HAL
open science

Acoustique et hydrodynamique d'impact d'une goutte d'eau à la surface de liquides complexes

Gautier Gillot

To cite this version:

Gautier Gillot. Acoustique et hydrodynamique d'impact d'une goutte d'eau à la surface de liquides complexes. Acoustique [physics.class-ph]. Le Mans Université, 2021. Français. NNT : 2021LEMA1032 . tel-03685196

HAL Id: tel-03685196

https://theses.hal.science/tel-03685196v1

Submitted on 2 Jun 2022

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.

THÈSE DE DOCTORAT DE

LE MANS UNIVERSITÉ

ÉCOLE DOCTORALE N° 602
Sciences pour l'Ingénieur
Spécialité : *Acoustique*

Par
Gautier GILLOT

« Acoustique et hydrodynamique d'impact d'une goutte d'eau à la surface de liquides complexes »

Thèse présentée et soutenue à Le Mans, le 07 Décembre 2021
Unité de recherche : LAUM
Thèse N° : 2021LEMA1032

Rapporteurs avant soutenance :

Sébastien MANNEVILLE	Professeur des Universités, ENS, Lyon
Philippe MARMOTTANT	Directeur de Recherche, LIPhy, Grenoble

Composition du Jury :

Présidente :	Laurence RAMOS	Directeur de Recherche, Laboratoire Charles Coulomb, Montpellier
Examinateur :	Christophe JOSSERAND	Directeur de Recherche, LadHyx, Palaiseau
Dir. de thèse :	Lazhar BENYAHIA	Professeur des Universités, IMMM, Le Mans
Co-dir. de thèse :	Jean-Michel GÉNEVAUX	Professeur des Universités, LAUM, Le Mans
Co-dir. de thèse :	Laurent SIMON	Professeur des Universités, LAUM, Le Mans

Remerciements

Je tiens dans un premier temps à remercier les membres de mon jury pour avoir pris le temps de relire ce manuscrit. Leurs diverses questions posées suite à la présentation ont permis d'approfondir le sujet et d'ouvrir de nouvelles portes pour les développements à venir.

Je tiens à remercier aussi mes encadrants de thèse, Lazhar Benyahia, Jean-Michel Génevaux et Laurent Simon, de m'avoir fait confiance pour explorer le "ploc" et ses secrets pendant ces trois ans. Merci pour leur disponibilité, leur pédagogie, leurs précieux conseils et leur investissement dans mes travaux. Ils m'ont permis de beaucoup apprendre, dans un environnement agréable et détendu. Merci encore pour cette aventure !

J'aimerais également remercier Caroline Derec pour son grand investissement durant le début de ma thèse. C'est grâce à ses conseils et nos nombreuses discussions que j'ai pu avancer et aller jusqu'au bout des hypothèses proposées, ce qui a permis de former un base solide pour la suite de ces travaux, ainsi que de sortir un premier article riche en résultats.

Un grand merci à James Blondeau pour son aide précieuse concernant la partie expérimentale. Grâce à lui, j'ai pu rapidement prendre en main le set-up, puis le faire évoluer facilement durant ces 3 ans. Merci également pour son aide sur la conception du set-up de mesure en piscine.

Merci à la ville du Mans et à la piscine des Ardriers, particulièrement à Laurent Hamelin, Jean-Marc Loiseau, Cyril Compain et Patrick Mahoué, pour nous avoir permis de réaliser deux séries de mesures en piscine. Merci également à Sylvain Bourdais pour la mise en place du serveur de stockage, essentiel pour la gestion du gros volume de données de mesure.

Merci aux étudiants ayant travaillé, dans le cadre de projets, sur mon sujet de thèse. Merci particulièrement à Fabien Depoilly et Mathieu Maréchal pour l'amélioration et

l'adaptation en Python du programme de visualisation synchronisée, et à Morgane Bougeard pour son important travail sur les solutions de caséine.

J'aimerais remercier la direction et le personnel administratif et technique du LAUM, pour leur bienveillance et leur travail, qui m'ont permis de vivre sereinement ces 3 années. Merci particulièrement à Paola, qui a toujours réponse à tout !

Merci également à l'ensemble des membres du LAUM, pour l'ambiance très accueillante et conviviale dans laquelle j'ai pu évoluer. Merci plus particulièrement à ceux avec qui j'ai pu discuter, régulièrement ou ponctuellement, avec toujours des échanges enrichissants.

Je voudrais remercier l'ensemble de l'équipe PCI pour m'avoir accueilli dans leurs bureaux, et pour m'avoir accompagné, dans une ambiance conviviale, dans ma découverte du milieu de la physico-chimie. Pour Ahmad et Théo, mes deux collègue "permanents" de bureau, merci pour l'ambiance agréable du bureau et pour leur aide concernant mon intégration et ma prise en main de différents matériels qui m'étaient complément inconnus.

Car une thèse expérimentale ne peut bien se dérouler sans une salle et du matériel, merci à Sam pour sa flexibilité pour les moments où nous avons dû partager la salle semi-anéchoïque, et merci à Erwan pour le partage de la caméra rapide, qui semblait compliqué au départ, mais qui a pu au final se dérouler sans problèmes.

Durant cette thèse, j'ai également eu l'occasion de donner des cours. Merci à l'équipe pédagogique de l'ENSIM, ainsi qu'à Omar, Matthieu, Julien, Frédéric, François, Elie et Guillaume, avec qui j'ai eu l'occasion de préparer et d'organiser ces enseignements.

Un grand merci aux doctorants du LAUM, côté UFR et côté ENSIM, qui sont pour la plupart devenus des amis. Merci pour cette entraide permanente, ces nombreux moments de détente nécessaires et ces conversations plus ou moins sérieuses, mais toujours intéressantes. Merci particulièrement à Matthieu et Mathieu pour les mousses, à Thibault pour les visites de caves, à Thomas pour les répliques, à Nicolas pour les discussions machine learning, à Jules pour les coups d'épée, à Meryem pour les rires trop forts et aux autres qui se reconnaîtront, pour les nombreux afterworks qui se prolongent et les bons moments passés pendant ces 3 années. Merci surtout à Théo pour tous ces moments, entre pauses

cafés et pauses maltées, pour son soutien permanent et pour nos nombreuses discussions. Ce fût une belle thèse, et l'amitié jaillie de sa boîte.

Merci à l'équipe RAmDAM, aux différentes personnes qui y sont passées et à ceux qui y sont encore. Merci d'avoir fait vivre cette asso et de continuer à la faire vivre.

J'aimerais également remercier mes amis, qui même sans être là, m'ont soutenus durant ces années. Merci particulièrement à Nico, qui-qui a suivi de loin ce projet et son avancement.

Merci également aux amis de Mouv'n'Brass, pour avoir été compréhensifs sur mon désengagement progressif du projet pour cause de thèse, et pour leur soutient également durant ces années. Merci de m'avoir permis de continuer à jouer de temps en temps et de continuer à vivre en parallèle ce projet magnifique.

Un grand merci à ma famille pour son soutient durant toutes ces années, et grâce à qui je n'en serait pas là. Merci à mon oncle, ma grand-mère et mes parents de s'être déplacés le jour de ma soutenance et d'avoir été présents tout au long de la matinée. Merci également à ma soeur de m'avoir supporté durant ces 3 années et d'avoir été une coloc' exemplaire.

Enfin, merci de tout coeur à ma petite Louise, pour son soutient permanent, pour m'avoir aidé quand ça n'allait pas, pour m'avoir encouragé quand ça allait mieux, pour avoir toujours cru en moi, et pour avoir créé le meilleur environnement possible pour moi durant ces 3 ans.

Les hypothèses et les bruits brouillent l'écoute.

Table des matières

Introduction **13**

0.1 Contexte . . . 13

0.2 Objectifs de la thèse . . . 15

0.3 Plan détaillé du document . . . 15

1 État de l'art **19**

1.1 Études de l'impact d'une goutte . . . 19

1.1.1 Études de l'impact d'une goutte d'eau sur une surface liquide d'eau pure . . . 19

1.1.2 Influence des propriétés du liquide . . . 24

1.1.3 Acoustique de l'impact . . . 25

1.2 Physique de la tension de surface . . . 30

1.2.1 Modification de la tension de surface . . . 31

1.2.2 Propriétés des tensioactifs . . . 33

1.2.3 Effet Marangoni . . . 38

1.3 Conclusion . . . 39

2 Techniques de mesure et traitement **41**

2.1 Introduction . . . 41

2.2 Dispositif de mesure en laboratoire . . . 41

2.2.1 Montage expérimental pour la mesure d'impacts de gouttes . . . 41

2.2.2 Protocole de mesure . . . 44

2.2.3 Choix de l'aquarium . . . 46

2.3 Dispositif de mesure en piscine . . . 47

2.4 Mesure de la tension de surface des liquides utilisés . . . 50

2.4.1 Méthode de la pression de bulle maximale . . . 51

2.4.2 Méthode de profilométrie . . . 53

2.5 Outils développés de traitement du signal et des images . . . 54

2.5.1 Débruitage des mesures acoustiques 54
2.5.2 Détection automatique d'événements acoustiques 55
2.5.3 Détection des groupes de temps d'apparition des événements acoustiques 61
2.5.4 Calcul du temps caractéristique de décroissance des signaux de bulle 66
2.5.5 Traitements vidéos 67

3 Étude de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau 75
3.1 Introduction 75
3.2 A new insight on a mechanism of airborne and underwater sound of a drop impacting a liquid surface 76
3.2.1 Introduction 76
3.2.2 Materials and methods 78
3.2.3 Results and discussion 79
3.2.4 Conclusion 96

4 Mécanismes de formation de bulle et leur signature acoustique 97
4.1 Introduction 97
4.2 Acoustic signatures and bubble entrainment mechanisms of a drop impacting a water surface with surfactant 98
4.2.1 Introduction 98
4.2.2 Materials and methods 100
4.2.3 Results 101
4.2.4 Discussion 113
4.2.5 Conclusion 115
4.3 Automatic classification of hydrodynamic phenomena using their acoustic signature : the example of bubble entrainment during a drop impact 116
4.3.1 Introduction 116
4.3.2 Materials and methods 117
4.3.3 Acoustic signals of the the different classes 120
4.3.4 Signal descriptors 125
4.3.5 Classification method 131
4.3.6 Results and discussion 132
4.3.7 Conclusion 137

4.4 Conclusion du chapitre 139

5 Modification de la tension de surface **141**

5.1 Introduction 141

5.2 Physicochemical features of homogeneous liquid mixtures revealed by hydrophonic signature of a water drop impact 143

5.2.1 Introduction 143

5.2.2 Materials and Methods 144

5.2.3 Results 146

5.2.4 Discussion 154

5.2.5 Conclusion 159

5.3 Fast dynamics of surfactant probed by the acoustics of a drop impact . . . 160

5.3.1 Introduction 160

5.3.2 Material and Methods 161

5.3.3 Results 163

5.3.4 Discussion 168

5.3.5 Conclusion 174

5.4 Impact d'une goutte d'eau sur une solution de protéines 175

5.4.1 Introduction 175

5.4.2 Caséine 176

5.4.3 Ovalbumine 186

5.4.4 Conclusion 190

5.5 Étude de l'impact d'une goutte de solution de tensioactif 190

5.5.1 Introduction 190

5.5.2 Le problème de la taille de la goutte 191

5.5.3 Comparaison des deux configurations 193

5.5.4 Modification du signal acoustique 196

5.5.5 Conclusion 197

5.6 Conclusion du chapitre 198

Conclusion **201**

Annexes

Annexe A Variabilité du phénomène d'impact d'une goutte **209**
A.1 Introduction 209
A.2 Variabilité dans le cas de l'eau 209
A.2.1 Répétabilité de la formation de la cavité 209
A.2.2 Variabilité du jet de Rayleigh 212
A.3 Étude des variabilités à l'aide du signal acoustique 217
A.3.1 Critères de variabilité 217
A.3.2 Étude de la variabilité par l'acoustique dans le cas de l'eau 218
A.3.3 Variabilité pour d'autres configurations 218
A.3.4 Variabilité des familles d'événements 220
A.3.5 Variabilité et qualité de l'eau 222
A.4 Conclusion 223

Bibliographie **225**

Liste des figures **241**

Nomenclature **249**

INTRODUCTION

0.1 Contexte

“Ploc”... “Plic”... Le son émis par une goutte impactant une surface liquide est facilement identifiable et observable au quotidien. Que cela soit un robinet qui goutte dans un évier plein d’eau ou la pluie sur un lac, le son perçu est un son court mais avec une fréquence bien définie. Cependant, à cause de la rapidité des phénomènes se déroulant au moment de l’impact, il est difficile de mettre en évidence la source de ce son si particulier. Pourtant, l’étude du signal acoustique émis par des événements hydrodynamiques rapides peut apporter des renseignements sur les phénomènes physiques mis en jeu lors de ces événements, quand ceux-ci sont trop rapides pour être observés [1, 2].

Même si le son d’impact d’une goutte sur un liquide est reconnaissable, il n’en est pas moins changeant. En effet, la nature du son perçu peut être différente d’un impact à l’autre. On entend parfois un son "rond", un "ploc", parfois un son plus aigu et bref, un "plic". Parfois même, l’impact ne produit aucun son. La diversité de ces sons produits montre que le phénomène qui l’engendre doit dépendre de plusieurs paramètres. La génération de tel ou tel type de son suivant le contexte dans lequel se déroule l’impact est un problème complexe dans le cas, par exemple, du réalisme de la synthèse sonore [3, 4].

Les paramètres mis en jeu dans le cas d’impact de goutte sont nombreux. La taille de la goutte, sa vitesse, son angle d’impact par exemple, sont autant de paramètres susceptibles de modifier le son produit. Leur influence sur ce son, une fois identifiée, peut permettre par exemple l’étude des paramètres de la pluie (intensité, taille de gouttes, etc...) à l’aide du son qu’elle produit en tombant sur une étendue d’eau [5-7]. Ces paramètres peuvent par la suite servir par exemple pour l’étude de l’atmosphère et de la météorologie [8, 9].

Si, au lieu de modifier les propriétés de la goutte, on modifie maintenant la nature du liquide utilisé, le son obtenu est-il différent ? On pourrait imaginer que oui, car les propriétés du liquide, comme sa viscosité par exemple, influent sur sa dynamique et peuvent

donc modifier les événements hydrodynamiques engendrés par l'impact. Cependant, il n'a pas l'air aisé de reconnaître à l'oreille si une goutte tombe plutôt dans de l'eau ou dans un autre liquide. Si des différences existent, elles sont probablement subtiles et relèvent d'outils avancés d'analyse et de traitement du signal.

Au même titre que les études du son de la pluie, la mise en évidence d'un lien entre le son produit par l'impact d'une goutte sur un liquide et les propriétés de ce liquide laisse entrevoir de nombreuses applications. Les propriétés mises en jeu pourraient être mesurées de manière simple et peu coûteuse. En effet, les méthodes existantes pour mesurer les propriétés de liquides, comme la viscosité ou la tension de surface, nécessitent généralement du matériel coûteux, des procédures lourdes et le prélèvement d'un échantillon de liquide [10, 11]. Par rapport à ces méthodes, une méthode basée sur le son produit par l'impact d'une goutte ne nécessiterait qu'un système de mesure acoustique (microphone ou hydrophone) et un moyen de générer une goutte. En plus du faible coût de ce matériel, les mesures pourraient être réalisées *in situ*, sans avoir à prélever d'échantillons.

La simplicité de mise en place d'un système de mesure acoustique permettrait de faciliter et de rendre accessibles certaines mesures de propriétés de liquide. Ainsi, dans le cas de l'eau par exemple, la présence de certains polluants modifient sa tension de surface [12]. Un simple microphone pourrait ainsi permettre un contrôle qualité permanent, autonome et peu coûteux. D'autres applications peuvent être envisagées pour des analyses de fluides dans le milieu médical [13, 14] ou du contrôle qualité dans le milieu alimentaire [15-17]. Le système de mesure et d'analyse pourrait même se réduire à une application mobile, utilisant le microphone de l'appareil de type smartphone pour capter le son. Des méthodes d'analyses autonomes pourraient ainsi être développées et être accessibles au grand public.

La mise en évidence d'un lien entre propriétés du liquide et son de l'impact d'une goutte est donc un enjeu à fort potentiel pour de nombreuses applications, dans des domaines variés. La simplicité des systèmes de mesure acoustique ainsi que du traitement des signaux audio offrirait ainsi un outil simple, peu coûteux et non invasif pour l'étude des liquides.

0.2 Objectifs de la thèse

Les différents travaux détaillés dans cette thèse ont donc pour objectif d'étudier le signal acoustique produit par l'impact d'une goutte sur une surface liquide, en particulier l'influence de la tension de surface sur ce signal et l'hydrodynamique de l'impact.

Le premier objectif est la compréhension détaillée de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau. Le but est de trouver des conditions d'impact menant à des phénomènes répétables et générant un signal acoustique. La compréhension du déroulement des événements hydrodynamiques ainsi que de l'origine des différentes sources acoustiques est essentielle pour le cas "simple" de l'eau, avant l'étude de liquides plus complexes.

