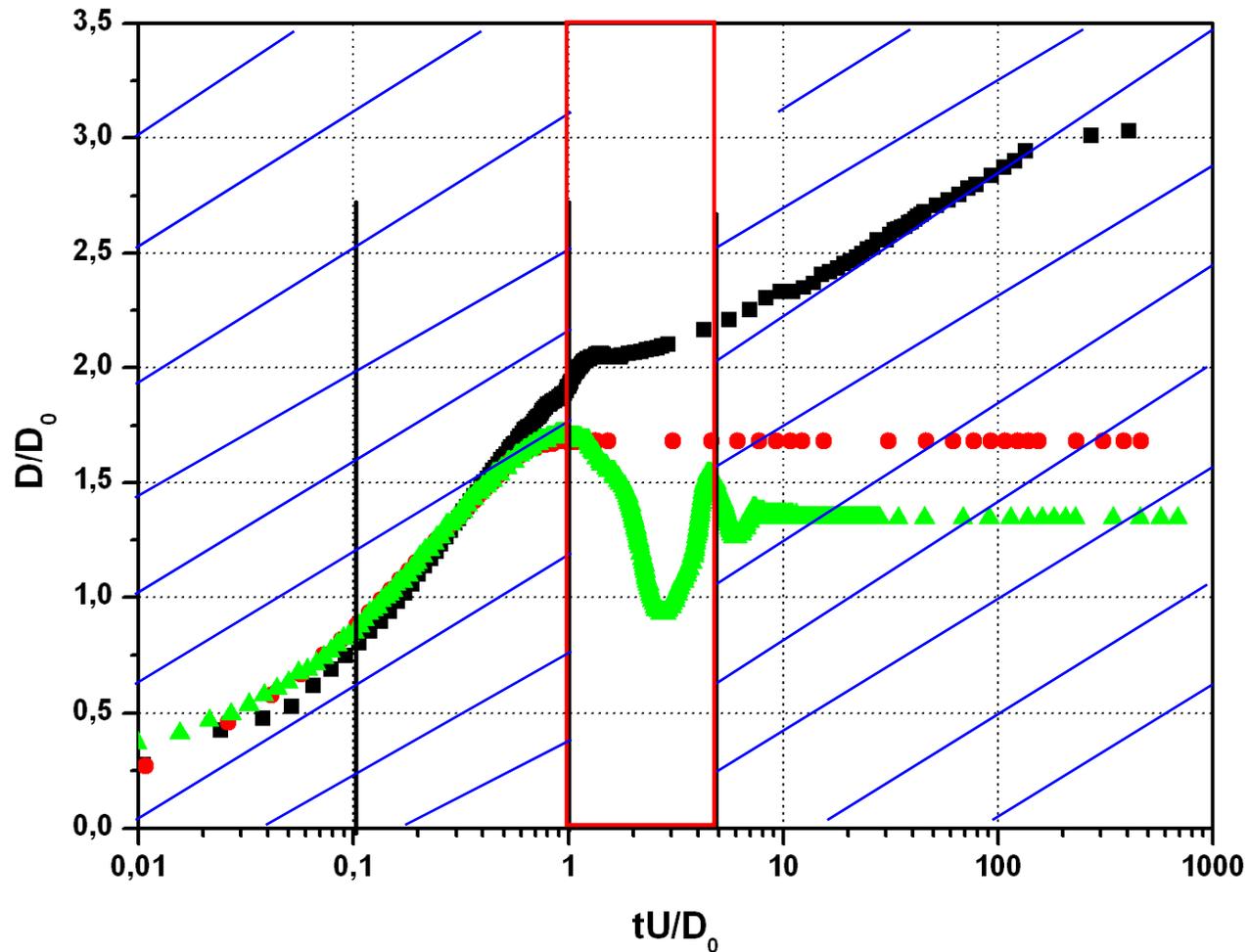
Influence de l'angle d'équilibre sur le diamètre maximum

Dépendance de l'angle d'avancée dynamique vis-à-vis de la viscosité et de l'angle d'équilibre

Modèle énergétique pour l'étalement maximum

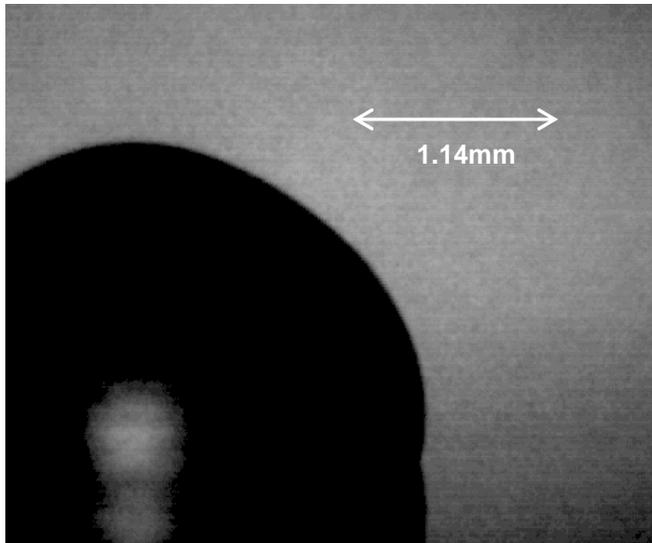
Modèle géométrique pour l'évolution temporelle du diamètre de contact

La phase de transition

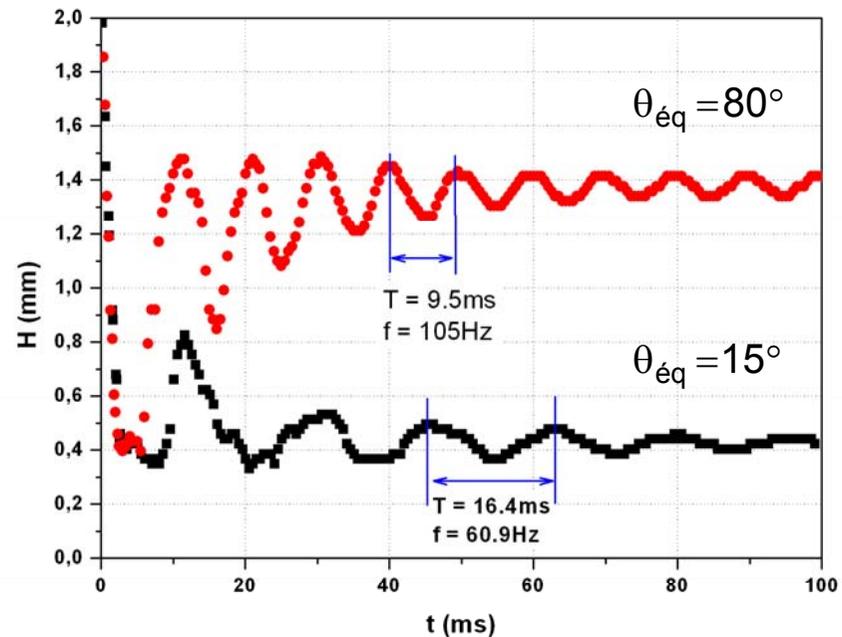


La phase de transition

Fréquence d'oscillation



Eau distillée, $D_0 = 2.28\text{mm}$,
 $U = 0.35\text{m/s}$, $\theta_{\text{éq}} = 90^\circ$