Le second objectif est d'étudier l'influence des propriétés du liquide sur le signal acoustique. Le choix est fait d'étudier principalement l'effet de la tension de surface, en changeant celle-ci de plusieurs manières. Le but est de relever les principaux changements dans le signal acoustique, de les expliquer par l'observation de l'hydrodynamique de l'impact et enfin de les relier, si possible, aux propriétés du liquide. Ainsi, la mise en évidence d'indicateurs acoustiques liés aux phénomènes hydrodynamiques peut permettre, dans un second temps, de suivre l'évolution de ces phénomènes uniquement à l'aide d'outils de traitement du signal.

0.3 Plan détaillé du document

Dans une première partie, les principaux travaux existants sur l'impact de gouttes sur des liquides sont rapportés. Les études à la fois de l'hydrodynamique et de l'acoustique de l'impact sont confrontées. Les mécanismes physiques de la tension de surface sont également explicités, ainsi que les différents moyens de la modifier.

Une deuxième partie expose les différents outils développés pour l'étude expérimentale d'impacts de gouttes. Le dispositif de mesure en laboratoire est décrit en détail, ainsi que le dispositif développé pour des mesures en piscine. Les méthodes de mesure de la tension de surface des liquides utilisés sont également présentées. Enfin, les outils de traitement de

l'image et du signal, développés durant ces travaux de thèse pour permettre l'extraction du maximum d'informations des mesures réalisées, sont décrits en détails.

Une troisième partie détaille ensuite les résultats concernant l'étude acoustique et hydrodynamique de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau. Les conditions d'impact choisies, le déroulement typique des événements hydrodynamiques ainsi que le signal acoustique associé sont présentés et analysés. L'étude se concentre principalement sur le mécanisme d'emprisonnement de bulle mis en jeu pour ce régime, ainsi que sur le son produit par cette bulle dans l'eau (mesuré par un hydrophone) et dans l'air (mesuré par un microphone). Les différences observées entre les mesures et les modèles d'acoustique de bulle, différences parfois relevées dans la littérature, sont mises en évidence et expliquées en adaptant les modèles utilisés aux conditions aux limites.

Une quatrième partie présente les travaux réalisés sur la reconnaissance d'événements hydrodynamiques à l'aide de leur signature acoustique. En effet, la modification de la tension de surface des liquides fait apparaître différents types d'événements hydrodynamiques responsables d'un signal acoustique. Ces événements, liés à la formation ou à l'excitation de bulles d'air dans le liquide, peuvent être classés en plusieurs familles suivant leur mécanisme. Il est mis en évidence que ces différentes familles possèdent des signatures acoustiques qui leur sont propres. Ces familles et les principales caractéristiques de leur signature acoustique sont présentées dans un premier temps. Ensuite, un algorithme d'identification de l'événement hydrodynamique à partir de sa seule signature acoustique est développé. Celui-ci se base sur une méthode classique de classification de signaux et sur une base de données construite à partir des mesures réalisées. Les résultats encourageants de cet algorithme présagent de la possibilité de pouvoir identifier de manière simple, automatique et peu coûteuse les mécanismes hydrodynamiques mis en jeu lors d'un impact de goutte.

Enfin, dans une cinquième partie, les principaux résultats des mesures d'impacts avec différents liquides sont présentés. C'est l'influence de la tension de surface qui est principalement observée. Celle-ci est modifiée de trois manières différentes : par mélange de solutions miscibles, par ajout de tensioactif et par ajout de protéines.

- Le mélange d'eau et d'éthanol à différentes concentrations fait apparaître des différences principalement sur le signal de l'hydrophone. Un lien direct est établi entre les propriétés de la solution et le temps d'apparition d'un maximum de pression dû à la rétraction de la cavité.
- L'ajout de tensioactifs entraîne un comportement différent. Dans ce cas, c'est le temps d'apparition des différents événements acoustiques du signal qui est analysé. Une même tendance dans l'évolution de ce temps d'apparition est observée pour différents tensioactifs, quand celui-ci est affiché en fonction de la concentration en tensioactif normalisée par sa concentration micellaire critique. Ces résultats sont la conséquence des changements dans le comportement hydrodynamique du liquide.
- L'ajout de protéines induit un comportement similaire au cas avec tensioactif, c'est-à-dire une variation du temps d'apparition des événements acoustiques. Les mécanismes responsables de ce comportement semblent être les mêmes que pour les tensioactifs, avec quelques différences dues à la taille plus importante des protéines.

Les mesures pour ces différents cas sont effectuées en faisant tomber une goutte d'eau dans le liquide modifié. En parallèle, des mesures sont également effectuées en faisant tomber une goutte de liquide modifié dans ce même liquide. Les différences observées entre ces deux configurations sont également décrites dans cette partie.

Chapitre 1

État de l'art

1.1 Études de l'impact d'une goutte

1.1.1 Études de l'impact d'une goutte d'eau sur une surface liquide d'eau pure

L'impact d'une goutte d'eau sur une surface d'eau entraîne une succession de phénomènes très rapides. L'ensemble dure généralement moins de 0.5 seconde, ce qui rend l'observation à l'œil nu très limitée. Ainsi, l'étude des détails de ce phénomène est récente et en lien avec le développement des technologies de prise rapide d'images. Les premières images d'impacts ont été obtenues à l'aide de la technique de la photographie instantanée, en utilisant un montage permettant de contrôler le temps entre le déclenchement et la prise d'une image [18-20]. Le déroulement d'un impact est ainsi reconstruit par décalage successif du temps d'enregistrement de l'image entre différentes répétitions de la mesure, comme montré en Fig. 1.1. Ces premières études mettent en évidence les différentes étapes d'un impact, illustrées en Fig. 1.2 : développement d'une cavité en-dessous et d'une couronne liquide au-dessus de la surface, projection d'un jet liquide verticalement (appelé jet de Rayleigh ou jet de Worthington) et effondrement de ce jet, avec parfois détachement de gouttelettes. Il est également montré que la modification de la taille de la goutte et de sa hauteur de chute induisent des changements significatifs dans la physionomie des phénomènes hydrodynamiques observés. Toutefois, la succession des événements reste globalement la même.

L'influence de la taille de la goutte d'une part et de sa vitesse d'impact d'autre part (liée à sa hauteur de chute) est étudiée plus précisément par la suite. Ainsi, de nombreuses mesures provenant de différentes configurations permettent de construire un diagramme

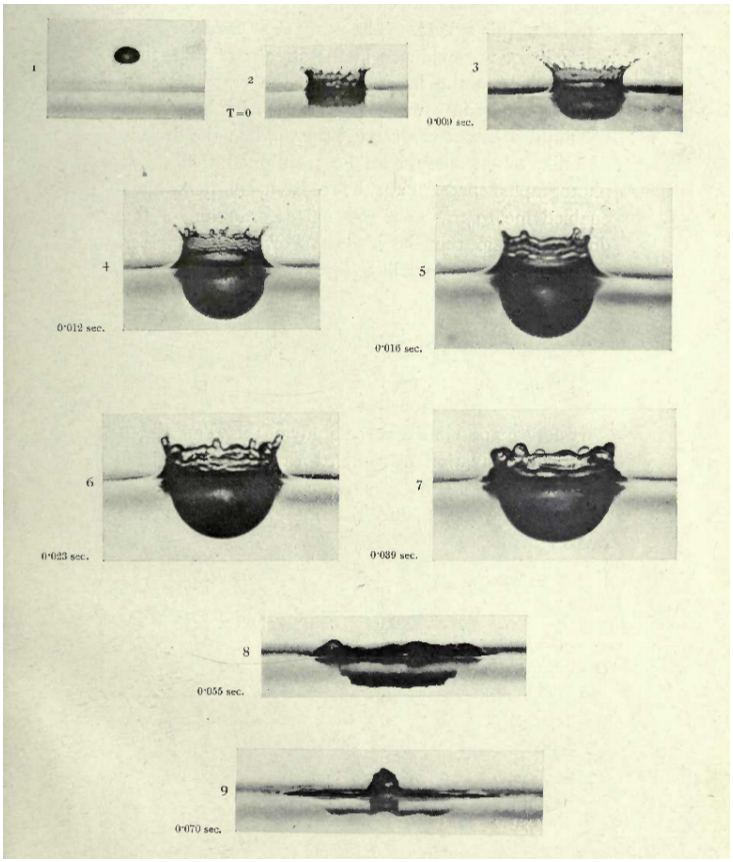

FIGURE 1.1 – Photographies montrant le déroulement de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau, issues de l'une des premières études sur le sujet [18].

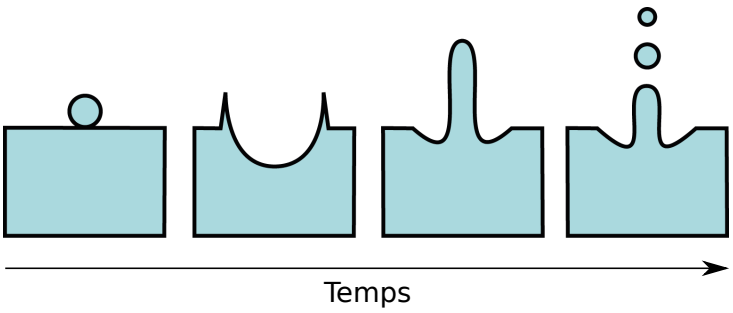

FIGURE 1.2 – Succession typique d'événements hydrodynamiques suite à l'impact d'une goutte sur une surface liquide : impact de la goutte, formation d'un cratère en-dessous et d'une couronne au-dessus de la surface, éjection d'un jet de Rayleigh et effondrement du jet, avec éventuel détachement de gouttelettes secondaires.

présentant différents régimes d'impact dans un plan vitesse d'impact/diamètre de goutte [5], présenté en Fig. 1.3. Ces régimes sont définis suivant la formation ou non d'une ou plusieurs bulles dans le liquide durant l'impact, et surtout suivant le mécanisme responsable de cette formation. La définition de ces différents régimes est depuis une référence pour de nombreuses études d'impacts.

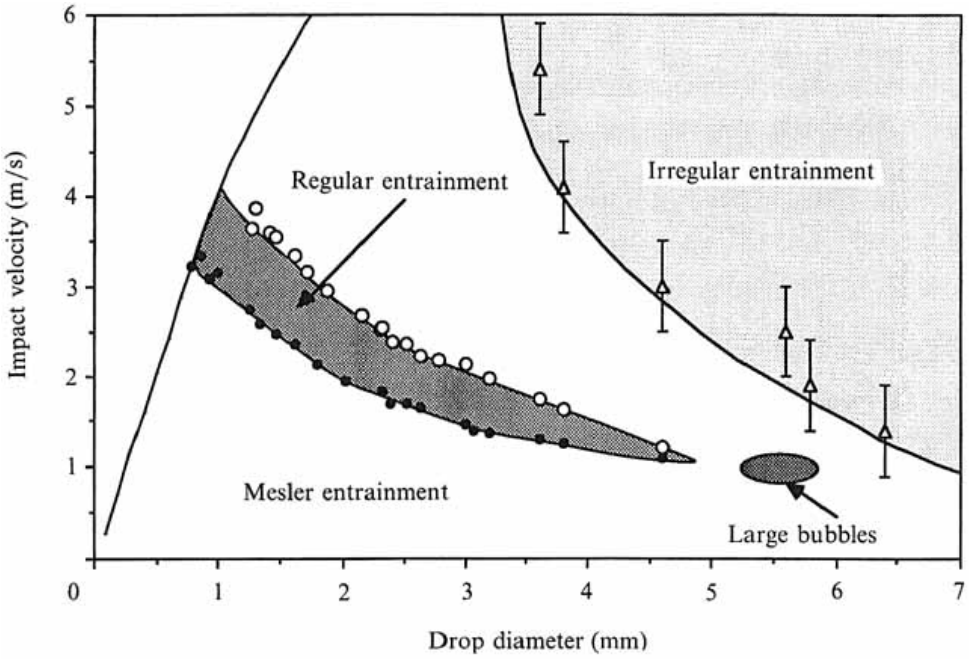

FIGURE 1.3 – Diagramme, issu de [21], présentant les limites des différents régimes d'emprisonnement de bulle en fonction du diamètre de la goutte et de la vitesse d'impact.

Parmi les différents régimes mis en évidence, un régime est particulièrement étudié : le régime appelé *regular entrainment*. Ce nom lui est attribué en raison de sa grande répétabilité en termes de formation et de taille de bulle [5, 21, 22]. Le mécanisme d'emprisonnement de bulle qu'il met en jeu est présenté en Fig. 1.4 : durant la rétraction de la cavité créée par l'impact, un volume d'air à l'apex de celle-ci est emprisonné par un mécanisme de pincement. Ce mécanisme et les conditions qui favorisent sa mise en place ont été étudiés de nombreuses fois [23-28]. Plus particulièrement, la transition entre l'absence de bulle et la formation d'une bulle suivant les conditions d'impact est étudiée en détail afin de comprendre les conditions de sa mise en place [29, 30].

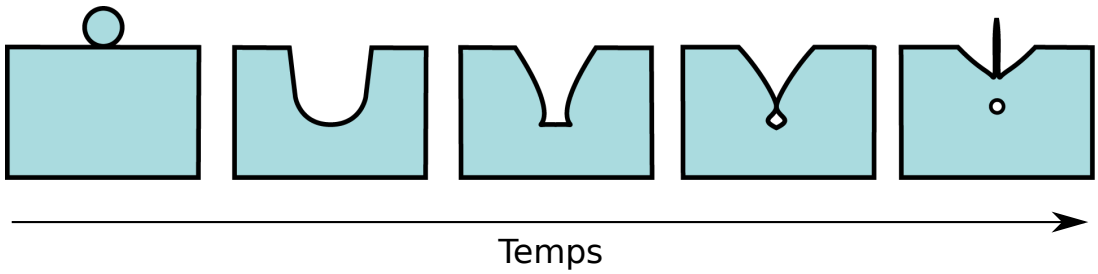

FIGURE 1.4 – Succession typique d'événements hydrodynamiques dans le cas du régime *regular entrainment* : impact de la goutte, formation d'une cavité et d'une couronne, rétraction de la cavité, pincement d'une bulle et éjection d'un jet fin et rapide.

Les autres régimes mis en évidence sur le diagramme de la Fig. 1.3 sont beaucoup moins étudiés, malgré des mécanismes de formation de bulle tout aussi intéressants. Par exemple, le régime *Mesler entrainment*, observé pour des faibles hauteurs de chute, consiste en l'emprisonnement d'un volume d'air sous la goutte au moment de l'impact, comme détaillé en Fig. 1.5. Ce volume, d'épaisseur faible mais très étendu sur une partie de la surface de la goutte, forme un film d'air qui rapidement se déchire, produisant ainsi une multitude de bulles minuscules [31, 32]. Il est principalement étudié dans le cas d'ébullition nucléée, où il joue un rôle essentiel [33, 34]. De la même manière, le régime *large bubble* n'est quasiment pas étudié dans la littérature [35, 36].

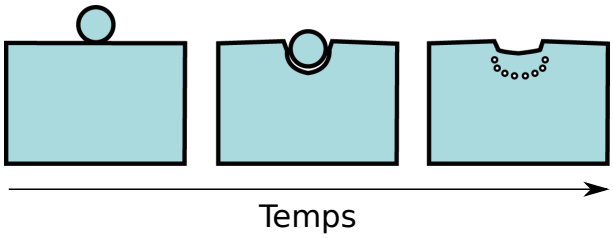

FIGURE 1.5 – Succession typique d'événements hydrodynamiques dans le cas du régime *Mesler entrainment* : impact de la goutte, emprisonnement d'un film d'air entre la goutte et le reste du liquide et déchirement du film en une multitude de petites bulles.

Le quatrième régime proposé par Pumphrey [21] (Fig. 1.3) est particulier. En effet, le régime *irregular entrainment* est présenté comme un régime où, d'une mesure à l'autre, une ou plusieurs bulles vont se former, ou pas. De plus, le mécanisme de formation de bulle n'est pas explicité. Celui-ci est décrit comme ayant lieu durant l'effondrement du jet, pendant lequel la retombée d'une gouttelette secondaire sur l'interface entraîne la formation d'une bulle, comme montré en Fig. 1.6. Cependant, différentes études d'impacts pour ce régime montrent des situations différentes, comme l'emprisonnement d'une bulle à la fois pendant la rétraction de la cavité et l'effondrement du jet [37, 38], ou bien l'emprisonnement de plusieurs bulles successives [39, 40]. Ainsi, la grande zone que couvre le régime *irregular entrainment* sur le diagramme de la Fig. 1.3 pourrait probablement être divisée en plusieurs régimes.

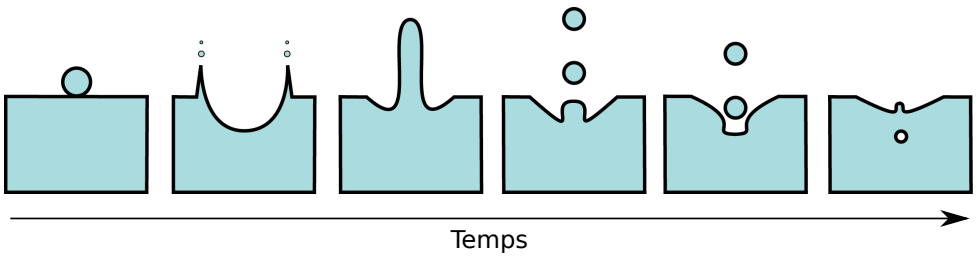

FIGURE 1.6 – Succession typique d'événements hydrodynamiques dans le cas du régime *irregular entrainment* : impact de la goutte, formation d'une cavité et d'une couronne, éjection d'un jet de Rayleigh, effondrement de ce jet et éventuel détachement de gouttelettes secondaires, éventuelle formation d'une ou plusieurs bulles lors de la retombée de ces gouttelettes.

D'autres définitions de régimes d'impact sont reportées dans la littérature, en ne prenant pas comme critère la formation de bulles mais l'interaction entre la goutte et la surface. Ainsi, pour une énergie d'impact globalement croissante, les régimes de flottaison (la goutte flotte sur la surface), de rebond (la goutte rebondit sur la surface), de coalescence (la goutte fusionne avec la surface) et d'éclaboussement (la goutte provoque la projection d'autres gouttes) sont définis [24, 26, 41, 42]. A ces régimes peut s'ajouter la coalescence partielle, phénomène combinant la flottaison, le rebond et la coalescence [43, 44]. Un autre régime particulier est également reporté, pour lequel la couronne formée à l'impact se referme sur elle-même, menant à la formation d'une bulle de volume important à la surface du liquide [20, 45, 46].

L'impact d'une goutte d'eau sur une surface d'eau présente donc de nombreuses situations différentes, selon le diamètre de la goutte et sa vitesse d'impact. Malgré une succession d'événements similaires, les temps, énergies et dimensions mis en jeu varient énormément. La définition de régimes d'impact, définissant les conditions initiales menant aux différentes situations observées, facilite leur compréhension. Cependant, cela peut parfois dissimuler la complexité et la subtilité de certains phénomènes.

1.1.2 Influence des propriétés du liquide

L'influence des conditions initiales de l'impact sur son déroulement est étudiée en détail dans la littérature pour le cas de l'eau. Cependant, le déroulement de l'impact peut dépendre d'autres paramètres, comme les propriétés du liquide utilisé. En effet, dès les premières études d'impact de goutte, les changements significatifs apportés à l'hydrodynamique de l'impact par l'ajout de lait dans l'eau montrent que la nature du liquide est également un paramètre influent [18].

La majorité des travaux est portée sur l'influence de la viscosité du liquide sur le déroulement de l'impact. Celle-ci peut être facilement modifiée en utilisant d'autres liquides plus visqueux (comme des huiles) ou bien en créant des solutions avec des proportions variées (comme une solution d'eau et de glycérol). Ainsi, il est reporté que la viscosité influence grandement la dynamique du jet [47, 48], en ralentissant globalement son développement quand la viscosité augmente. Cependant, la viscosité ne semble pas influencer la taille de la cavité pour des viscosités allant jusqu'à 20 mPa.s [49], mais elle affecte cependant le développement de la couronne quand elle varie sur trois ordres de grandeur [50]. Concernant les régimes d'impact évoqués pour le cas de l'eau, la viscosité a pour effet de décaler les limites du *regular entrainment* dans le diagramme des régimes d'impact [27]. Ce résultat suggère l'hypothèse d'une éventuelle troisième dimension au diagramme de la Fig. 1.3, prenant en compte les propriétés du liquide.

L'influence de la tension de surface et de la densité du liquide sur le déroulement de l'impact est peu étudiée, et n'est généralement pas dissociée de l'étude de la viscosité. En effet, il est complexe de modifier une de ces propriétés sans modifier les autres. Les quelques études consacrées à la tension de surface mettent en évidence son influence sur la formation de bulles lors du *regular entraiment*, diminuant la taille des bulles formées

jusqu'à les supprimer complètement pour une tension de surface de 48 mN/m [5, 27]. Elle joue également, avec la viscosité, un rôle prépondérant dans le détachement des gouttelettes secondaires lors de l'effondrement du jet [47]. Cependant, à notre connaissance, aucune étude ne semble se consacrer en détail à l'influence de la tension de surface du liquide sur l'impact de goutte.

Certains travaux utilisent des fluides complexes, non newtoniens, pour l'étude d'impact. Les jets de Rayleigh formés présentent des morphologies particulières, non observées dans le cas de liquides newtoniens. Ainsi, des jets de hauteur importante, jusqu'à plusieurs dizaines de centimètres, avec une section uniforme sur sa hauteur, ou des jets avec des gouttes formées en leur milieu peuvent être observés [51].

D'autres études d'impact existent, mettant en jeu des liquides différents entre la goutte et le bain. Cependant, ceux-ci sont généralement complexes et sont étudiés pour des situations bien particulières, comme l'interaction entre l'eau et des liquides à très haute température [52, 53], ou l'impact entre deux liquides immiscibles [54, 55]. Bien que ces études mettent en jeu des propriétés de liquide différentes, d'autres effets complexes peuvent s'ajouter, liés par exemple à des différences de température ou des interfaces multiples.

La variation des propriétés du liquide utilisé dans le cas d'impacts de gouttes peut donc mener à la modification de certains événements hydrodynamiques. Ces modifications sont rarement simples et dépendent également du régime d'impact observé. Alors que les effets de la viscosité ont été mis en évidence, ceux de la densité et de la tension de surface sont parfois évoqués, mais ne bénéficient pas d'une étude détaillée. La principale difficulté dans ce type d'étude est l'impossibilité de modifier une des propriétés sans modifier les deux autres, ou sans amener des effets supplémentaires. De plus, la plupart des événements hydrodynamiques sont plutôt pilotés par une compétition entre plusieurs mécanismes mettant en jeu ces propriétés, rendant leur dissociation difficile.

1.1.3 Acoustique de l'impact

Le son produit par l'impact d'une goutte sur un liquide est aisément reconnaissable. En effet, sa structure est globalement la même : un son d'impact suivi plusieurs dizaines ou centaines de millisecondes plus tard d'un ou plusieurs événements acoustiques [20], comme visible en Fig. 1.7. Ces événements prennent la forme d'oscillations amorties, avec

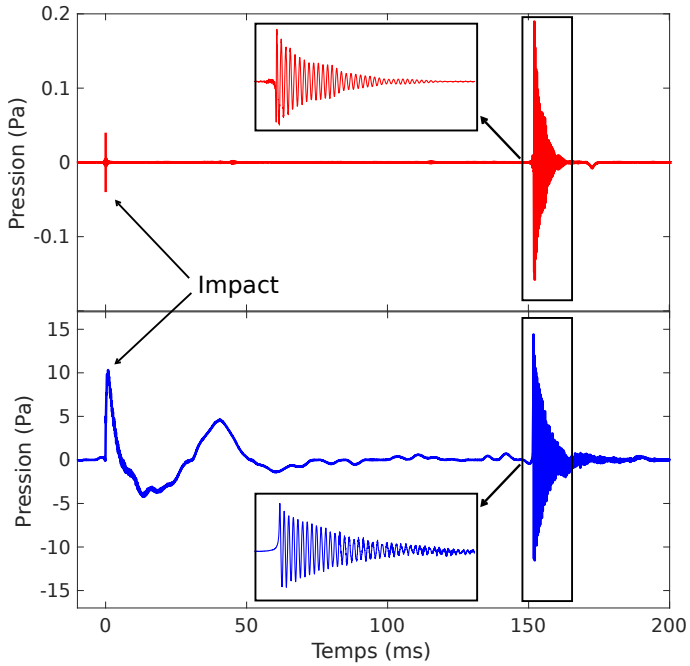

FIGURE 1.7 – Signal acoustique typique d'un impact de goutte d'eau sur de l'eau dans l'air (haut, rouge) et dans l'eau (bas, bleu) : les encadrés sur les deux graphes montrent un zoom de l'événement acoustique démarrant à 150 ms.

généralement une fréquence bien définie. Ce sont eux qui constituent l'essentiel du son perçu lors d'un impact, qui lui donnent son caractère "tonal" et qui peuvent transporter des informations sur les événements hydrodynamiques en jeu.

1.1.3.1 Origine du son

Le son d'un impact de goutte est constitué de deux parties : le son de l'impact initial et celui des événements hydrodynamiques qui en découlent. Le signal de pression à l'impact est un événement très court et de forte intensité, correspondant à l'onde de choc générée par l'extension supersonique de la zone de contact goutte/surface [56, 57]. Son amplitude est proportionnelle à l'énergie cinétique de l'impact [5, 56]. Cependant, la source des événements acoustiques observés par la suite est plus complexe.

Les premières études acoustiques d'impacts sur des liquides proposent différentes explications au son tonal entendu. Tout d'abord, c'est la mise en résonance de cavité ouverte dans le liquide qui est proposée [19], comme montré en Fig. 1.8. Cependant, d'autres études

proposent la vibration des bulles d'air piégées dans le liquide comme source de ce son [58, 59]. L'analyse d'images de l'impact synchronisées avec un enregistrement acoustique permet de mettre en évidence la formation de bulles au moment de l'apparition des événements acoustiques, allant donc plutôt dans le sens de la seconde hypothèse. La fréquence de résonance théorique f_M d'une bulle sphérique dans un milieu infini est donnée par la formule de Minnaert [59] :

$$f_M = \frac{1}{2\pi R_0}\sqrt{\frac{3\gamma P_0}{\rho}}, \tag{1.1}$$

avec R_0 le rayon de la bulle, γ le rapport des chaleurs spécifiques du gaz dans la bulle, P_0 la pression et ρ la densité du liquide. La comparaison de la fréquence des événements acoustiques avec la fréquence théorique des bulles observées montre un bon accord et apporte un argument supplémentaire à l'hypothèse de la vibration de bulle comme source acoustique [21, 60]. De plus, il est également reporté que des impacts sans formation de bulles n'émettent pas de son [5]. Depuis, la majorité des études considère la vibration des bulles formées durant l'impact comme la source des événements acoustiques dans l'eau et dans l'air.

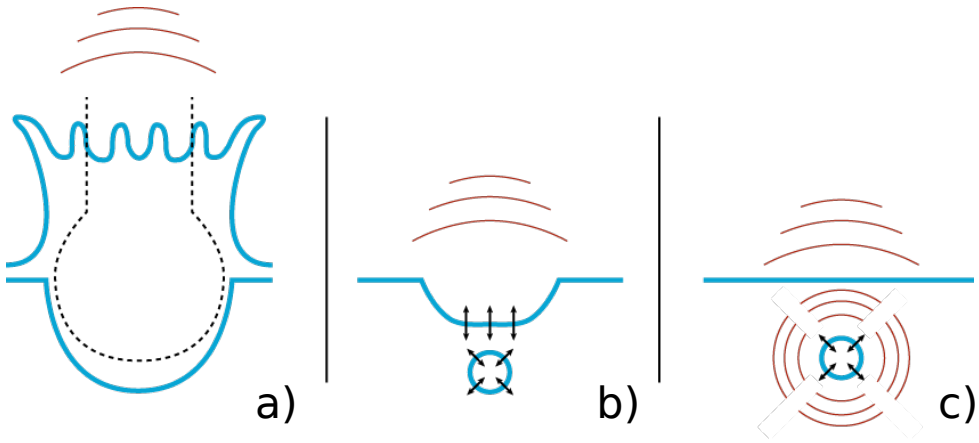

FIGURE 1.8 – Différents mécanismes envisagés pour expliquer la source du signal acoustique émis lors de l'impact d'une goutte : a) formation d'un résonateur de Helmholtz par la cavité et la couronne formées à l'impact, b) vibration d'un volume de liquide entre une bulle et la surface, c) vibration d'une bulle dans le liquide.

Cependant, ce modèle n'est pas complètement accepté par tous. Le doute est principalement émis sur la source du signal acoustique dans l'air. Ainsi, certaines études proposent un modèle basé sur la résonance de cavité ouverte [61] ou bien sur la vibration d'un volume

de liquide entre une bulle et l'interface [62], comme illustré en Fig. 1.8, pour expliquer l'origine d'événements acoustiques observés sur le signal du microphone. Même si certains de ces modèles sont invalidés par des simulations numériques [63], les incohérences qu'ils mettent en évidence entre les prévisions théoriques et les mesures microphoniques sont à prendre en considération.

1.1.3.2 Principales études acoustiques d'impact

Alors que beaucoup d'études existent sur l'hydrodynamique de l'impact d'une goutte sur une surface liquide, les études de l'acoustique de cet impact sont plus rares. En effet, après les études mettant en évidence la source des événements acoustiques, détaillées précédemment, seuls certains travaux existent, consacrés à la description détaillée de signaux pour des régimes particuliers à l'aide de vidéos [39], à l'identification de certains événements acoustiques [64] ou bien à la mise en évidence de formes temporelles particulières [38].

Cependant, certaines études mettent en évidence ou montrent des résultats surprenants, généralement en désaccord avec les modèles classiques. Par exemple, les fréquences de bulles mesurées sont souvent légèrement différentes des fréquences prédites par le modèle de Minnaert, parfois jusqu'à 30 % plus élevées [22, 37, 62]. Même si cet écart est souvent faible et attribué aux incertitudes de mesure, son observation systématique peut être due à un comportement particulier des bulles. De plus, la fréquence des oscillations de pression produites par une bulle, dans le cas d'un impact de goutte, montre parfois une augmentation significative en fonction du temps, jusqu'à 100 % [3], alors que celle-ci est considérée constante dans la majorité des études. Un exemple de signal d'impact d'une goutte mesuré à l'hydrophone en représentation temps-fréquence, affiché en Fig. 1.9, montre en effet une augmentation progressive de la fréquence du signal de bulle, passant de 3.5 kHz à 4.5 kHz. De la même manière, alors que la plupart des études sont réalisées seulement sur le signal acoustique dans l'eau, la comparaison des signaux acoustiques dans l'air et dans l'eau montre généralement un rapport d'amplitude air/eau plus élevé qu'attendu, en considérant la source acoustique comme étant la bulle [65]. Ces différentes incohérences relevées ne sont pas toutes résolues, et montrent que les mécanismes d'émission acoustique en jeu sont probablement plus complexes que ce qui est décrit dans la littérature.

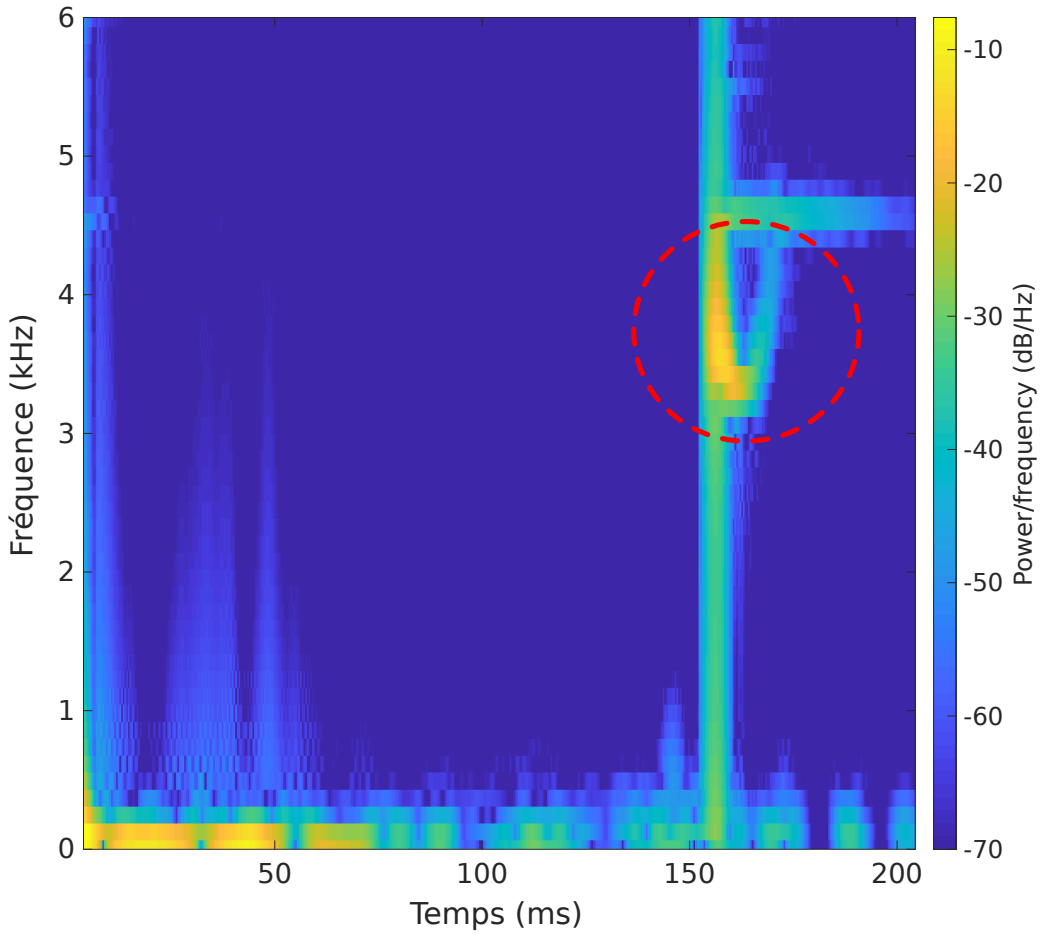

FIGURE 1.9 – Représentation temps-fréquence d'un enregistrement hydrophonique d'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau. Le cercle en pointillés rouges montre le son de la bulle.