Fréquence d'oscillation
 d'une goutte dans l'air

$$f_{\text{air}} = \sqrt{\frac{\sigma}{\rho D_0^3}}$$

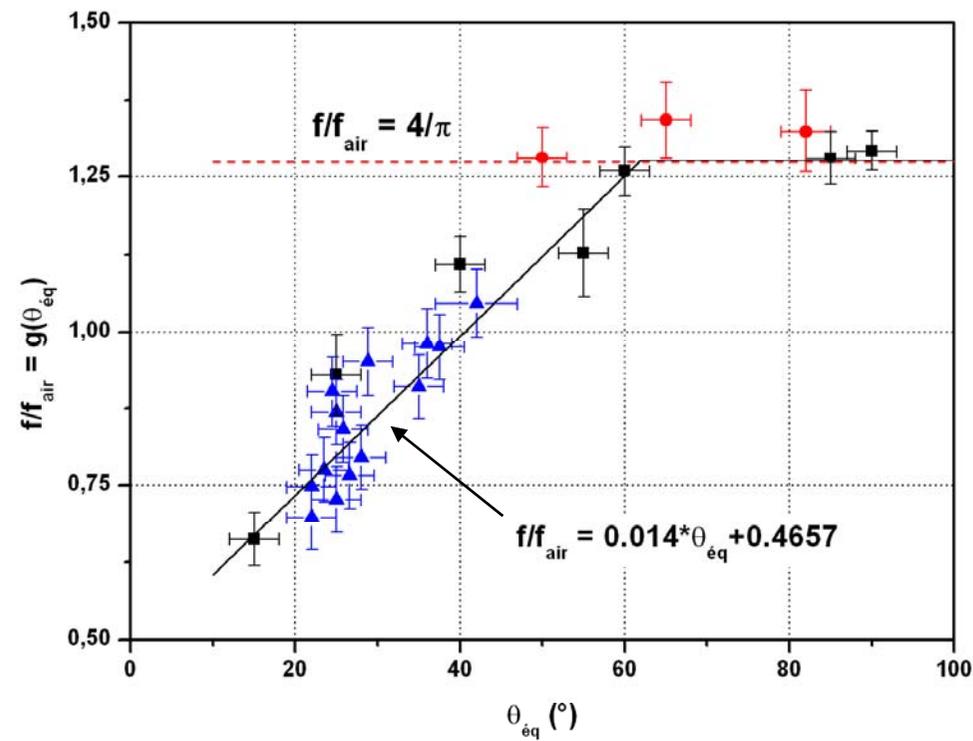


$$f = g(\theta_{\text{éq}}) \cdot f_{\text{air}}$$

Clift et al (1978) Academic, New York

La phase de transition

Fréquence d'oscillation



$\sigma(\text{mN/m}) \in [30; 73]$
 $\mu(\text{mPa.s}) \in [1; 30]$

La phase de transition

Détermination de la tension de surface de l'éthylène glycol

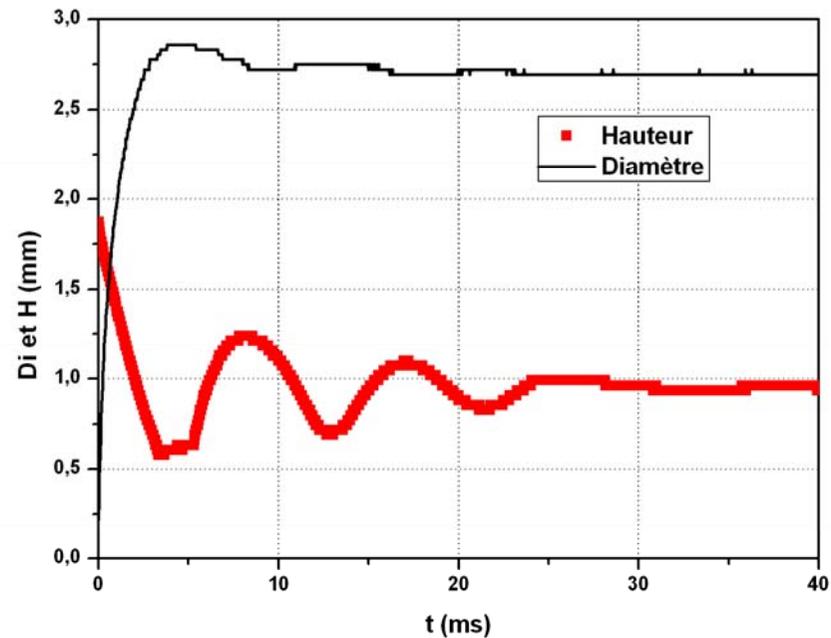
$$f = g(\theta_{\text{éq}}) \cdot f_{\text{air}} \quad \text{avec} \quad f_{\text{air}} = \sqrt{\frac{\sigma}{\rho D_0^3}}$$

$$f_{\text{exp}} = 109.6 \text{ Hz}$$

$$g(\theta_{\text{éq}}) = \frac{4}{\pi} = 1.27$$

$$\rho = 1078 \text{ kg/m}^3$$

$$D_0 = 1.84 \text{ mm}$$



$$\sigma_{\text{calculé}} = 49.75 \text{ mN/m} \pm 10\%$$

$$\sigma_{\text{litterature}} = 48 \text{ mN/m}$$

$$\sigma_{\text{mesuré}} = 48.9 \text{ mN/m (MBPM)}$$

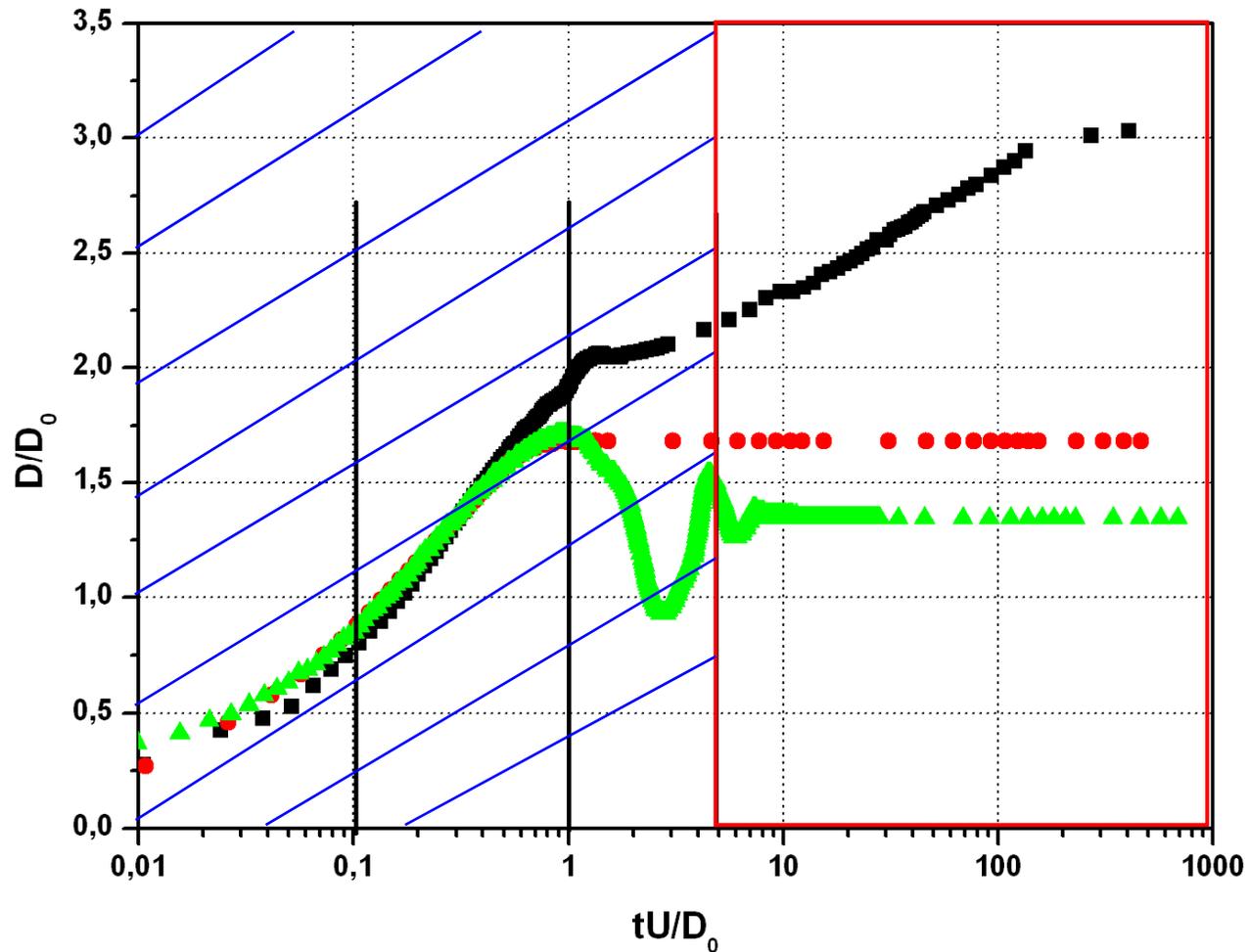
Résumé

Phase de transition:

Corrélation entre angle d'équilibre et fréquence d'oscillation

Mesure de la tension de surface à partir de la mesure de la fréquence

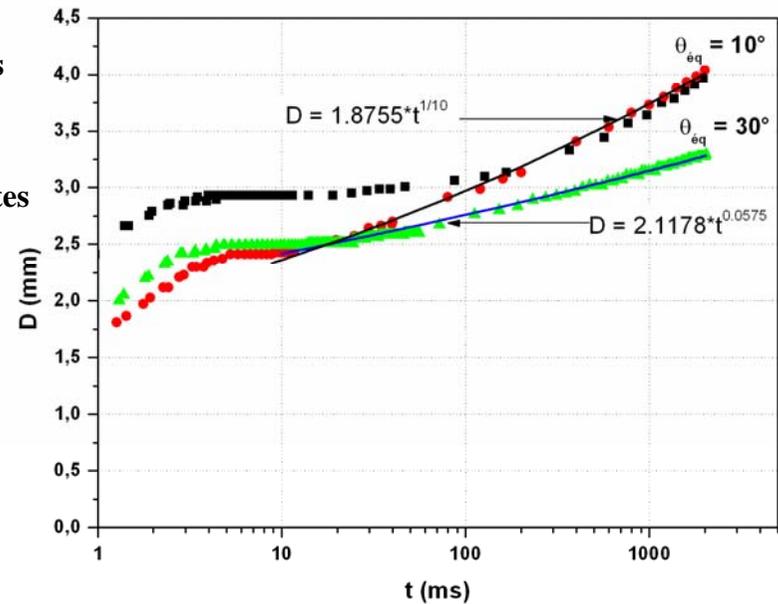
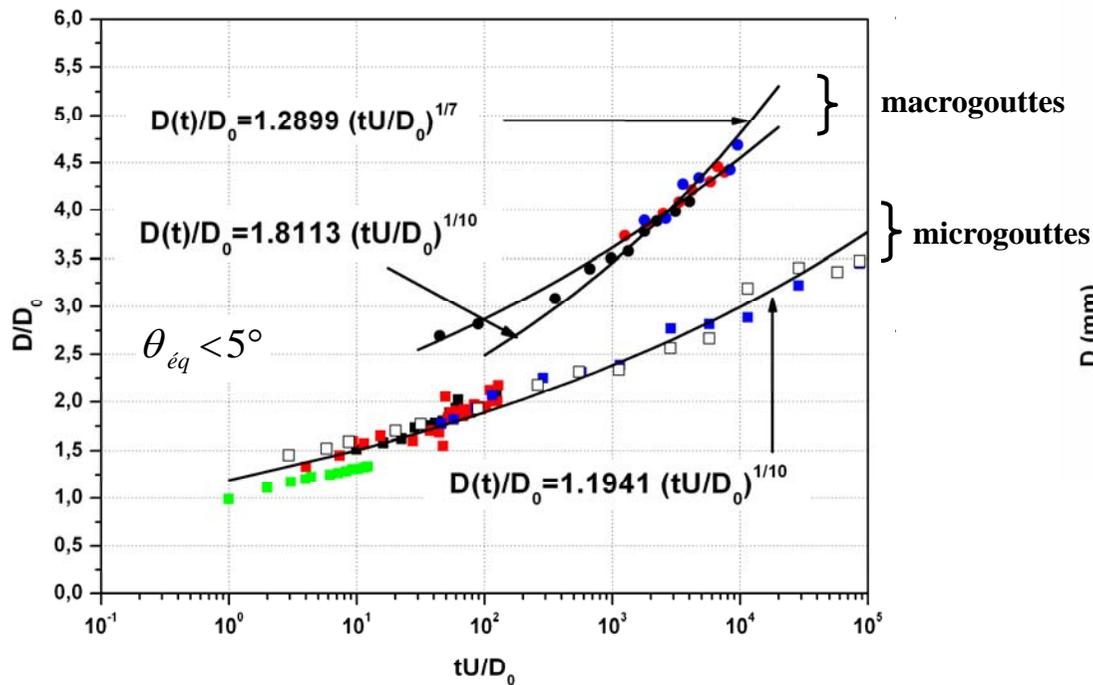
La phase capillaire



La phase capillaire

Régime asymptotique de la forme sur une surface complètement mouillante

$$D \approx \alpha t^n \quad \text{avec} \quad n = \frac{1}{10} \quad (1) \quad \text{ou} \quad n = \frac{1}{7} \quad (2)$$



(1) De Gennes (1985) Review of Modern Physics

(2) De Ruijter et al (2000) Langmuir vol.16

Résumé

Phase capillaire:

Influence de l'angle d'équilibre

Phase identique dans le cas du dépôt et dans le cas de l'impact

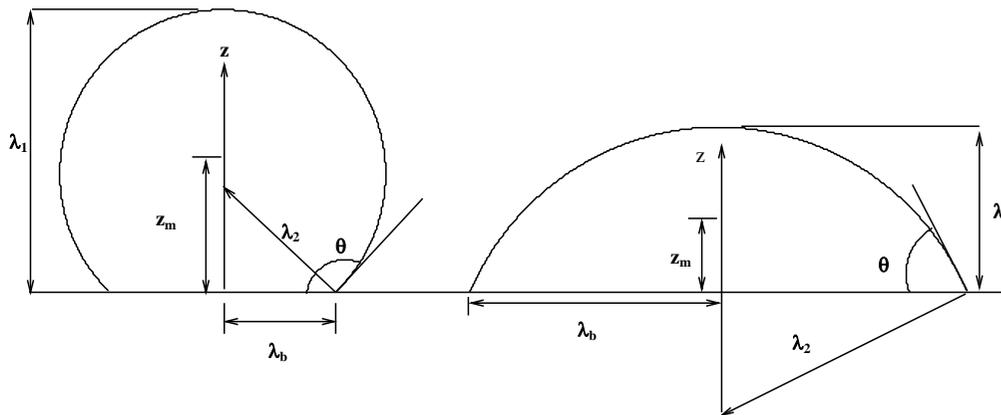
Similitude des mécanismes microgouttes/macrogouttes

Méthode Variationnelle: principe

Prédiction de l'évolution complète du diamètre de contact

Hypothèses:

- Géométrie axisymétrique fixe: sphère tronquée
- Variation d'énergie nulle entre deux instants
- Paramètre du problème « x »: hauteur sans dimension au centre de la goutte



$$\int_{t_1}^{t_2} [\delta E_c - \delta E_p + \delta W_f] dt = 0$$

E_c : énergie cinétique

E_p : énergie potentielle

W_f : travail des forces de dissipation au niveau de la ligne de contact

Conditions initiales

$$x(0) = 1$$

$$\left. \frac{dx}{dt} \right|_{r=0} = -\sqrt{We}$$

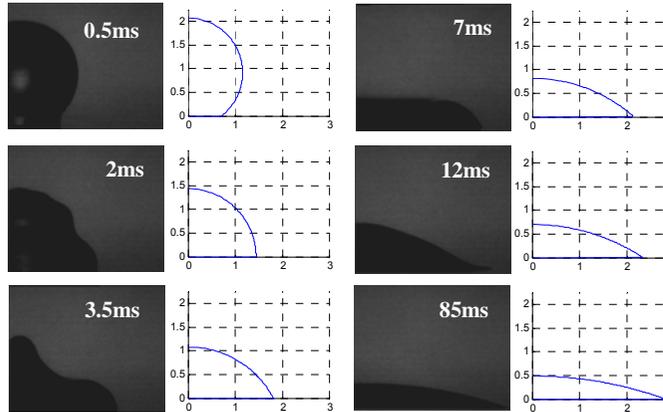
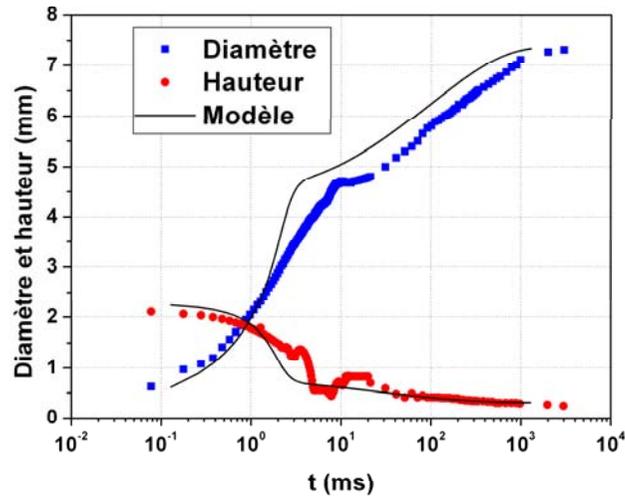
$$\frac{dx}{dt^*} = y$$