Le son produit par l'impact d'une goutte sur une surface liquide est donc peu étudié. La mise en évidence des principales sources d'émission acoustique et la simplicité apparente du signal donnent probablement l'impression que le phénomène est bien compris. Cependant, la remise en cause récente des modèles jusque-là acceptés et la mise en évidence de points de désaccord entre modèles et mesures montrent que la compréhension des phénomènes mis en jeu n'est pas complète. De plus, aucune étude ne reporte des résultats concernant le signal acoustique pour des impacts avec des liquides autres que l'eau. A notre connaissance, seule une rapide observation est mentionnée dans [5], indiquant que l'ajout de tensioactif au liquide semble supprimer le son perçu lors d'un régime de *regular entrainment*.

1.2 Physique de la tension de surface

Un des objectifs de cette thèse est d'étudier les effets de la tension de surface sur l'hydrodynamique et l'acoustique d'impact d'une goutte. Pour cela, il faut avant tout comprendre comment fonctionne physiquement la tension de surface et quels sont ses effets sur une interface. Cette partie regroupe ainsi les informations essentielles concernant la tension de surface, de même que les façons de la mesurer et de la modifier.

La tension de surface est un phénomène ayant lieu à l'interface entre deux fluides non miscibles, ou entre un liquide et un gaz comme le cas de l'eau et l'air. Elle correspond à la tendance des fluides à réduire leur surface de contact, conduisant par la même occasion à minimiser l'énergie globale du système [66]. Les molécules au sein d'un même liquide s'attirent via des forces intermoléculaires. Une molécule au sein du liquide subit ainsi une attraction de la part de toutes ses voisines, menant à une résultante nulle, donc à un équilibre (Fig. 1.10). Cependant, les molécules liquides situées à l'interface entre le liquide et le gaz subissent sur une moitié d'espace des interactions avec les autres molécules du liquide, et sur l'autre moitié des interactions avec les molécules du gaz. L'interaction avec les molécules du gaz étant plus faible, un déséquilibre existe pour ces molécules, qui sont plus attirées vers le liquide [67]. Ce déséquilibre se traduit par un excédent d'énergie à la surface. Cette énergie potentielle, d'autant plus importante que la surface est étendue, doit être minimale afin d'assurer la stabilité de l'équilibre : la surface de contact entre deux fluides est donc naturellement maintenue la plus faible possible. Ce principe explique par exemple la forme sphérique des bulles ou des gouttes à l'équilibre, la sphère étant la forme présentant la surface la moins étendue pour un volume donné.

La tension de surface étant donc une énergie par unité de surface, elle est exprimée en J/m^2. Cependant, elle est souvent assimilée à une force de rappel et s'exprime plus communément en mN/m. La surface d'un liquide peut en effet être vue comme une membrane élastique tendue. La force de rappel associée à cette élasticité est la force capillaire [68]. Cette force est tangente à la surface et va ainsi à l'encontre de toute déformation du liquide.

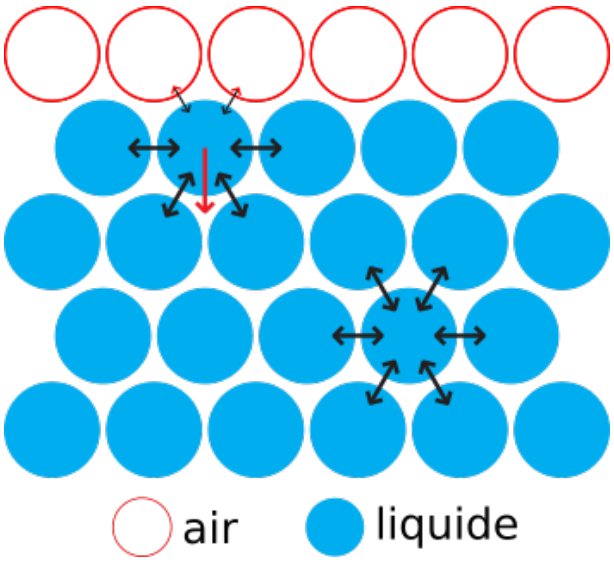

FIGURE 1.10 – Illustration du phénomène de tension de surface pour un liquide en contact avec l'air : les molécules dans le liquide sont soumises aux mêmes interactions dans toutes les directions, alors que les molécules à l'interface sont soumises à des interactions plus fortes avec les molécules du liquide qu'avec les molécules de l'air, créant une résultante vers l'intérieur du liquide.

1.2.1 Modification de la tension de surface

La tension de surface d'un liquide peut être modifiée de plusieurs manières. Cette modification se fait en jouant sur les interactions intermoléculaires dans le liquide ou directement à l'interface. On peut distinguer ainsi plusieurs cas, décrits ci-après.

1.2.1.1 Mélange de solutions

Une façon simple de modifier les interactions moléculaires au sein d'un liquide est de le mélanger avec un autre liquide d'une nature différente. La solution ainsi créée est constituée de plusieurs types de molécules avec des interactions différentes, ce qui modifie la somme des interactions subies par chaque molécule [69] (comme illustré en Fig. 1.11). Ainsi, quand on mélange de l'eau (interactions fortes) avec de l'éthanol (interactions faibles), la solution obtenue a une tension de surface située entre celle de l'eau et celle de l'éthanol, et dont la valeur est plus ou moins élevée suivant la fraction du mélange. Cependant, ce genre de mélange modifie généralement les autres propriétés du liquide (densité, viscosité).

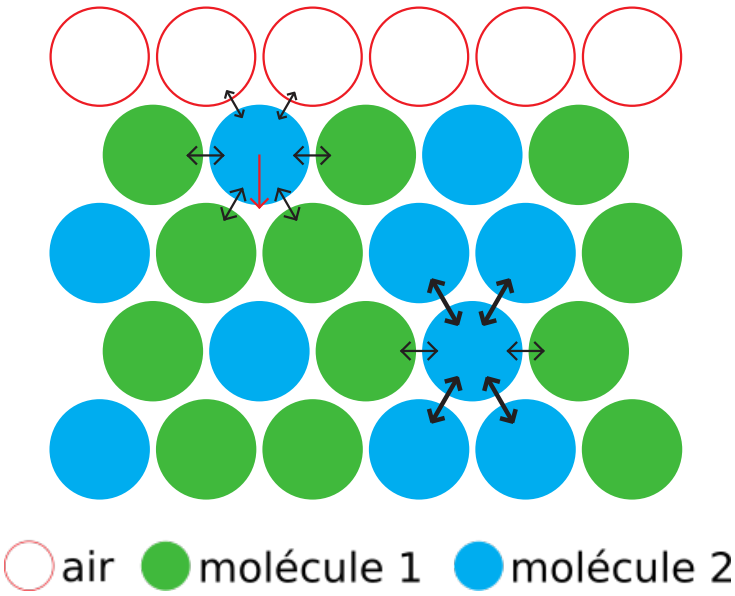

FIGURE 1.11 – Illustration de l'interface entre un mélange de deux liquides de natures différentes et l'air : à l'interface, la somme des interactions d'une molécule avec les molécules des deux types est différente du cas où un seul type de molécule est présent.

1.2.1.2 Modification de la température

La tension de surface d'un liquide dépend de sa température. En effet, une augmentation de l'agitation thermique des molécules, due à une augmentation de température, diminue en général les interactions intermoléculaires. Ainsi, la tension de surface d'un liquide décroît quand la température augmente. La tension de surface σ d'un liquide en fonction de sa température peut ainsi être estimée par [70] :

$$\sigma = k_\sigma \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^n , \tag{1.2}$$

avec T la température du liquide, T_c la température critique du liquide, k_σ une constante propre au liquide et n un facteur empirique. Cependant, la température influence également les autres propriétés du liquide (densité, viscosité).

1.2.1.3 Utilisation de tensioactifs

Les molécules tensioactives ont une structure particulière : elles sont constituées d'une tête hydrophile et d'une queue hydrophobe. Ainsi, quand elles sont au contact de l'eau, ces molécules se placent préférentiellement à l'interface, afin de pouvoir satisfaire leurs

deux parties. Ainsi, l'interface est constituée de molécules de tensioactif et d'eau, les interactions intermoléculaires diminuent et la tension de surface diminue [71], comme illustré en Fig. 1.12. L'avantage de cette méthode de changement de tension de surface par rapport à celles évoquées précédemment est que, généralement, une faible concentration de tensioactif permet une diminution significative de la tension de surface. Ainsi, les autres propriétés de la solution (viscosité, densité) ne sont généralement que faiblement modifiées. Cependant, une solution de tensioactifs a une dynamique particulière, qui peut engendrer des phénomènes plus complexes que la simple diminution de la tension de surface. Ces phénomènes sont essentiels à prendre en compte dans l'étude et sont détaillés dans la partie 1.2.2.

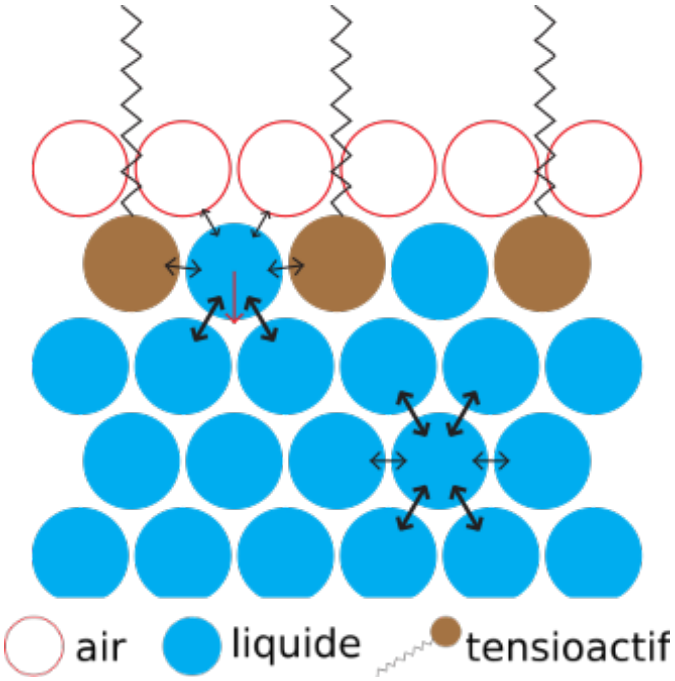

FIGURE 1.12 – Illustration de l'interface entre un liquide avec tensioactif et l'air : les interactions entre les molécules de liquide et les molécules de tensioactif à l'interface sont plus faibles que les interactions entre les molécules du liquide, ce qui diminue la résultante à l'interface.

1.2.2 Propriétés des tensioactifs

Comme indiqué précédemment, l'utilisation de tensioactifs permet de diminuer la tension de surface de l'eau. Mais la dynamique des molécules de tensioactif dans le liquide

est complexe. Leur comportement en solution doit ainsi être étudié en détail afin de bien comprendre leurs effets sur l'hydrodynamique de la solution.

1.2.2.1 Concentration Micellaire Critique (CMC)

L'ajout de molécules de tensioactif à un volume d'eau modifie donc la tension de surface du liquide (Fig. 1.13-a). La tension de surface diminue d'autant plus que la concentration en tensioactif est élevée (Fig. 1.13-b). Cependant, il existe une concentration maximale pour laquelle l'interface est saturée en molécules de tensioactif. Cette concentration est appelée la concentration micellaire critique (CMC) (Fig. 1.13-c). Pour des concentrations supérieures à la CMC, les molécules de tensioactif s'accumulent au sein du liquide (Fig. 1.13-d). Afin de satisfaire leur queue hydrophobe, ces molécules se regroupent sous forme de sphères avec leur queue dirigée vers l'intérieur et leur tête vers l'extérieur, au contact de l'eau. Ces regroupements sont appelés des micelles. L'interface du liquide étant saturée, la tension de surface ne diminue plus (ou beaucoup moins) pour des concentrations supérieures à la CMC. La tension de surface minimale obtenue à ce moment-là dépend de la capacité tensioactive de la molécule. De plus, l'augmentation de la présence en micelles dans le liquide mène généralement à une augmentation plus importante de la viscosité pour des concentrations supérieures à la CMC. Cette CMC est donc un paramètre propre au tensioactif, et dépend de la nature de la molécule. Elle est généralement mesurée en relevant la tension de surface pour plusieurs concentrations jusqu'au seuil où la tension de surface se stabilise.

De nombreux modèles existent pour décrire le comportement des tensioactifs. Ainsi, l'augmentation de la concentration surfacique de tensioactif Γ quand la concentration de tensioactif dans la solution c augmente (en-dessous de la CMC) est décrite par le modèle de Langmuir [72] :

$$\Gamma = \Gamma_\infty \frac{K_L c}{1 + K_L c}, \tag{1.3}$$

avec Γ_∞ la concentration surfacique maximale et K_L la constante d'adsorption à l'équilibre de Langmuir. Une fois cette concentration surfacique connue, il est possible d'en déduire la tension de surface de la solution à partir de l'équation de Frumkin [73] :

$$\sigma = \sigma_0 + RT\Gamma_\infty \ln(1 - \frac{\Gamma}{\Gamma_\infty}), \tag{1.4}$$

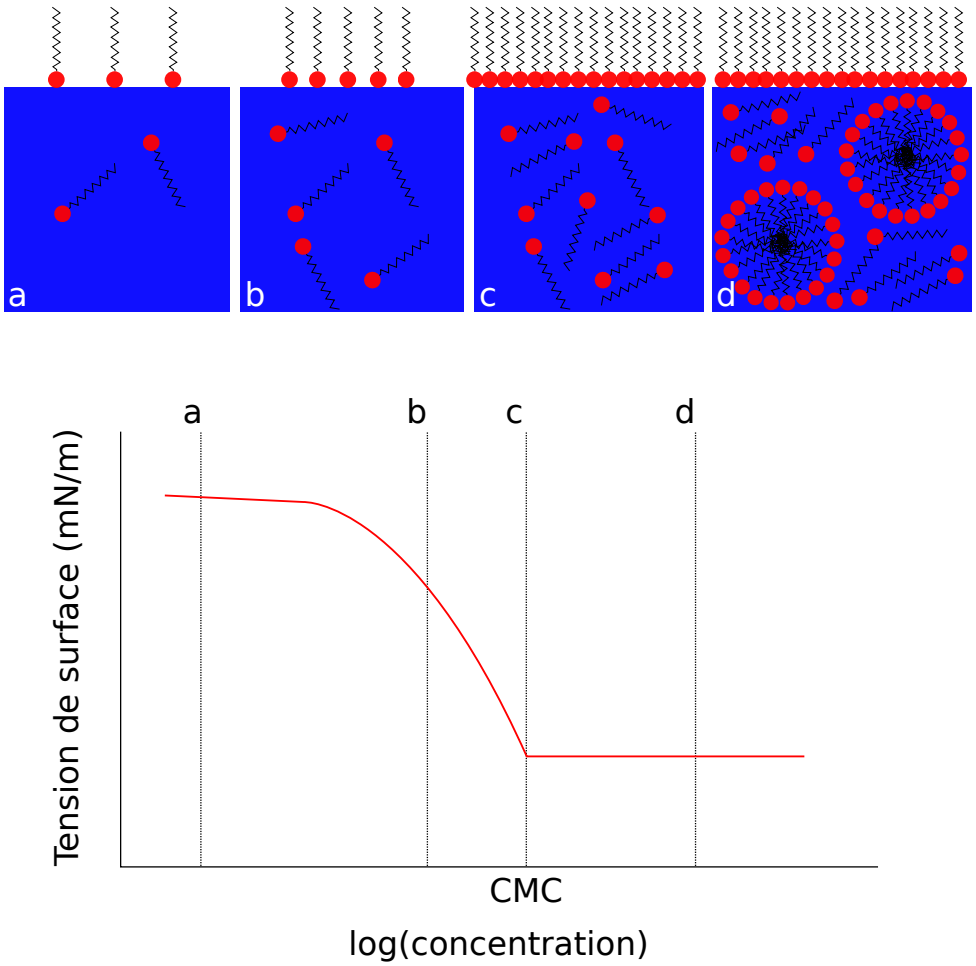

FIGURE 1.13 – Évolution de la tension de surface en fonction de la concentration de tensioactif. Dès l'ajout de tensioactif au liquide, la tension de surface diminue (a). Plus la concentration en tensioactif dans le liquide augmente, plus la concentration de tensioactif à l'interface augmente, i.e. plus la tension de surface diminue (b), jusqu'à saturation de l'interface (c). Pour des concentrations encore plus élevées, la tension de surface ne diminue plus, et des micelles se créent dans le liquide (d).

avec R la constante des gaz parfaits, T la température du liquide et σ_0 la tension de surface du solvant pur. Ces deux modèles permettent ainsi de prédire la tension de surface d'une solution à partir de la concentration de tensioactif dans le bain.