$$\frac{dy}{dt^*} = -\frac{1}{2A(x)} [A'(x)y^2 + VIS * B(x)y + 2L'(x)]$$

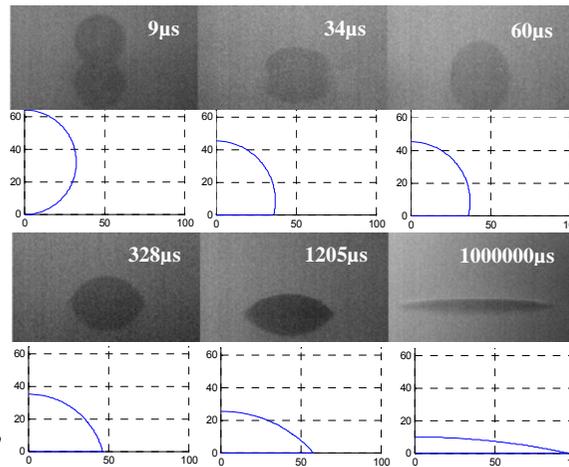
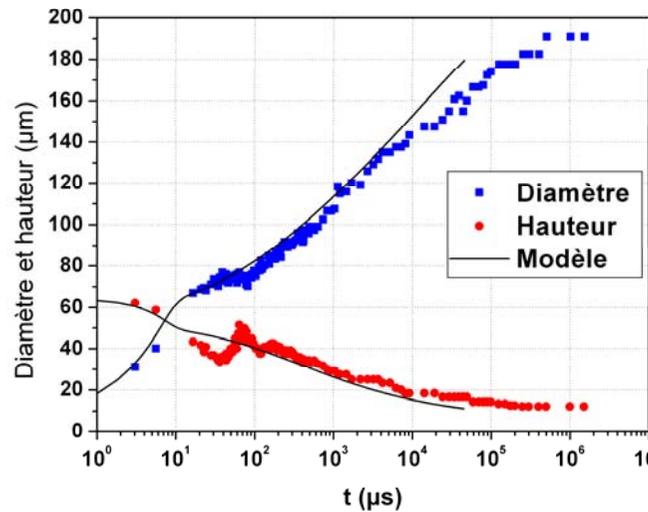
Contient le seul coefficient de dissipation F_d

(Bechtel et al (1881), INIST CNRS vol6

Comparaison avec l'expérience



$D_0 = 2.28\text{mm}$
 $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$
 $\sigma = 73\text{mN/m}$
 $We = 4$
 $Re = 800$
 $F_d = 6$
 $\theta_{\text{éq}} = 5^\circ$



$D_0 = 65\mu\text{m}$
 $\mu = 3.2\text{mPa}\cdot\text{s}$
 $\sigma = 33\text{mN/m}$
 $We = 3$
 $Re = 24$
 $F_d = 55$
 $\theta_{\text{éq}} = 10^\circ$

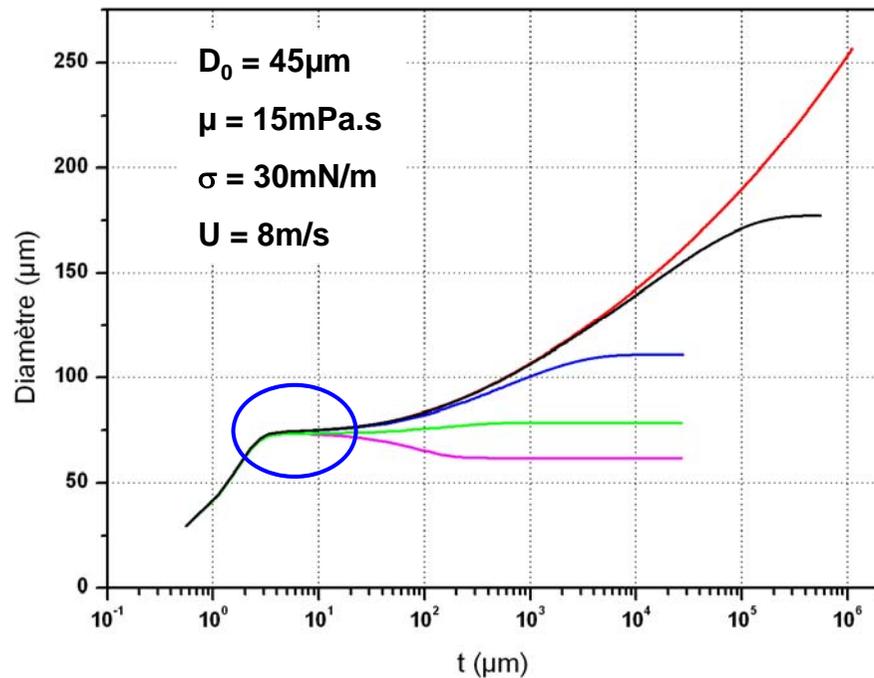
Un outil de prédiction

Utile dans la prédiction du diamètre de contact.

Doivent être connus:

l'angle d'équilibre

les nombres de Weber et Reynolds



Détermination de θ_{dyn} à partir de nos travaux



Permet de déterminer D_{max}

$$(We + 12) \frac{D_{max}}{D_0} = 8 + \left(\frac{D_{max}}{D_0} \right)^3 \left[3(1 - \cos\theta_{dyn}) + \frac{3}{2} \delta \frac{We}{\sqrt{Re}} \right]$$



Ajustement du coefficient F_d

0°
5°
20°
50°
80°
↓
 θ_{eq}

Résumé

Méthode Variationnelle:

Détermination de θ_{dyn} à partir de μ et $\theta_{\text{éq}}$

Détermination de D_{max} à partir de U , D_0

Ajustement du coefficient d'ajustement F_d dans la Méthode Variationnelle

Obtention de l'évolution temporelle complète du diamètre

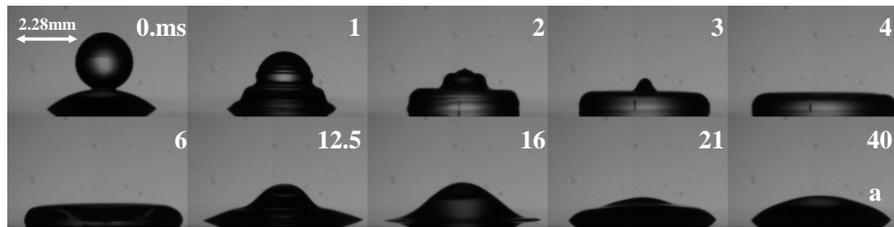
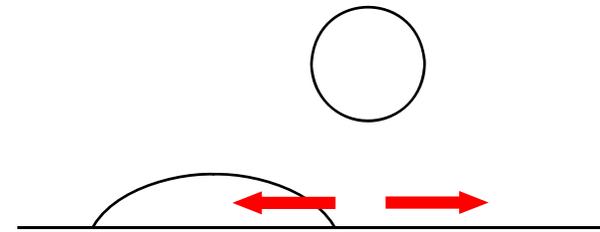
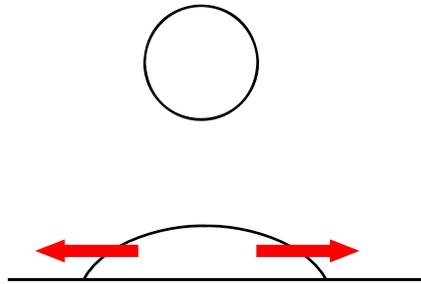
Coalescence

Coalescence

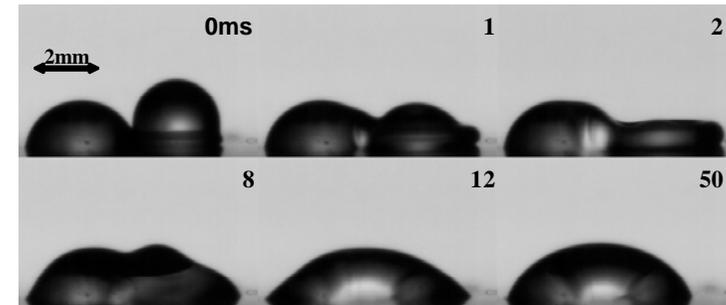
Deux cas particuliers de coalescence

Configuration axisymétrique

Configuration non axisymétrique



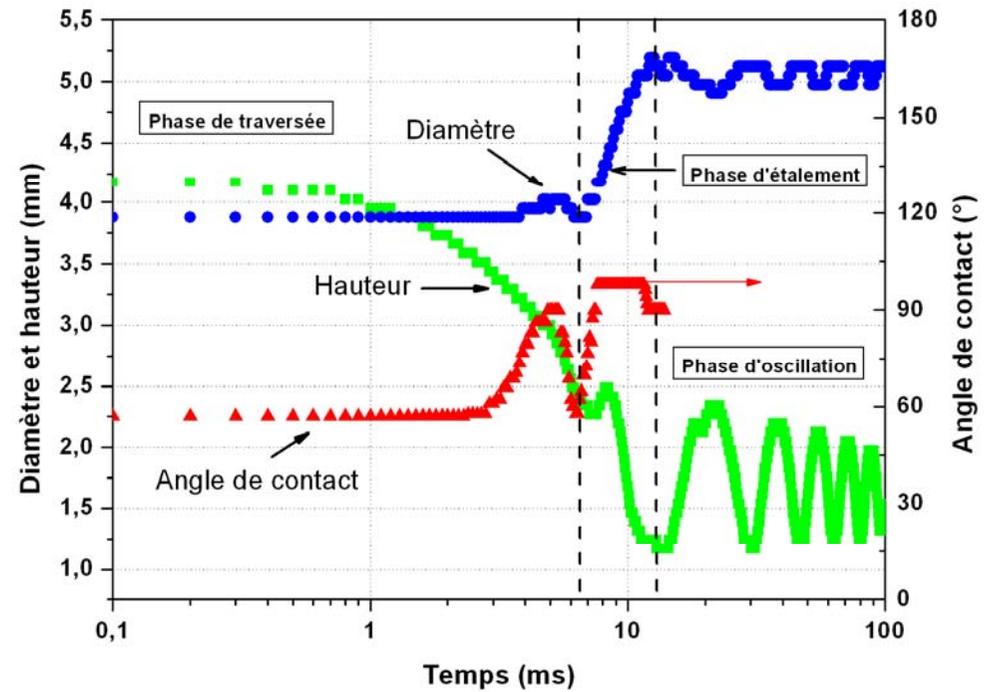
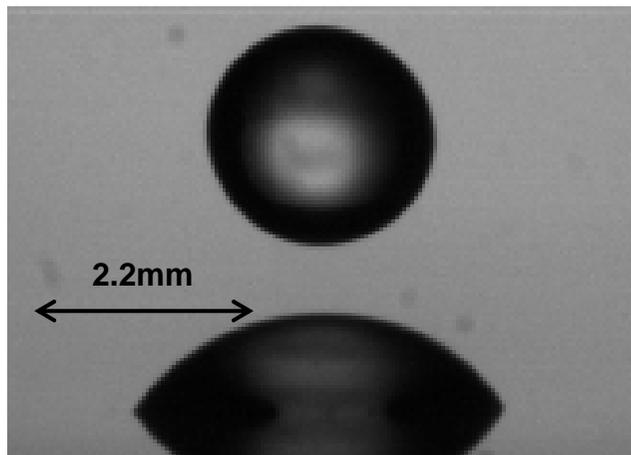
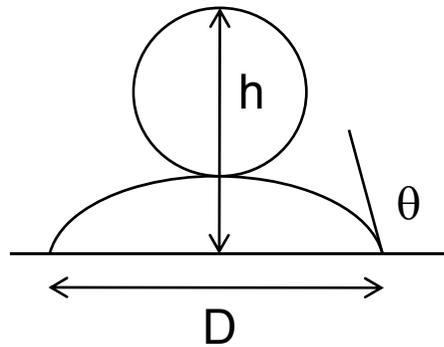
$D_0 = 2.28\text{mm}$, $U = 0.6\text{m/s}$, $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$,
 $\sigma = 73\text{mN/m}$, $\rho = 1000\text{ kg/m}^3$



$D_0 = 2\text{mm}$, $U = 0.7\text{m/s}$, $\mu = 10\text{mPa}\cdot\text{s}$,
 $\sigma = 69\text{mN/m}$, $\rho = 1100\text{ kg/m}^3$