1.2.2.2 Dynamique de tensioactif

La migration des molécules de tensioactif du bain vers une interface vierge (phénomène appelé "adsorption") ne se fait pas instantanément. En effet, cette adsorption prend un certain temps qui dépend de la nature de la molécule et de la concentration de tensioactif dans le bain. Ainsi, en imaginant un bain d'eau avec une certaine concentration de tensioactif, une interface nouvellement créée va être peuplée progressivement de tensioactifs, jusqu'à ce qu'un équilibre entre le bain et la surface soit atteint. Durant ce temps, la concentration en tensioactif à la surface augmente progressivement, faisant donc progressivement baisser la tension de surface [74]. Un exemple de l'évolution de la tension de surface en fonction du temps est présenté en Fig. 1.14, pour une solution d'eau et de sodium dodecyl sulfate (SDS) à une concentration correspondant à la CMC. Dans ce cas, l'équilibre est atteint au bout d'environ 10^3 secondes, pour une tension de surface de 33 mN/m.

Dans le cas de solutions de tensioactif, le temps caractéristique de mesure est donc important. Suivant que l'information recherchée est la tension de surface à l'équilibre (atteinte après quelques secondes ou après plusieurs jours suivant le tensioactif) ou bien la tension de surface dynamique (tension de surface hors équilibre), la méthode utilisée pour sa mesure doit être adaptée. Ainsi, dans le cas des travaux présentés dans ce document, et comme détaillé dans la partie 2.2, deux méthodes complémentaires sont utilisées. D'une part, la méthode de pression de bulle maximale permet de mesurer la tension de surface dynamique pour des temps inférieurs à la seconde. Cette mesure est essentielle car, dans le cas d'impact d'une goutte, les processus de création d'interface durent quelques millisecondes, et toute la dynamique d'interface avant le retour à l'équilibre dure moins d'une seconde. Ainsi, pendant les différents événements hydrodynamiques, c'est la tension de surface dynamique qui entre en jeu. Cette mesure permet, dans l'exemple de la Fig. 1.14, d'obtenir les points intermédiaires entre la tension de surface de la surface nouvellement créée à 0 seconde (qui est la tension de surface de l'eau pure, soit environ 72 mN/m) et le premier point de mesure présenté ici à 1 seconde. D'autre part, la seconde méthode

utilisée, la méthode de profilométrie, permet de mesurer la tension de surface dynamique au-delà de la seconde, jusqu'à la tension de surface à l'équilibre, qui correspond à la tension de surface du bain avant l'impact de la goutte et à celle de la surface non perturbée après l'impact. C'est cette méthode qui est utilisée pour obtenir la courbe présentée en Fig. 1.14.

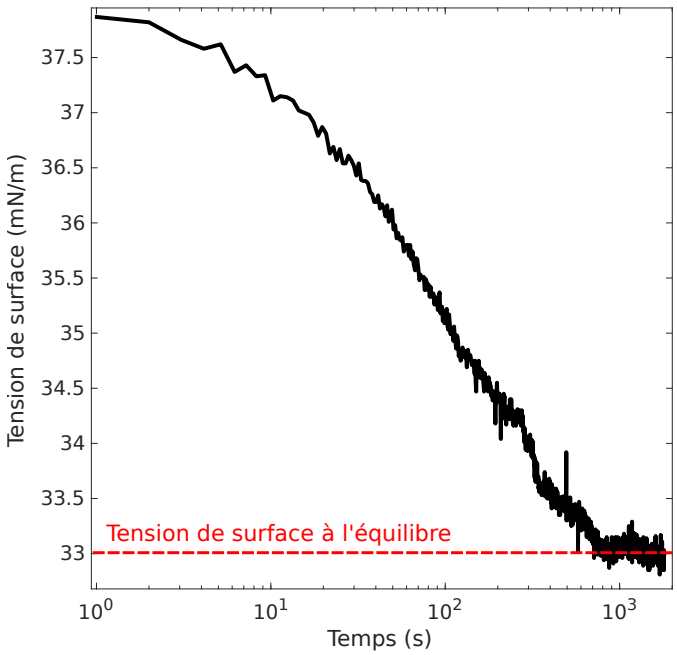

FIGURE 1.14 – Tension de surface dynamique en fonction du temps pour une solution d'eau et de SDS à la CMC.

Des modèles existent également pour décrire l'adsorption progressive des molécules de tensioactifs à l'interface. Ainsi, en considérant que ce processus d'adsorption se fait généralement par diffusion, l'évolution de la concentration surfacique $\Gamma(t)$ dans le temps peut être décrite par le modèle de Ward et Tordai, pour une interface plane [75, 76] :

$$\Gamma(t) = \sqrt{\frac{4D}{\pi}} \left(c\sqrt{t} - \int_0^t \frac{c_s(\tau)}{\sqrt{t-\tau}} d\tau \right), \tag{1.5}$$

avec t le temps, D le coefficient de diffusion, c la concentration de tensioactif dans la solution, c_s la concentration de tensioactif au niveau de la subsurface et τ une variable d'intégration.

1.2.3 Effet Marangoni

Généralement, la tension de surface d'un liquide est la même sur toute sa surface. Cependant, il peut arriver que des différences de tension de surface apparaissent. Ceci peut arriver par exemple, dans le cas d'un chauffage non uniforme de la surface, ou bien dans le cas de la création de nouvelles surfaces dans un bain de tensioactif, comme vu précédemment. L'apparition de gradients de tension de surface mène à un phénomène particulier, appelé effet Marangoni. Un mouvement de liquide s'effectue le long de l'interface, de la zone avec la tension de surface la plus faible jusqu'à la zone avec la tension de surface la plus élevée. La vitesse du flux est d'autant plus importante que la différence de tension de surface est élevée, mais diminue quand la viscosité augmente. Ainsi, dans le cas d'une goutte de tensioactif déposée sur un bain d'eau [77] :

$$V_M \propto \left(\frac{(\sigma_0 - \sigma)^2}{\eta \rho r_t} \right)^{1/3}, \tag{1.6}$$

avec V_M la vitesse du flux de liquide, σ_0 et σ les tensions de surface de l'eau et de la solution de tensioactif respectivement, η la viscosité dynamique du fluide, ρ sa densité et r_t la distance depuis la source.

FIGURE 1.15 – Illustration de l'effet Marangoni : un flux de liquide tangent à l'interface est créé par un gradient de tension de surface, avec une vitesse V_M proportionnelle à la valeur de ce gradient.

1.3 Conclusion

Les études existantes d'impact d'une goutte couvrent un grand nombre de régimes d'impact dans le cas de l'eau. Plusieurs mécanismes d'emprisonnement de bulle sont mis en évidence pour ces différents régimes. Cependant, à l'inverse des autres régimes définis par Pumphrey [5], le régime *irregular entrainment* n'est pas associé dans la littérature à un mécanisme particulier d'emprisonnement de bulle.

Des études acoustiques de l'impact existent également. Cependant, celles-ci sont peu nombreuses et s'intéressent rarement aux détails du signal, hormis la fréquence du signal acoustique produit par les bulles emprisonnées. Pourtant, des incohérences entre les modèles utilisés et les mesures sont mises en évidence et montrent bien que les mécanismes à l'origine du signal acoustique ne sont pas totalement connus.

Bien que les études sur l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau soient relativement nombreuses, les études employant des liquides différents de l'eau sont plus rares, et concernent, la plupart du temps, des liquides particuliers qui sont propres à certains contextes. Quelques études plus génériques se concentrent sur l'influence des propriétés du liquide sur le déroulement de l'impact, mais elles concernent principalement la viscosité. De plus, ces dernières études sont souvent réalisées pour le régime *regular entrainment* ou bien pour des régimes d'impact ne produisant pas de bulles. Ainsi, bien que l'influence des propriétés du liquide sur l'hydrodynamique de l'impact soit partiellement connue, leur influence sur le signal acoustique associé reste encore à étudier.

Plus particulièrement, l'influence de la tension de surface est peu étudiée. Pourtant, le déroulement de l'impact mettant en jeu des phénomènes variés à l'interface (création d'interface, ondes capillaires, détachements, etc...), le rôle de la tension de surface doit être important. De plus, les différentes manières de modifier la tension de surface amènent des comportements particuliers, qui peuvent d'autant plus modifier les différents événements hydrodynamiques engendrés par l'impact.

Chapitre 2

Techniques de mesure et traitement

2.1 Introduction

Dans le cadre de cette thèse, des dispositifs adaptés à la mesure d'impacts de gouttes ainsi que des programmes de traitements ont été développés. Le montage expérimental du laboratoire, déjà existant au début de la thèse, a été optimisé et modifié dans le but d'automatiser les mesures. Un dispositif de mesure portable, inspiré du montage du laboratoire, a également été développé afin de permettre des mesures en piscine. Les différents programmes de traitement décrits dans cette partie, à la fois acoustiques et vidéos, ont quasiment tous été développés au cours de la thèse. Les différents montages expérimentaux utilisés, ainsi que le fonctionnement détaillé des programmes de traitement, sont décrits dans cette partie.

2.2 Dispositif de mesure en laboratoire

2.2.1 Montage expérimental pour la mesure d'impacts de gouttes

L'impact d'une goutte sur un liquide est un phénomène rapide et d'intensité acoustique faible. Son étude expérimentale nécessite donc un dispositif adapté à ces différentes contraintes. De plus, les événements hydrodynamiques mis en jeu sont très sensibles aux moindres perturbations, rendant ainsi les résultats légèrement variables d'une mesure à l'autre. Ainsi, un grand nombre de mesures est nécessaire pour quantifier cette variabilité. Le dispositif doit donc pouvoir fonctionner de manière automatique pour permettre l'acquisition de nombreuses mesures.

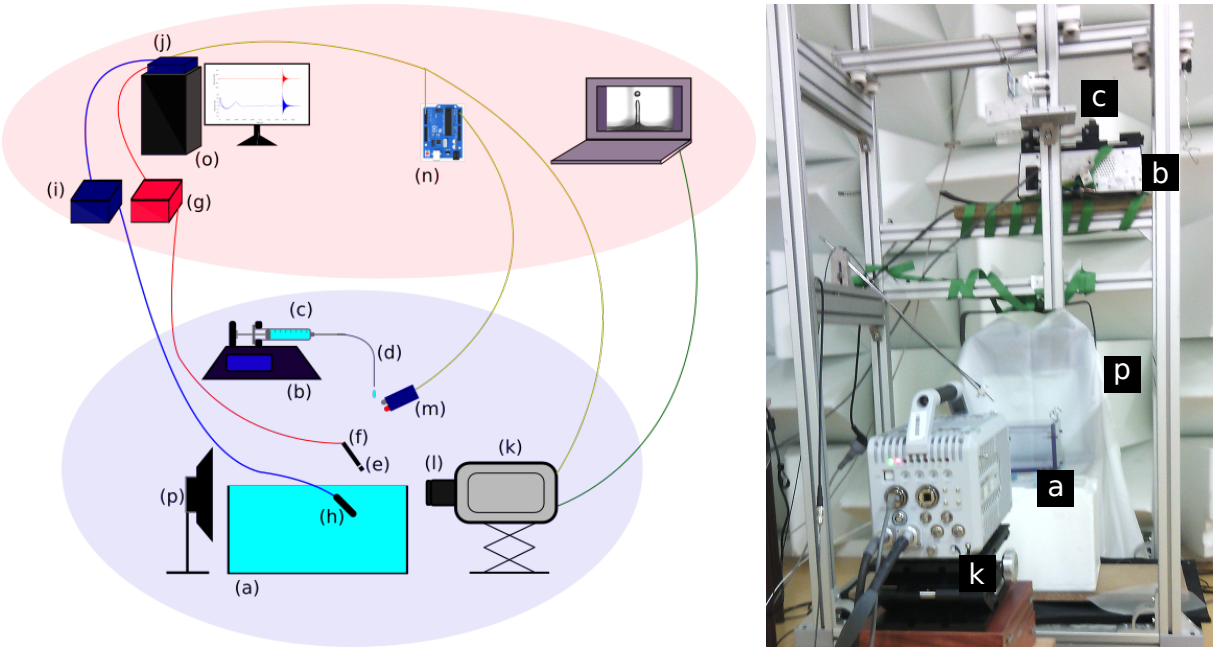

FIGURE 2.1 – Schéma (gauche) et photographie (droite) du montage expérimental du laboratoire : a) Aquarium, b) Pousse-seringue, c) Seringue, d) Capillaire, e) Microphone, f) Pré-amplificateur, g) Conditionneur, h) Hydrophone, i) Conditionneur, j) Carte d'acquisition, k) Caméra rapide, l) Objectif, m) Détecteur infrarouge, n) Carte Arduino, o) Ordinateur central, p) Lampe LED.

Le montage expérimental utilisé est illustré en Fig. 2.1. Une structure métallique, conçue à partir de rails standards du commerce, permet la fixation et le changement facile de la position des différents éléments du montage. Un aquarium (a) est situé sur une plateforme au milieu de cette structure et est supporté par des mousses afin de limiter la transmission des vibrations extérieures à l'aquarium, qui viendraient perturber les mesures à l'hydrophone. Le choix de l'aquarium utilisé, avec ses dimensions et le matériau constituant ses parois, est détaillé dans la partie 2.2.3. Une goutte est générée par un pousse-seringue PhD Utra (b) équipé d'une seringue de 60 mL (c), qui est prolongée d'un capillaire en Teflon (d) de diamètres intérieur et extérieur de 1 mm et 1.5 mm respectivement. L'autre extrémité de ce tuyau est fixée verticalement au-dessus de l'aquarium. La goutte se forme ainsi à cette extrémité et se détache d'elle-même quand son poids dépasse les forces de tension de surface qui la retiennent. Le pousse-seringue est relié à l'ordinateur central (o) qui permet de le piloter. La hauteur de chute de la goutte est fixée pour une même série de mesures entre 74 et 77 cm afin d'observer le régime d'impact choisi.

Le signal acoustique est mesuré dans l'air par un microphone G.R.A.S. type 40BP d'un quart de pouce (e). Il est relié à un préamplificateur G.R.A.S. type 26AC (f), lui-même connecté à un conditionneur Brüel et Kjær type 2690 (g). Le microphone est placé entre 6 et 7 cm du point d'impact afin de capter le maximum de signal acoustique, tout en évitant qu'il soit atteint par des gouttelettes éjectées par l'impact.

Le signal acoustique dans le liquide est mesuré par un hydrophone Brüel et Kjær type 8103 (h), connecté à un conditionneur Brüel et Kjær type 2692-0S4 (i). L'hydrophone est placé entre 5 et 6 cm à la verticale du point d'impact pour pouvoir enregistrer les variations de pression hydrodynamique engendrées par les flux de liquide lors de l'impact, qui ne sont mesurables qu'en champ proche, tout en évitant de perturber l'hydrodynamique de l'impact.

Les deux signaux acoustiques sont enregistrés par un oscilloscope numérique Picoscope 4262 (j) à une fréquence d'échantillonnage de 500 kHz. Cette fréquence élevée permet de préserver les détails du signal de pression, et principalement certains motifs très brefs parfois visibles sur les signaux. Une série de mesures est réalisée également à une fréquence d'acquisition de 1 MHz afin d'étudier en détail un événement très rapide.

Les images de l'impact sont enregistrées par une caméra rapide Photron FastCam SAX2 (k), équipée d'un objectif Sigma Macro 105 mm (l). Cette caméra rapide permet d'offrir une résolution d'image allant jusqu'à 1024×1024 pixels, et une fréquence d'acquisition allant jusqu'à 1 MHz. Dans le cadre de cette étude, une fréquence d'acquisition de 20 kHz est choisie, afin de disposer d'une bonne résolution d'image (limitée à 1024x672 pour cette fréquence) tout en permettant d'observer en détail la succession d'événements hydrodynamiques suite à l'impact. Une série de mesures est réalisée à une fréquence d'acquisition de 40 kHz afin de suivre plus en détail un événement hydrodynamique rapide. Les prises de vue sont réalisées sous la surface, au-dessus de la surface ou les deux à la fois suivant les séries de mesure et les événements d'intérêt. L'éclairage est assuré en contre-jour par une lampe LED RS Pro de 50 W (p). Avant chaque série de mesures, l'image d'un objet cylindrique de 12 mm de diamètre est systématiquement enregistrée afin de pouvoir étalonner les images en terme de dimensions. Cet objet permet également de faire la mise au point au niveau de l'impact, à la fois dans le liquide et au-dessus.