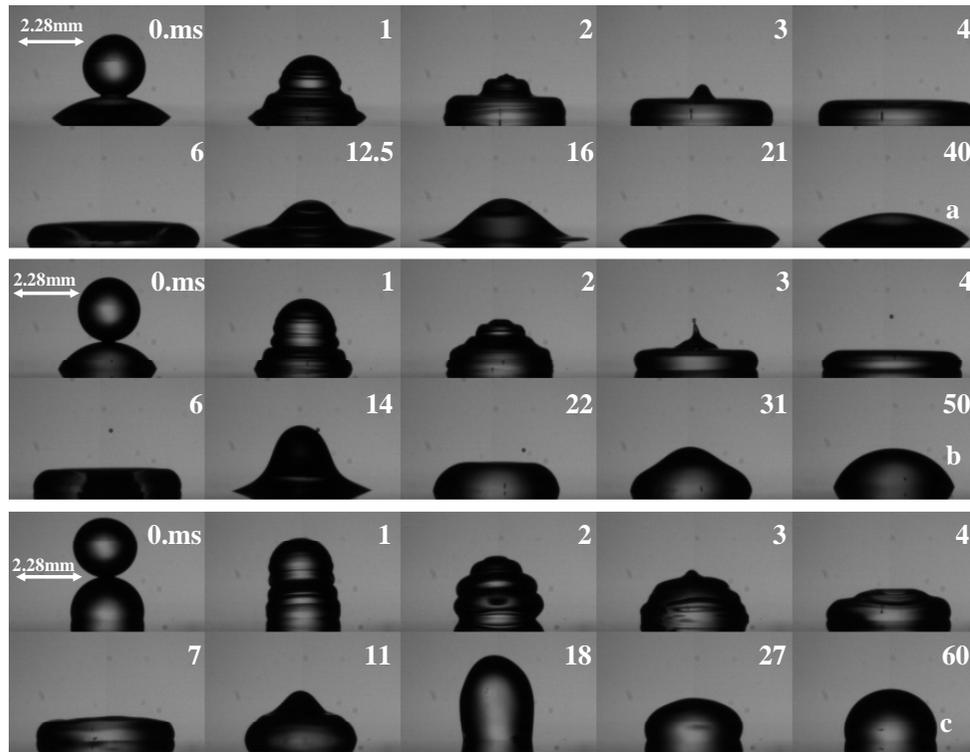
Coalescence axisymétrique

Comportement général



Effet de la mouillabilité

$U = 0.7\text{m/s}$



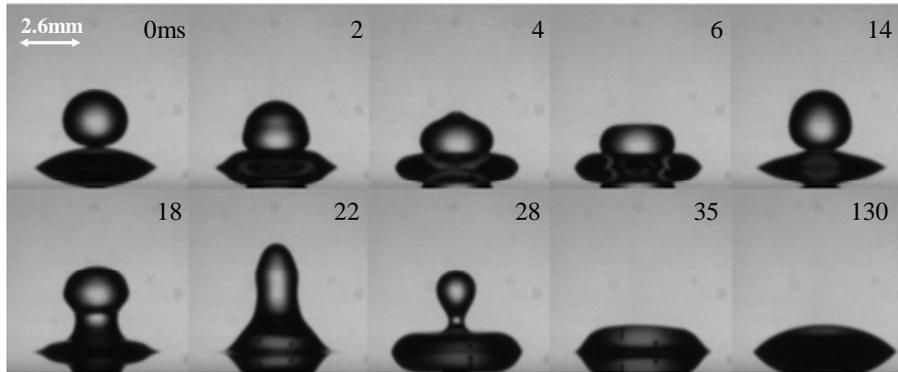
$\theta_{\text{éq}} = 30^\circ$

$\theta_{\text{éq}} = 55^\circ$

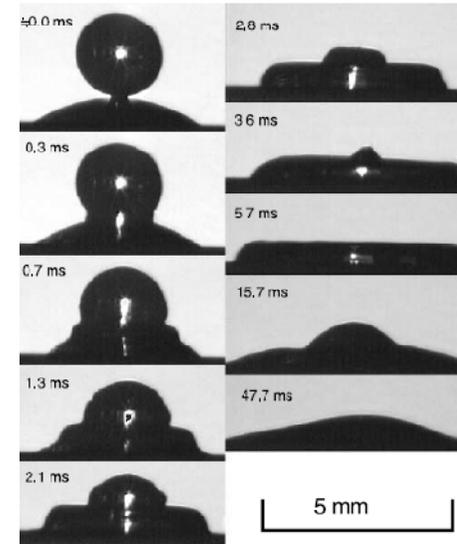
$\theta_{\text{éq}} = 90^\circ$

Effet de la vitesse

$$\theta_{\text{éq}} = 30^\circ$$

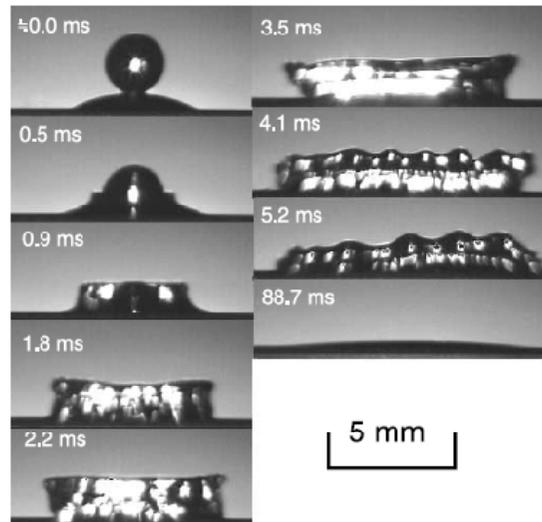


$U = 0.22\text{m/s}$



$U = 0.8\text{m/s}$

Extrait de Fujimoto et al (2001),
International Journal of
Multiphase Flow, vol.27



$U = 2.1\text{m/s}$

Extrait de Fujimoto et al (2001),
International Journal of
Multiphase Flow, vol.27

Effet de la tension de surface

Échelle de longueur: **diamètre d'une goutte de volume double**

Échelle de temps: **temps inertiel inchangé** (inertie liée à une seule goutte)

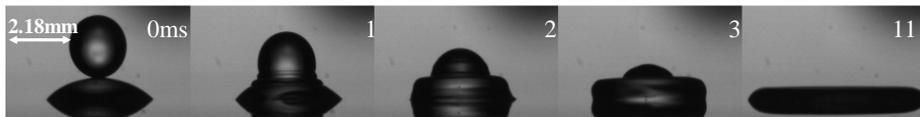
$U = 0.6\text{m/s}$



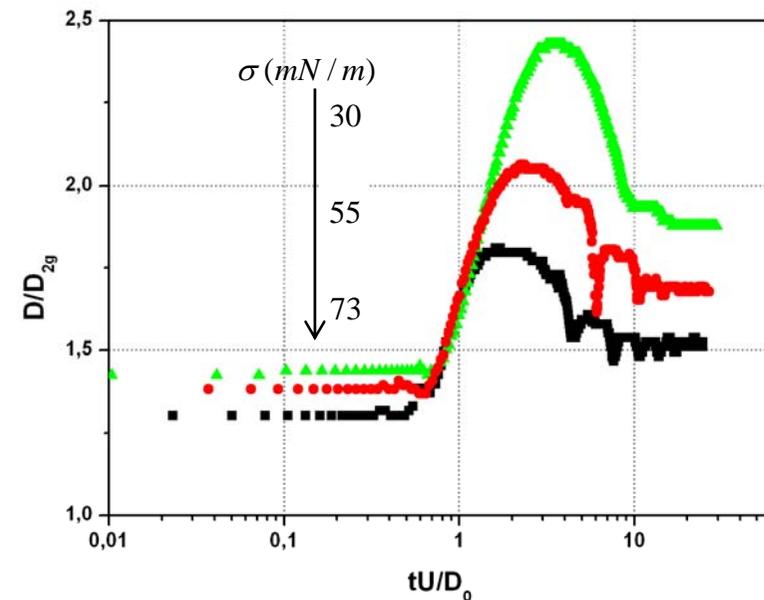
$\sigma = 73\text{mN/m}$;



$\sigma = 55\text{mN/m}$

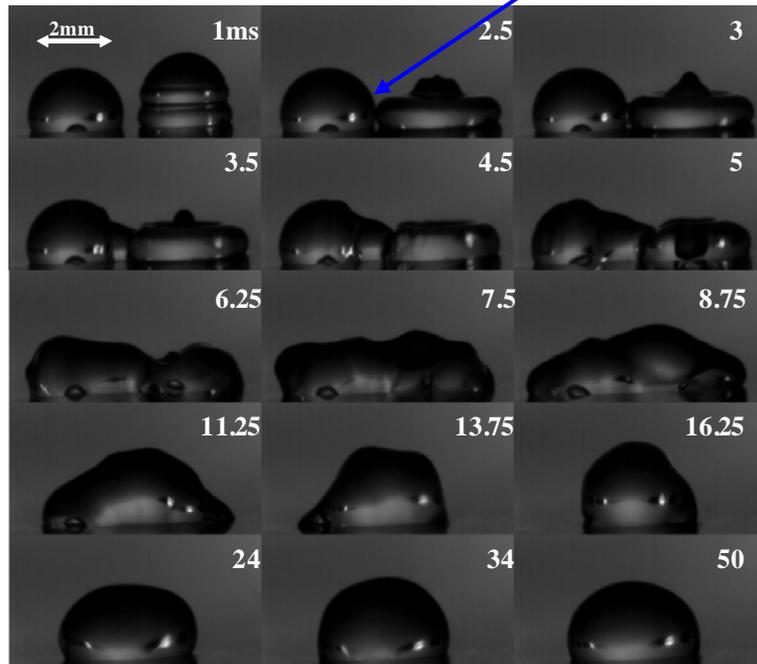


$\sigma = 30\text{mN/m}$

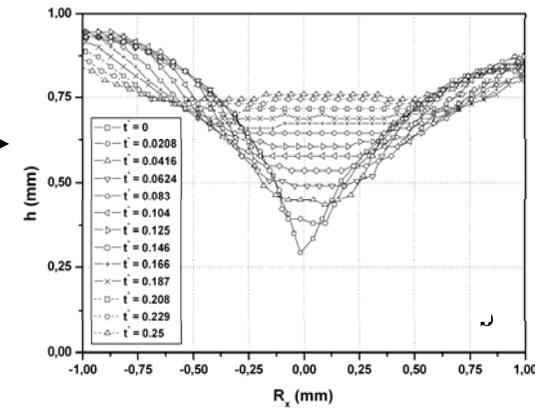


Coalescence non axisymétrique

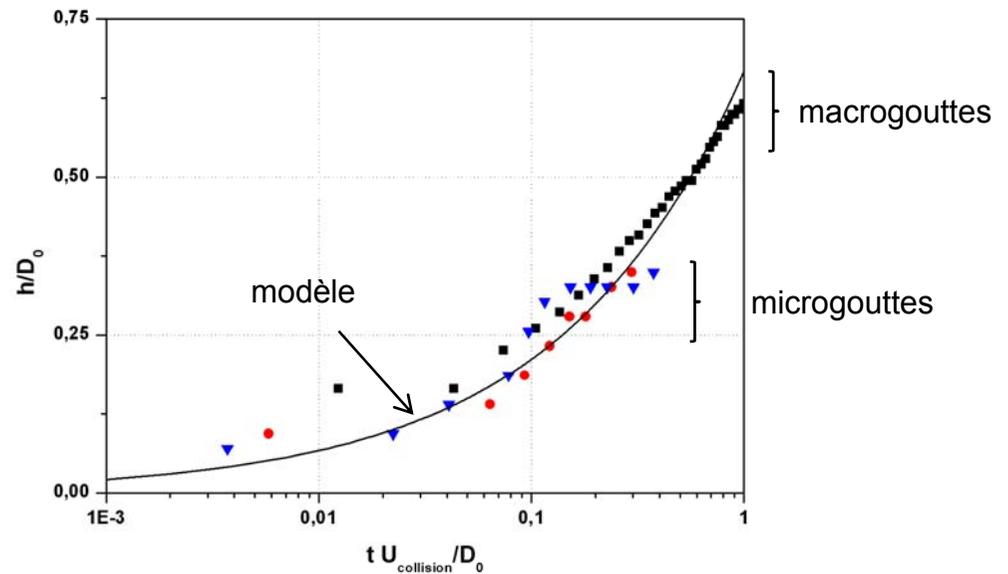
Lois de comportement



Point de jonction



$$\frac{h}{D_0} = \alpha \left(\frac{\sigma}{\rho D_0 U_{\text{collision}}^2} \right)^{\frac{1}{4}} \sqrt{\frac{t}{t_{\text{ic}}}} \quad \text{avec } t_{\text{ic}} = \frac{D_0}{U_{\text{collision}}} \text{ et } \alpha = 0.8$$



Eggers et al (1999), Biotechnics, vol. 17
 Menchaca-Rocha et al (2001), Physical Review E, vol. 63

Résumé

Coalescence axisymétrique:

Mécanisme de coalescence influencé par:

- la vitesse d'impact
- la mouillabilité de la surface
- les propriétés physico-chimiques des liquides

Diamètre et angle dynamique: comportement identique au cas d'une goutte seule

Coalescence non axisymétrique:

Réorganisation de la masse de liquide

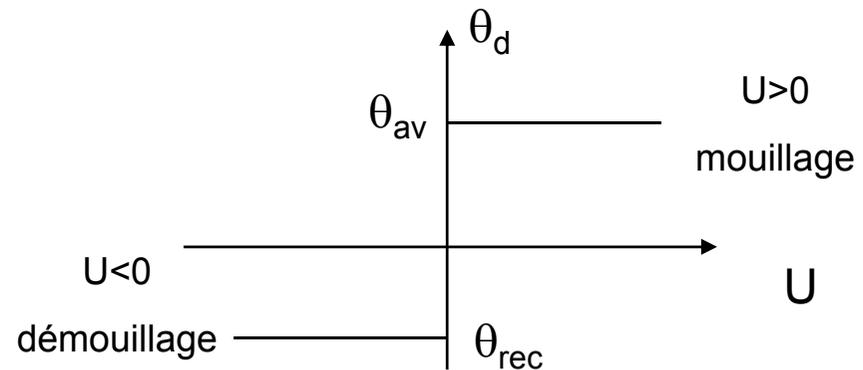
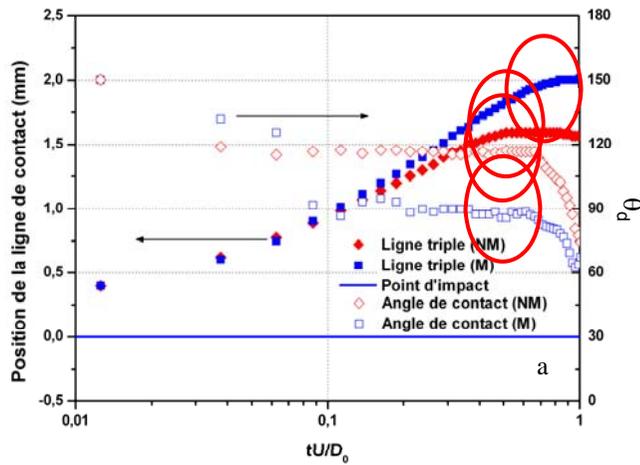
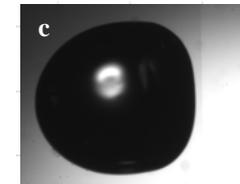
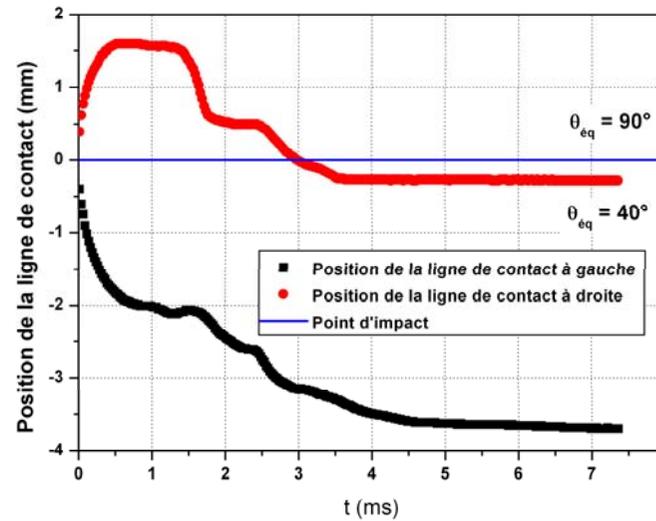
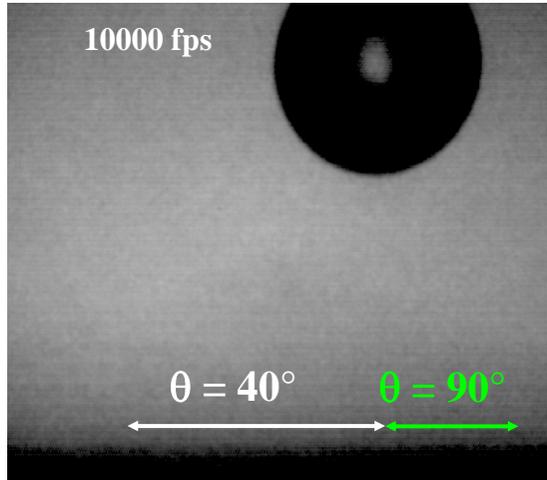
Loi d'évolution du point de coalescence à partir des travaux de Eggers et al (1999) et Menchaca-Rocha et al (2001)