L'acquisition des différentes mesures acoustiques et vidéos est déclenchée par un même signal, de manière à pouvoir les synchroniser par la suite. Ce signal est généré par un module de détection de proximité à infrarouge XCSource TE174 (m), relié à une carte Arduino Mega (n). Ce module est composé d'un émetteur et d'un capteur infrarouge. Quand un objet est positionné devant le module, suffisamment proche, la lumière infrarouge de l'émetteur se réfléchit sur cet objet et est captée par le récepteur. Quand ce récepteur capte le rayonnement, la sortie du module est modifiée, ce qui est détecté par la carte Arduino à l'aide d'un simple algorithme. La sensibilité du capteur peut être modifiée à l'aide d'un potentiomètre directement sur le module. Le module est positionné quelques centimètres en-dessous de la sortie du capillaire permettant la génération de goutte. Ainsi, il peut détecter le passage d'une goutte alors que celle-ci vient de se détacher. Cependant, la transparence du liquide généralement utilisé pour générer des gouttes rend sa détection difficile par le module infrarouge. Un objet avec une surface réfléchissante est ainsi placé en face du détecteur, suffisamment loin pour que sa présence ne soit pas détectée. Le module est de plus penché à environ 45° par rapport à l'horizontale. Cette configuration permet aux gouttes transparentes d'être détectées efficacement par le module.

Le logiciel utilisé pour l'acquisition des signaux acoustiques est un logiciel en langage Python qui pilote la carte d'aquisition utilisée. Il a été développé au laboratoire par James Blondeau, assistant ingénieur au CNRS et membre du LAUM. Il permet de définir les paramètres d'acquisition (temps, fréquence d'acquisition, nombre de niveaux de codage, etc...) et de lancer l'acquisition. Dans le cadre de ces travaux de thèse, des modifications sont apportées par nos soins à ce logiciel afin de l'adapter aux mesures d'impacts de gouttes et d'automatiser le processus de mesure.

Enfin, le dispositif de mesure est disposé dans la salle semi-anéchoïque du laboratoire. Cette salle a une fréquence de coupure à 100 Hz et une température globalement constante autour de 19 °C. Les mesures sont ainsi réalisées avec un niveau de bruit très faible et une température relativement constante.

2.2.2 Protocole de mesure

Les mesures d'impacts sont réalisées de deux manières : soit le signal acoustique et la vidéo sont enregistrés simultanément, soit seul le signal acoustique est enregistré.

Chaque acquisition est pilotée automatiquement par le logiciel développé en langage Python. Dans un premier temps, les paramètres de l'acquisition sont sélectionnés dans le logiciel principal, ainsi que dans le logiciel d'acquisition vidéo quand la vidéo est utilisée. La mesure est ensuite déclenchée via le logiciel principal. Le pousse-seringue est alors mis en marche automatiquement. Au moment où la goutte se détache du capillaire, son passage est détecté par le capteur infrarouge. Le signal que celui-ci envoie déclenche les acquisitions vidéos et acoustiques, ainsi que l'arrêt du pousse-seringue. En effet, celui-ci produit un bruit important, son arrêt est donc nécessaire avant l'impact afin de ne pas perturber les mesures. La vidéo et les signaux acoustiques de l'impact sont ensuite acquis et enregistrés.

Dans le cas de mesures purement acoustiques, l'acquisition et l'enregistrement peuvent être réalisés automatiquement d'une mesure à l'autre. Ainsi, des séries de plusieurs mesures successives peuvent être réalisées. Le temps d'attente entre deux mesures peut être réglé afin de laisser le temps au système de revenir à l'équilibre. Ce temps d'attente est au minimum de 10 secondes, le temps de générer la goutte suivante, mais il peut être réglé à plusieurs minutes pour des produits à dynamique plus lente.

Dans le cas des mesures avec variation des propriétés des liquides, un protocole de mesure complémentaire est mis en place. Les mesures sont réalisées par concentrations successives. Ces concentrations sont réalisées par dilutions successives ou bien par ajout progressif suivant le produit utilisé. Ces dilutions ou ajouts sont calculés afin de garder le même volume de liquide dans l'aquarium, l'interface devant être maintenue au même niveau d'une vidéo à l'autre. Entre chaque nouvelle concentration, un temps d'attente est respecté afin que le bain atteigne un équilibre. Ce temps est court (de l'ordre de 5 minutes) pour les mélanges de liquide, et plus long (de l'ordre de 20 minutes) pour les solutions de tensioactif. Pour chaque concentration, deux configurations sont mesurées : l'impact d'une goutte d'eau distillée sur le bain modifié et l'impact d'une goutte de liquide issu du bain sur le bain. Par la suite, les mesures principalement exploitées sont celles d'impact d'une goutte d'eau distillée sur le bain, mais la seconde configuration présente des résultats qui seront également exploités par la suite. Des seringues et des capillaires différents sont utilisés pour la génération de la goutte entre ces deux configurations afin de ne pas polluer l'eau distillée.

Enfin, pour chaque concentration réalisée, un échantillon de liquide du bain est prélevé afin de mesurer ses propriétés par la suite.

2.2.3 Choix de l'aquarium

L'aquarium contenant le liquide sur lequel la goutte tombe joue un rôle essentiel. En effet, celui-ci doit être assez grand afin que les effets des bords ne perturbent pas l'hydrodynamique de l'impact. Cependant, un grand volume nécessite des doses importantes de produit lors de la modification des propriétés du liquide. L'aquarium joue également un rôle non négligeable au niveau de l'acoustique. En effet, des études récentes montrent qu'un aquarium est un milieu très réverbérant et possède des résonances avec un facteur de qualité élevé [78]. Si ces résonances se situent dans la même bande de fréquence que les phénomènes acoustiques observés, ceux-ci peuvent être modifiés (battements, temps de réverbération important, amplification...). Les constantes de temps observées sont alors celles de l'aquarium plutôt que celles du phénomène analysé. Tous ces critères sont essentiels à prendre en compte dans le choix de l'aquarium à utiliser.

Dans un premier temps, pour les études d'impacts de gouttes d'eau sur une surface d'eau, un aquarium en verre de dimensions extérieures $341\times165\times218$ mm^3 et d'épaisseur de 3.4 mm est choisi. Ses dimensions sont assez larges pour que l'impact se situe loin des bords et son volume important n'est pas gênant car il est rempli uniquement d'eau distillée. Ses parois sont en verre, ce qui n'est pas le matériau idéal du point de vue acoustique. En effet, comme montré dans [78], la dissipation des ondes acoustiques se fait quasiment uniquement dans les parois de l'aquarium. Le verre ayant un facteur de dissipation plus faible que du plastique par exemple, le temps de réverbération est plus important. Cependant, la qualité de l'image à travers la paroi en verre étant nettement supérieure à celle à travers la paroi du l'aquarium en plexiglas, l'aquarium en verre est retenu.

Pour l'étude de l'impact de gouttes sur des liquides plus complexes, un autre aquarium est conçu avec un volume réduit afin de limiter les quantités de produit nécessaires. Les dimensions extérieures sont de $160\times160\times110$ mm^3 et sont conçues pour avoir un impact suffisamment loin des bords et du fond, afin que l'hydrodynamique de l'impact ne soit pas modifiée [79]. Les parois sont réalisées en plexiglas afin d'en faciliter la réalisation, et ont une épaisseur de 10 mm. Ceci permet également d'avoir un facteur de perte plus important dans les parois et ainsi d'amortir les résonances de l'aquarium. De plus, la pe-

tite taille de cet aquarium permet d'avoir une première résonance plus haute en fréquence (autour de 10 kHz) et ainsi de moins perturber les événements acoustiques de plus basses fréquences.

2.3 Dispositif de mesure en piscine

L'utilisation d'un aquarium pour les mesures modifie le signal acoustique mesuré. En effet, les ondes acoustiques émises par la source se réfléchissent sur les parois extérieures de l'aquarium. L'hydrophone mesure ainsi une superposition du signal direct de la source et de ses multiples réflexions. Ainsi, il est intéressant de réaliser des mesures dans un environnement ayant moins d'influence, afin de pouvoir étudier plus précisément l'émission directe de la source. Un récipient de grande taille pour le liquide permet de retarder les premiers échos, et par conséquent de mesurer sur une certaine durée uniquement le signal direct (en négligeant la réflexion à l'interface eau/air, qui ne peut être évitée). Des mesures ont donc été réalisées dans une piscine.

Pour la réalisation des mesures en piscine, un dispositif particulier est conçu, présenté en Fig. 2.2. En effet, il faut pouvoir amener du matériel suffisamment loin des bords afin de retarder au maximum l'arrivée du premier écho et cela en évitant le contact des appareils électroniques avec l'eau. Une plateforme (q) a été conçue dans le but d'être fixée à des structures métalliques (r) déjà présentes à la piscine. Ces structures, fixées ensemble et posées dans le fond de la piscine, dépassent la surface d'environ 1 m, ce qui est suffisant pour les hauteurs de chute testées. Le diamètre des barres de la structure est de quelques centimètres, ce qui est beaucoup plus petit que les longueurs d'onde dans l'eau aux fréquences considérées dans cette étude, elles n'interfèrent donc pas avec les ondes acoustiques, qui ne se réfléchissent que sur les bords de la piscine.

Afin de respecter des mesures de sécurité, aucun appareil sur la plateforme n'est directement alimenté par le réseau électrique. Le pousse-seringue (b), fixé sur la plateforme, fonctionne sur batterie. Le détecteur infrarouge (m) et la carte Arduino (n) qui le pilote sont alimentés par une pile, et la carte Arduino est protégée des éclaboussures en étant placée dans un sachet plastique. Les différents éléments sont rattachés à une ligne de sécurité passant au-dessus du bassin, permettant d'éviter leur chute dans l'eau en cas de basculement de la structure. L'extrémité du tuyau (d) permettant de créer la goutte,

ainsi que le microphone (e) et l'hydrophone (h), sont attachés à une barre de support (s) fixée à la plateforme et descendant jusqu'à la surface. Le microphone, l'hydrophone et la carte Arduino sont reliés à la carte d'acquisition (j), située à 2 m du bord du bassin, par des câbles BNC. Celle-ci est branchée à un ordinateur portable (o) avec le même logiciel qu'utilisé en laboratoire.

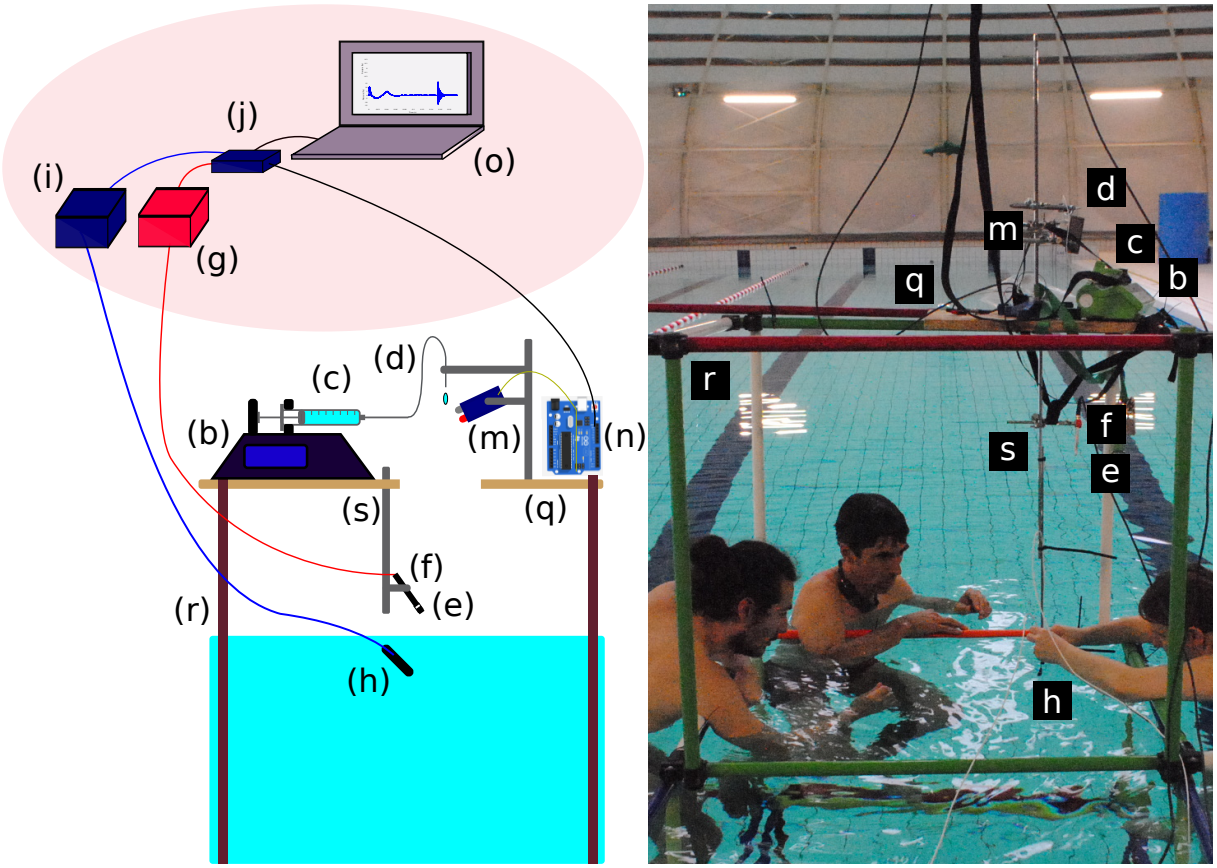

FIGURE 2.2 – Schéma (gauche) et photographie (droite) du montage expérimental utilisé pour les mesures en piscine : b) Pousse-seringue, c) Seringue, d) Capillaire, e) Microphone, f) Pré-amplificateur, g) Conditionneur, h) Hydrophone, i) Conditionneur, j) Carte d'acquisition, m) Détecteur infrarouge, n) Carte Arduino, o) Ordinateur central.

La distance minimale avec les bords du bassin est limitée par sa profondeur. Celle-ci étant de 2.2 m au maximum, le premier écho (sans prendre en compte la réflexion sur l'interface) arrive donc au minimum après environ 3 ms. En observant les mesures faites

en laboratoire, il s'avère que la fréquence de bulles créées ne descend quasiment jamais en-dessous de 3 kHz. D'après les modèles d'amortissement de bulle, à cette fréquence minimale correspond un temps caractéristique d'amortissement maximal de 3 ms. Ainsi, dans cette configuration, le premier écho n'interfère pas avec le signal d'intérêt (ou signal source) de la plupart des bulles. Pour les plus grosses bulles, cet écho arrive suffisamment tard pour être distingué (par un simple fenêtrage temporel) du signal source. En effet, la Fig. 2.3 montre le signal d'une bulle suite à l'impact d'une goutte sur le bassin. Alors que l'enveloppe du sinus suit bien une exponentielle décroissante pour un temps inférieur à 3 ms, une légère augmentation d'amplitude est observable à 3 ms. Cette augmentation est due au premier écho. Une autre réapparition du signal est également visible à 6 ms, correspondant à un deuxième écho.

Le dispositif de mesure en piscine permet ainsi de réaliser des mesures d'impacts de gouttes dans des conditions similaires au laboratoire, tout en réduisant considérablement l'influence du contenant sur le signal acoustique dans l'eau. Les résultats permettent alors de mesurer l'amplitude et l'amortissement réels de la source. Cependant, ce système présente certaines limites. En effet, la configuration actuelle n'inclut pas l'utilisation d'une caméra rapide. Les mesures sont donc purement acoustiques, ce qui réduit la quantité d'informations récoltées. Par ailleurs, le liquide utilisé dans ces mesures est l'eau de la piscine, qui a une composition différente de celle utilisée en laboratoire. Cependant, des mesures d'impacts de gouttes au laboratoire, dans un aquarium, avec un échantillon d'eau prélevé dans la piscine, ne montrent pas de différences significatives avec les mesures utilisant de l'eau distillée. Un autre problème de cette configuration est l'impossibilité d'utiliser d'autres liquides pour les mesures en piscine. L'ajout d'un petit récipient, suspendu à la plateforme et plongé en partie dans la piscine, pourrait permettre de réaliser des mesures d'impacts avec des liquides différents tout en profitant de l'avantage acoustique offert par la piscine, dans la mesure où les parois extérieures du petit récipient n'introduisent pas de saut d'impédance important par rapport à l'impédance de l'eau.

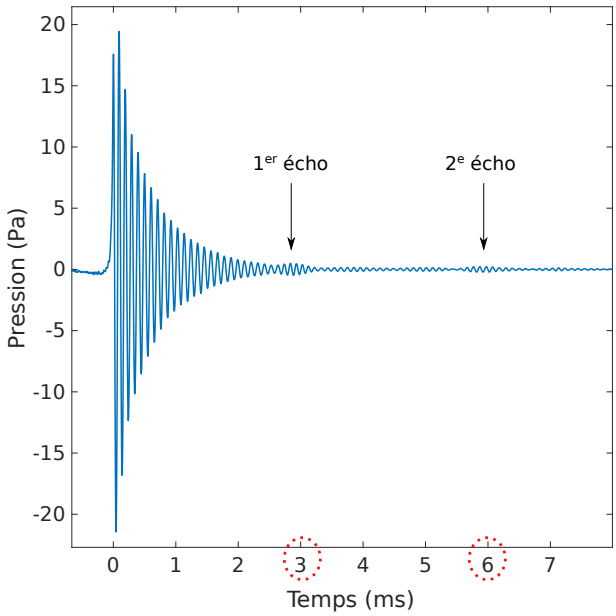

FIGURE 2.3 – Signal de bulle (hydrophone) enregistré lors de l'impact d'une goutte en piscine. Les premier et deuxième échos principaux sont visibles par une légère augmentation d'amplitude à environ 3 et 6 ms respectivement.

2.4 Mesure de la tension de surface des liquides utilisés

Un des principaux objectifs des travaux présentés ici est d'étudier l'influence des propriétés du liquide sur le son produit par l'impact d'une goutte. Ainsi, la mesure des propriétés des différents liquides utilisés est une partie essentielle des travaux. Le choix étant fait de modifier principalement la tension de surface du liquide, celle-ci est systématiquement mesurée, alors que la densité et la viscosité du liquide sont généralement relevées sur des bases de données trouvées dans la littérature. Les différentes méthodes employées pour ces mesures sont détaillées ici.

Il existe de nombreuses méthodes pour mesurer la tension de surface d'un liquide. L'utilisation de l'une ou l'autre de ces méthodes dépend de la nature des liquides employés, de la précision désirée et du temps sur lequel la mesure est effectuée. En effet, pour certaines solutions, comme des solutions de tensioactif, la valeur mesurée de la tension de surface dépend du temps sur lequel la mesure est effectuée (voir section 1.2). Ainsi, deux

méthodes complémentaires de mesure de tension de surface sont employées afin d'étudier deux échelles de temps différentes.

2.4.1 Méthode de la pression de bulle maximale

La méthode de la pression de bulle maximale permet de mesurer la tension de surface dynamique sur des temps très courts, généralement inférieurs à la seconde. L'avantage de cette méthode est sa rapidité et sa simplicité de mise en place. Son principe est basé sur la mesure de pression dans une bulle en formation [80]. De l'air est soufflé par un appareil à travers un capillaire plongé dans le liquide. Une bulle se forme ainsi progressivement à l'extrémité de ce capillaire. Pendant le développement de la bulle, la pression P_i à l'intérieur de celle-ci varie en fonction de ses rayons de courbure R_1 et R_2 à l'interface suivant la loi de Laplace :

$$P_i - P_0 = \sigma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right), \tag{2.1}$$

avec P_0 la pression à l'extérieur de la bulle et σ la tension de surface. Dans ce cas, la bulle étant axisymétrique, $R_1 = R_2$. En regardant précisément le développement d'une bulle soufflée par un capillaire, il apparaît que le rayon de courbure diminue dans un premier temps, passant d'une valeur infinie (interface plane) au rayon du capillaire, comme illustré sur la Fig. 2.4. Ensuite, le rayon de courbure augmente à nouveau à cause de l'augmentation de volume de la bulle, et ce jusqu'à son détachement [81]. Ainsi, le rayon de courbure passe par un minimum correspondant au rayon du capillaire utilisé. Ce minimum correspond à un maximum de pression à l'intérieur de la bulle, qui peut être détecté par l'appareil. Il est ainsi possible, connaissant le rayon du capillaire utilisé et la pression à l'intérieur de la bulle, de remonter à la tension de surface du liquide à l'aide de l'équation 2.1. Le temps de mesure de la tension de surface peut être ajusté en modifiant le flux d'air et donc la fréquence de production des bulles.

L'appareil utilisé pour ces mesures de tension de surface est un PocketDyne Krüss. Il nécessite une calibration avec un échantillon dont la tension de surface est connue. Cette calibration est effectuée avec un échantillon d'eau ultra pure. L'appareil est portable et de petite taille, et permet ainsi d'effectuer des mesures directement dans le bain. Trois temps caractéristiques de mesure sont définis pour la mesure de la tension de surface dynamique, correspondant à des moments particuliers de l'impact : un temps de 20 ms, correspondant

au temps caractéristique de formation de la cavité, un temps de 40 ms, correspondant au temps de la rétraction de la cavité et de la projection du jet, et un temps de 90 ms, correspondant au temps de développement du jet de Rayleigh.

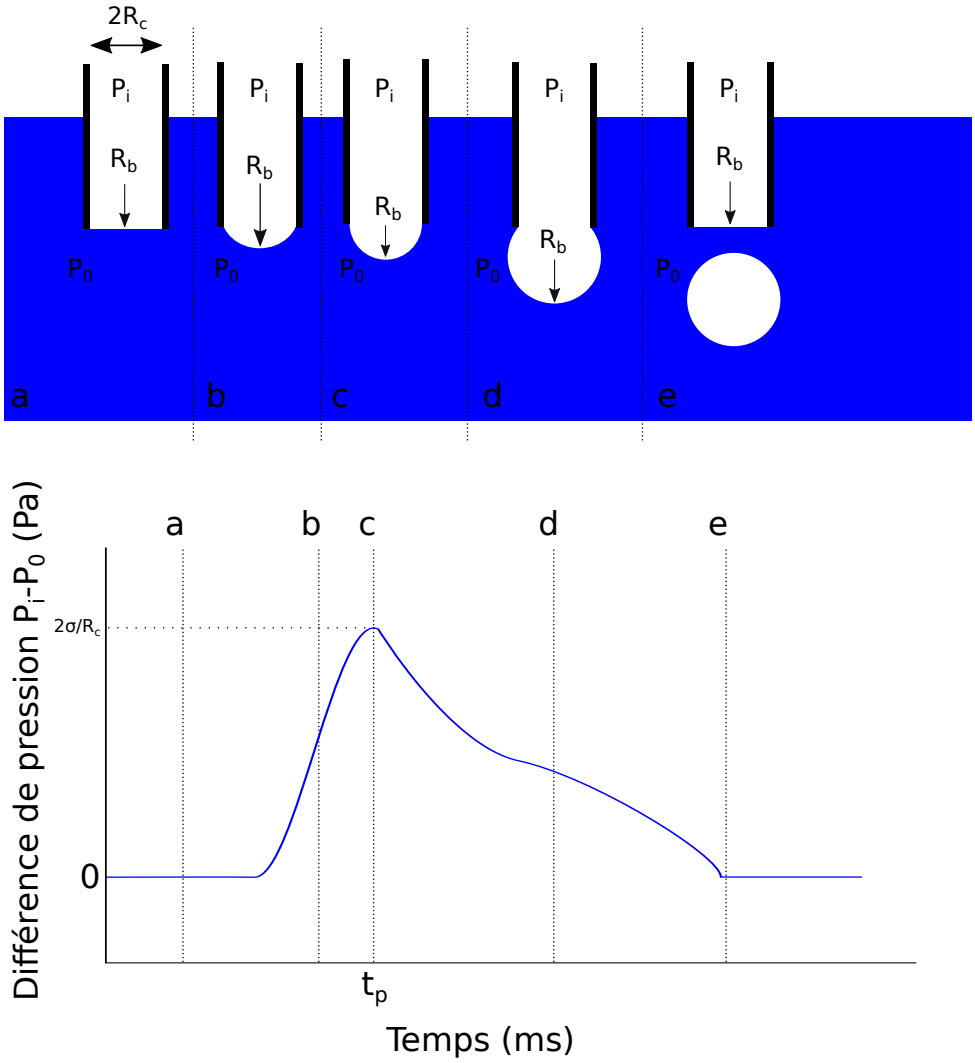

FIGURE 2.4 – Principe de la méthode de pression de bulle maximale : alors que la bulle se forme, le rayon de l'interface diminue jusqu'à un rayon minimal, ce qui correspond à une augmentation de pression à l'intérieur du capillaire jusqu'à un maximum (a-c). Ensuite, le rayon de l'interface augmente, ce qui correspond à une diminution de pression (d), jusqu'au détachement de la bulle (e). Le temps caractéristique de mesure t_p peut être modifié en faisant varier le flux d'air dans le capillaire.

2.4.2 Méthode de profilométrie

La méthode de mesure par profilométrie est plus lourde à mettre en place que la méthode de pression de bulle maximale. Elle consiste en la production d'une goutte ou d'une bulle, dont les images sont enregistrées et traitées pour en extraire le profil et remonter à la tension de surface à l'aide de la loi de Laplace (équation 2.1). Ainsi, un dispositif vidéo avec une bonne résolution est nécessaire, ainsi qu'un traitement d'images associé. Cependant, cette méthode présente beaucoup d'avantages. Elle permet par exemple de réaliser des mesures de tension de surface sur une grande plage de durées (typiquement, de quelques secondes à plusieurs heures). De plus, l'évolution de la tension de surface peut être aisément suivie dans le temps, avec une résolution temporelle assez élevée, dépendant principalement de la fréquence d'acquisition du système vidéo.

Les mesures de profilométrie sont réalisées, dans le cadre des travaux présentés dans ce document, avec un tensiomètre Tracker Teclis Scientific, présenté en Fig. 2.5. Ce tensiomètre permet de suivre automatiquement l'évolution du profil d'une bulle dans le temps, à l'aide d'un traitement vidéo. Une cuve est remplie de l'échantillon à tester (a), dans laquelle est plongée une aiguille recourbée (b) reliée à une seringue remplie d'air (c). Le moteur (d) permet de pousser ou tirer sur le piston de la seringue, afin de générer une bulle d'air dans le liquide et de contrôler son volume. Une caméra (e) prend des images de la bulle, avec une fréquence d'acquisition réglable. Le profil de la bulle est analysé en temps réel, et l'évolution de la tension de surface et du profil peut être suivie sur l'interface du logiciel (f).

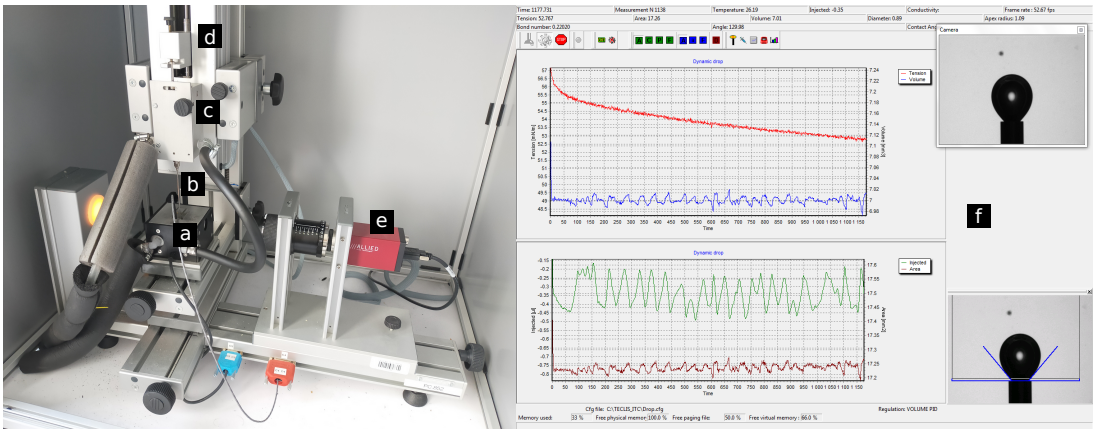

FIGURE 2.5 – Photographies de l'appareil de mesure de profilométrie (gauche) et de l'interface du logiciel associé (droite).

2.5 Outils développés de traitement du signal et des images

Les mesures vidéos et acoustiques contiennent un grand nombre d'informations sur la physique des phénomènes se déroulant lors d'un impact d'une goutte. Cependant, le régime étudié, sensible aux petites perturbations, présente des résultats légèrement différents d'une mesure à l'autre pour des conditions initiales identiques. Ainsi, de nombreuses mesures sont nécessaires pour comprendre pleinement les différents phénomènes. La génération de nombreuses données de mesure nécessite le développement d'algorithmes de traitement automatique afin d'analyser facilement ces données. Différents outils de traitement du signal acoustique et d'analyse vidéo sont ainsi développés et utilisés dans ce but. Ces outils permettent, en plus du traitement automatique des données, d'extraire certains détails importants des mesures permettant une meilleure compréhension des phénomènes physiques.

Dans un premier temps, les différents outils de traitement du signal utilisés ainsi que les algorithmes développés sont présentés. Dans un second temps, l'analyse des vidéos est détaillée.

2.5.1 Débruitage des mesures acoustiques

Malgré le niveau de bruit faible présent en salle semi-anéchoïque, le rapport signal-à-bruit des mesures reste faible. Ceci est dû à la faible énergie du signal acoustique généré par l'impact. Cependant, un débruitage des mesures permet de faire ressortir les événements temporels liés à l'impact, potentiellement masqués par le bruit lors de la mesure et de faciliter le traitement ultérieur des données. Le programme utilisé pour le débruitage est issu de [82]. Il est basé sur la soustraction spectrale du bruit, enregistré seul, à la mesure bruitée. L'algorithme est composé de plusieurs étapes, présentées en Fig. 2.6. La densité spectrale de puissance (DSP) du bruit est estimée par périodogramme de Welch [83] sur une partie du signal ne contenant que du bruit (par exemple en début d'enregistrement avant l'arrivée de la goutte dans le bain). Le bruit est ensuite soustrait au spectre local du signal calculé par transformée de Fourier à court-terme (TFCT), en utilisant la règle de suppression d'Ephraim-Malah [84], qui permet d'éviter les artefacts dus au débruitage en prenant en compte le signal de la fenêtre précédente. Le signal débruité, disponible dans le domaine fréquentiel, est ensuite repassé dans le domaine tem-

porel à l'aide d'une TFCT inverse. Cette méthode très efficace a l'avantage de ne pas modifier la phase du signal et de pouvoir adapter le traitement directement au bruit présent.

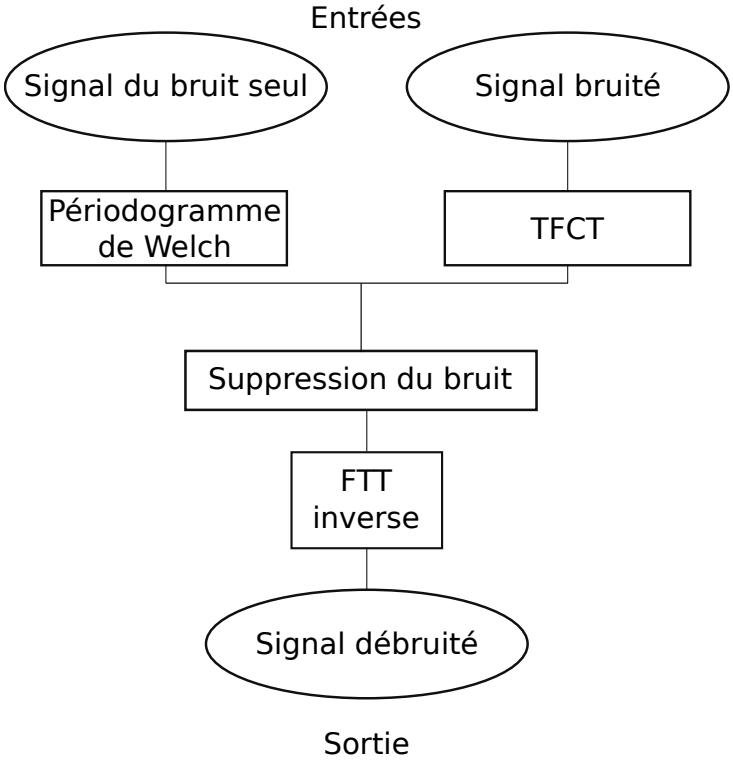

FIGURE 2.6 – Graphe de l'algorithme de débruitage utilisé sur les mesures acoustiques.

Un exemple du résultat du débruitage est montré en Fig. 2.7. L'amélioration est bien visible sur les signaux du microphone et de l'hydrophone, les événements acoustiques de faible amplitude étant plus facilement visibles et n'étant plus noyés dans le bruit.