Coefficient d'ajustement identique pour microgouttes et macrogouttes

Impact sur Surface Hétérogène

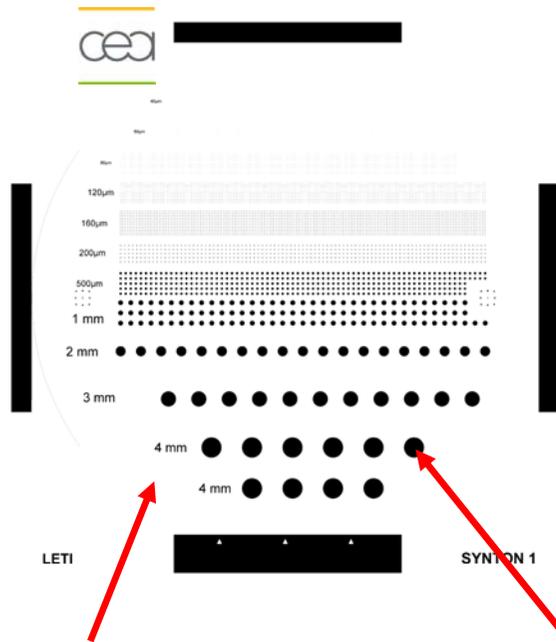
Surface plane et hétérogène

Surface mouillante/non mouillante



Recentrage automatique

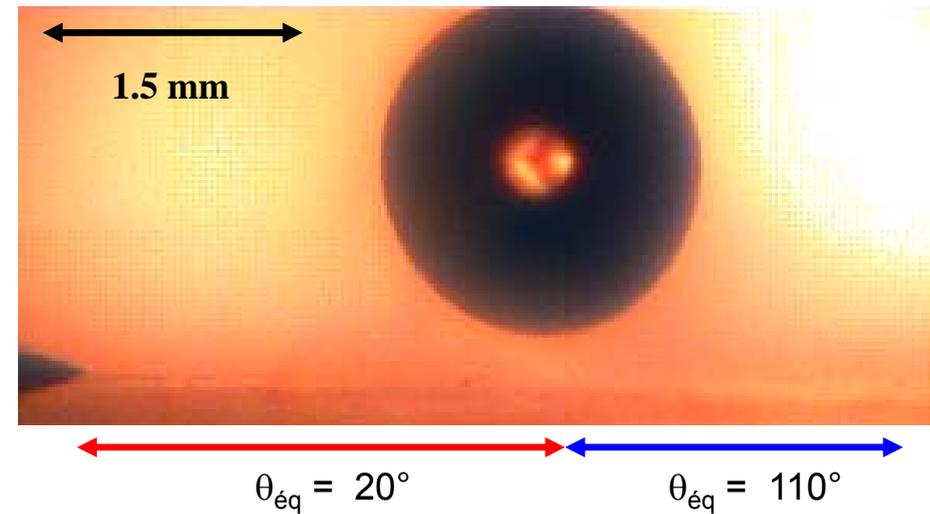
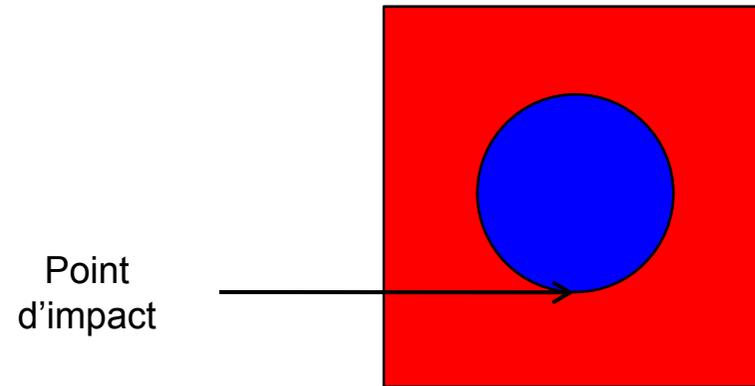
Test sur Biopuce



Surface silanisée
Angle de contact avec de l'eau distillée: 110°

SiO₂ Angle de contact avec de l'eau distillée: 20°

Schéma de la vue de dessus



Forme du film protecteur

Test sur biopuce

Nombre de gouttes: 3

D_0 : 90 μm

Concentration: 5%

Dépassement du site avant
cuisson

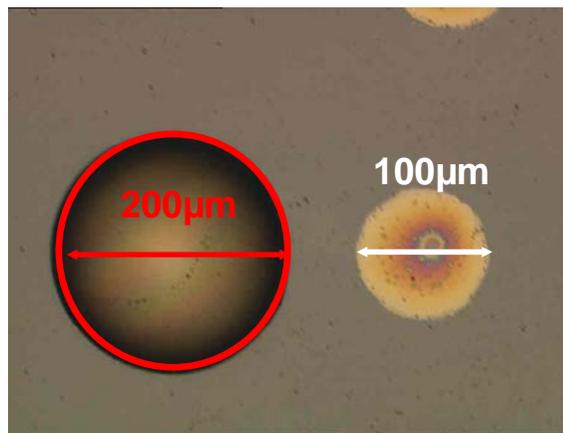
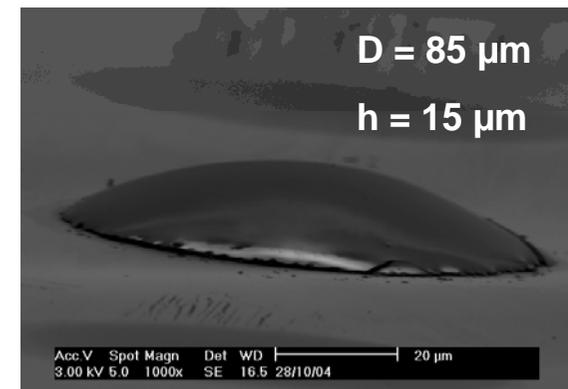


Image MEB après cuisson
(80°C)



Recentrage du polymère sur le site fonctionnalisé

Protection de l'intégralité du site fonctionnalisé

Forme du film protecteur: sphère tronquée d'épaisseur 15 μm

Rozhkov et al (2003), Physics of Fluids, vol.15

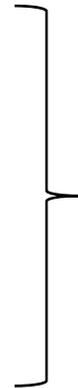
Test de synthèse in situ

Sur la biopuce

A A A A A A **X** A A A A A A A A

avec X étant T, G, C ou A

**Émission de fluorescence:
Détection du brin de
nucléotide cible**

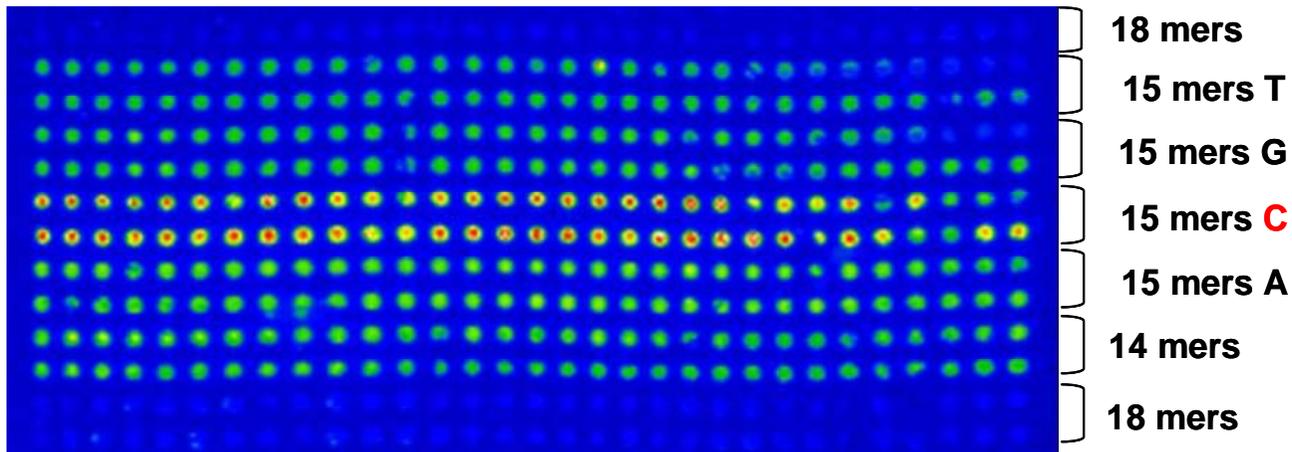


Brin cible

A A A A A A **C** A A A A A A A A

T T T T T T **G** T T T T T T T T 

Brin complémentaire



Site 100µm espacé 200µm centre à centre

**Nouvelle méthode de
formation de film
protecteur de polymère,
système breveté avec le
CEA Leti**

Résumé

Surface hétérogène:

Mouvement de la goutte sur la surface par « stick and slip »

Contrôle de positionnement de la goutte: recentrage

Contrôle de positionnement du film de polymère: démouillage lors de l'évaporation

Réalisation d'une protection efficace pour la synthèse in situ d'oligonucléotides

Conclusions et Perspectives

Conclusions

1. Moyens expérimentaux

- Caméras rapides
- Obturation courte (intensificateur de lumière ou lumière pulsée)
- Utilisation de surfaces modèles homogènes et hétérogènes (mouillabilité de 5° à 110°)
- Développement d'algorithmes de traitement d'images spécifiques

2. Description complète du mécanisme d'impact :

En fonction de D_0 , U , σ , μ et $\theta_{\text{éq}}$

- sur surface homogène
- sur surface hétérogène
- lors de la coalescence axisymétrique et non axisymétrique
- développement de modèles analytiques simples pour chacune des phases
- simulation de l'impact par la Méthode Variationnelle

Conclusions

3. Synthèse *in situ* d'oligonucléotides

- Formation d'une couche de protection polymérique sur surface plane
- Synthèse *in situ* d'oligonucléotides sur surface plane
- Résultat de synthèse identique que méthodes standards

Perspectives

De nombreux points doivent encore faire l'objet d'études spécifiques. On peut citer:

Impact d'une seule goutte

- Rugosité (forme, dimension, répartition)
- Surfaces superhydrophobes: augmentation de la vitesse d'impact
- Composante de la tension de surface (polaire/dispersive) sur le mouillage
- Loi d'angle de contact dynamique

Synthèse *in situ*

- Sur la formation du film de polymère:
 - Effet de D_{site}
 - Effet de la concentration en polymère
 - Utilisation pour d'autres protocoles (synthèse de sucre)
- Optimisation du procédé par:
 - minimisation de la taille des sites
 - microstructuration des zones hydrophobes

Merci de votre attention