2.5.2 Détection automatique d'événements acoustiques

La détection automatique des événements acoustiques est essentielle, considérant le nombre important de mesures effectuées. Celle-ci est généralement effectuée sur le signal

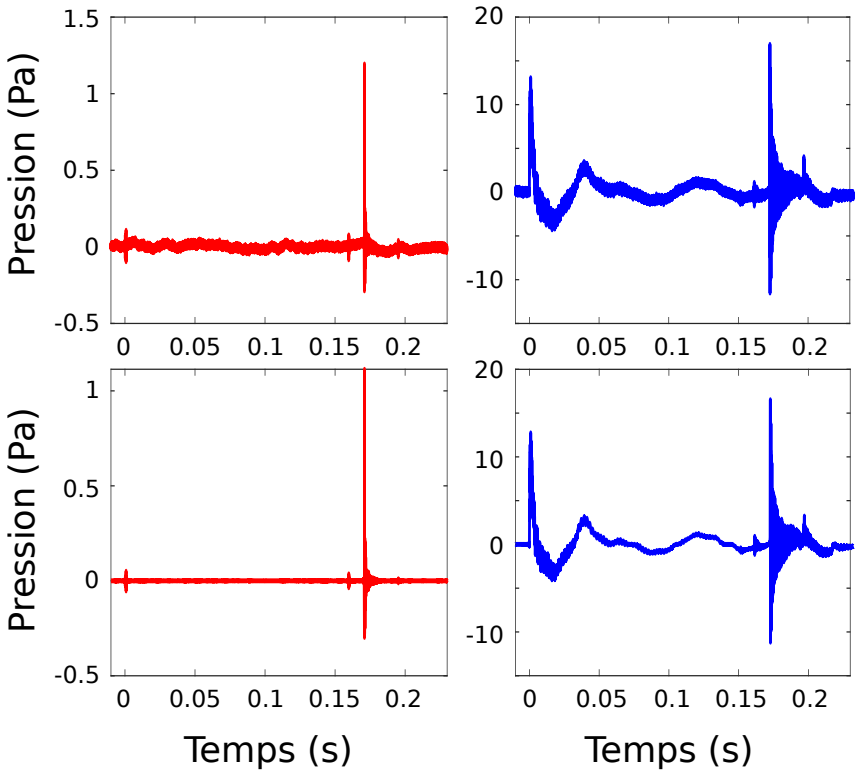

FIGURE 2.7 – Signaux acoustiques typiques d'un impact de goutte, enregistré par le microphone (gauche) et l'hydrophone (droite) avant débruitage (haut) et après débruitage (bas).

de l'hydrophone. En effet, de nombreux événements acoustiques apparaissent sur le signal de l'hydrophone mais pas sur le signal du microphone. Cela vient surtout des événements impliquant des petites bulles à faible amplitude de vibration, comme cela est expliqué dans la partie 3.

Cependant, la détection d'événements présente plusieurs difficultés pour les signaux utilisés. Les événements étant très variés, avec une grande dynamique d'amplitude même au sein d'un même signal, il est difficile de trouver des critères permettant de détecter tous les événements de chaque signal tout en réduisant au mieux les "fausses alertes" (détection d'un événement qui est en fait du bruit). Par exemple, le signal présenté en Fig. 2.8 est composé de quatre événements acoustiques après l'impact. Bien que l'événement de plus grande amplitude soit facile à détecter, les trois autres événements sont d'amplitude proche du niveau du bruit. Un algorithme de détection classique basé sur l'amplitude détecte ainsi, soit uniquement l'événement de grande amplitude, soit les quatre événe-

ments, plus de "faux" événements correspondant à du bruit ou à des variations de pression moyenne. Il est donc nécessaire d'utiliser un critère capable de détecter des événements variés tout en les discriminant du bruit résiduel.

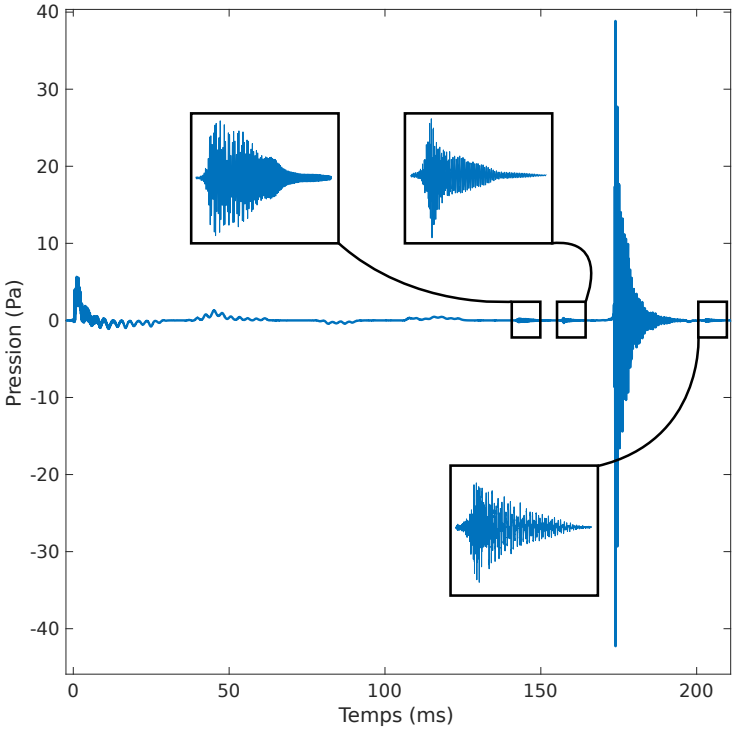

FIGURE 2.8 – Exemple d'un signal mesuré à l'hydrophone lors d'un impact de goutte, présentant 4 événements acoustiques d'amplitude, de fréquence et de durée différentes.

La solution retenue est l'utilisation d'une fenêtre glissante le long du signal, calculant l'énergie locale du signal sur une bande fréquentielle prédéfinie et la détection a posteriori des maxima de cette énergie, comme détaillé dans la Fig. 2.9. En effet, il s'avère que l'impact initial de la goutte, ainsi que le démarrage des événements acoustiques sont très énergétiques. A titre d'exemple, la Fig. 2.10 montre le signal acoustique typique d'un impact de goutte sur une surface liquide, au microphone et à l'hydrophone, ainsi que le résultat de calcul d'énergie locale par fenêtre glissante. Il est visible dans un premier temps que le signal de l'hydrophone montre plus d'événements acoustiques que le signal du microphone, comme évoqué précédemment. Ensuite, il apparaît clairement que les pics du graphe d'énergie locale coïncident avec l'impact initial et le démarrage des autres événements acoustiques. L'avantage de cette méthode est que les enveloppes variées du

signal ainsi que ses différentes caractéristiques n'influencent pas la détection. La fonction de détection utilise des maxima locaux et prend en paramètres d'entrée le seuil minimum de hauteur ainsi que la proéminence minimale (la hauteur du pic par rapport à ses voisins). La définition de ces paramètres est faite par essai-erreur, pour obtenir un optimum permettant de détecter les événements de faible amplitude tout en évitant de détecter du bruit.

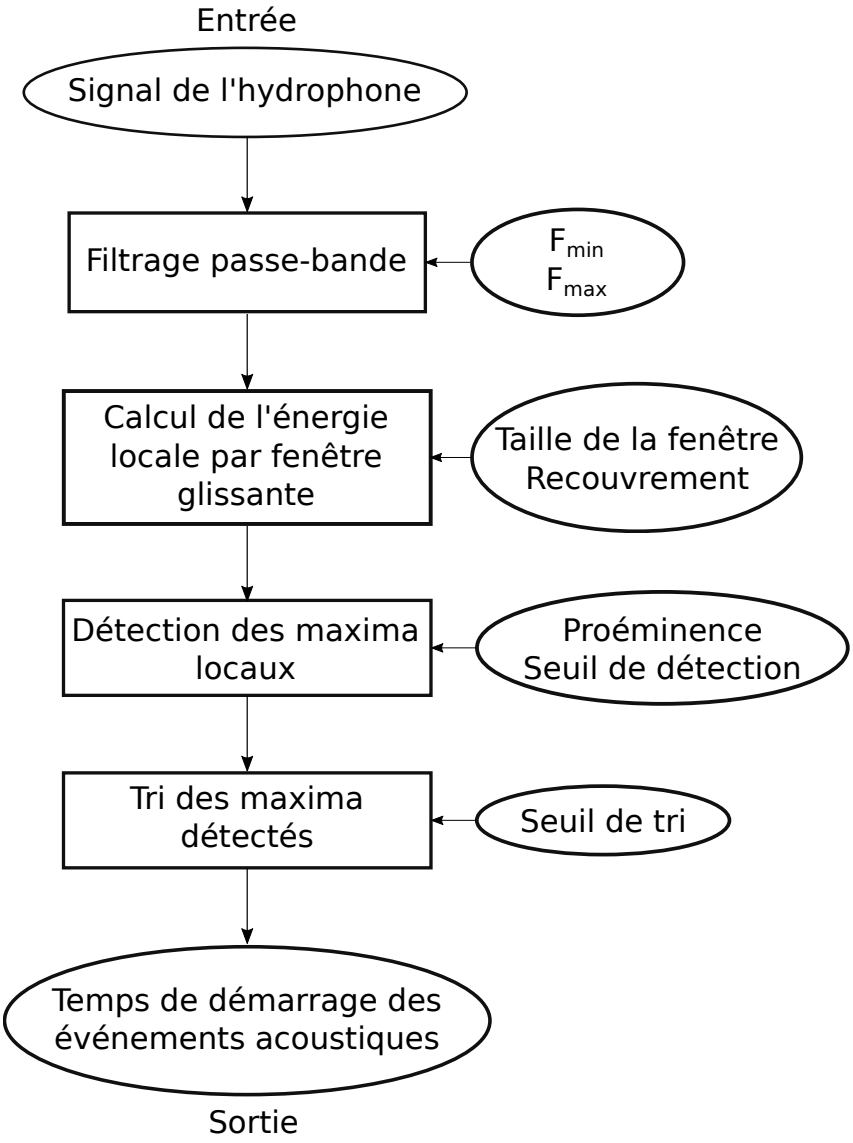

FIGURE 2.9 – Graphe de l'algorithme de détection des événements acoustiques.

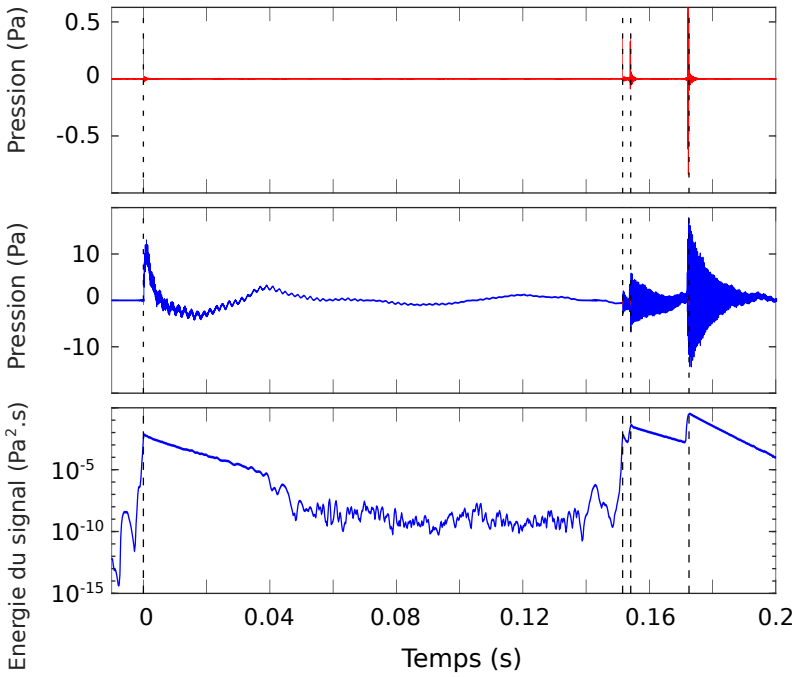

FIGURE 2.10 – Signaux acoustiques d'un impact de goutte au microphone (haut) et à l'hydrophone (milieu), avec le calcul d'énergie locale par fenêtre glissante sur le signal de l'hydrophone (bas). Les marqueurs en traits pointillés indiquent les temps de démarrage des événements acoustiques détectés à partir de l'énergie locale.

Un second tri est effectué sur les pics détectés, à l'aide d'un critère défini comme le rapport entre la proéminence et la hauteur du pic. En effet, pour certains signaux, les variations d'enveloppe peuvent entraîner l'apparition d'un second pic dans l'enveloppe de décroissance de l'énergie, comme le montre la Fig. 2.11. Si le signal est très énergétique, ce pic dépasse le seuil de hauteur minimale ainsi que celui de proéminence, et ce seulement à cause des valeurs élevées d'énergie. Ainsi, il est nécessaire de normaliser ces différents pics afin de compenser la grande variété d'amplitudes des signaux. La proéminence de chaque pic détecté est alors relevée et divisée par son amplitude. Quand ce rapport est inférieur à un certain seuil (pic de proéminence faible par rapport à sa hauteur), le pic n'est pas conservé car il s'agit d'un pic secondaire comme illustré en Fig. 2.11. Le seuil est fixé par essai-erreur. Cette méthode permet de diminuer le seuil de détection sans augmenter le nombre de "fausses alertes" et donc d'améliorer les performances de détection de l'algorithme.

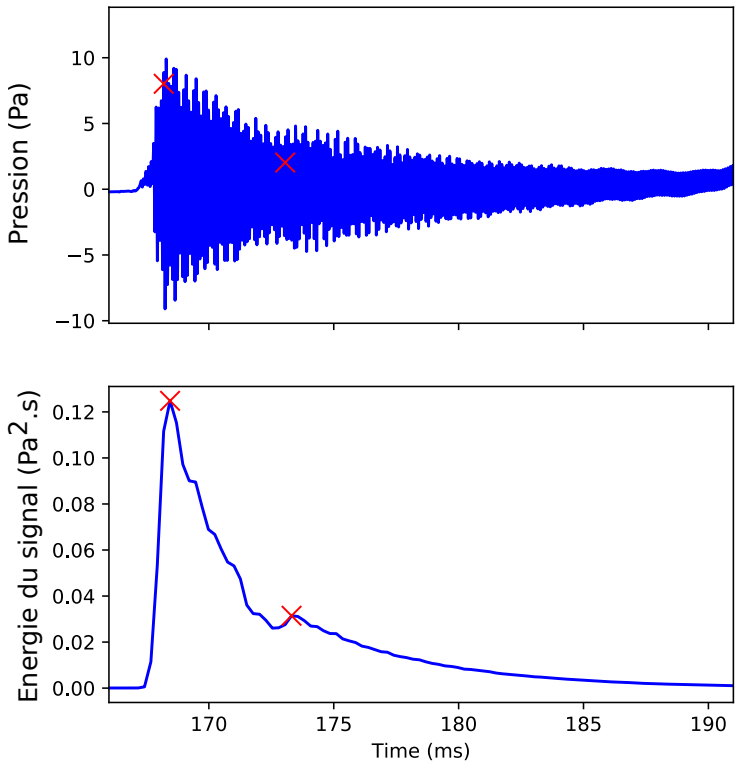

FIGURE 2.11 – Événement acoustique issu du signal de l'hydrophone (haut) montrant une variation d'amplitude de son enveloppe. Cette variation entraîne un pic secondaire sur l'estimation de l'énergie locale (bas) qui est détecté comme un nouvel événement par l'algorithme (croix rouges).

Les performances du programme de détection sont évaluées en relevant à la main la présence d'événements acoustiques sur 200 signaux, puis en passant ces mêmes signaux dans le programme de détection. Les événements détectés à la main sont considérés comme les "vrais" événements. Une comparaison est faite ensuite pour évaluer l'algorithme. Le taux de réussite est défini comme étant le nombre d'événements "vrais" détectés par l'algorithme sur le total d'événements détectés. Le taux de "fausses alertes" correspond au contraire au nombre d'événements détectés par l'algorithme qui ne sont pas "vrais". Enfin, le nombre d'événements relevés seulement à la main et pas par l'algorithme, par rapport au nombre total d'événements relevés à la main, est défini comme le taux d'oubli. Les résultats sont présentés dans le tableau 2.1. Le taux de réussite de 99 % est très satisfaisant, et indique que la confiance dans la véracité des événements détectés par l'algorithme est élevée. Le taux d'oubli de 15 % est peu élevé, mais indique tout de même qu'une partie non négligeable d'événements n'est pas détectée. Cependant, l'observation des événements "oubliés" par l'algorithme montre que ce sont des événements de très faible amplitude et

de courte durée. Le taux de d'oubli pourrait être donc amélioré en diminuant le seuil de détection. Cependant, le taux de fausses alertes dans ce cas augmenterait également, ce qui diminuerait le taux de réussite, et donc la confiance en l'algorithme. Le choix est fait ici d'avoir le taux de fausses alertes le plus bas possible, au détriment du taux d'oubli, afin de limiter la détection de faux événements qui pourraient brouiller les résultats et leur interprétation. De plus, les mesures acoustiques étant répétées pour chaque configuration, de mêmes événements, "oubliés" sur certains signaux, peuvent être détectés sur les autres. Le tableau 2.1 montre également que le tri des maxima permet d'améliorer considérablement le taux de réussite, en diminuant le taux de fausses alertes. Cependant, le taux d'oubli est légèrement meilleur sans tri des maxima, ce qui peut se comprendre en considérant que certains événements "vrais" sont probablement éliminés lors de ce tri.

	Sans tri des maxima	Avec tri des maxima
Réussite	45 %	99 %
Fausses alertes	55 %	1 %
Oubli	12 %	15 %

Table 2.1 – Résultats du test de performance du programme de détection d'évènements. Le taux de réussite est défini comme le nombre d'événements "vrais" détectés par l'algorithme sur le nombre total d'événements détectés. Le taux de fausses alertes est défini comme le nombre d'événements "faux" détectés par l'algorithme sur le nombre total d'événements détectés. Le taux d'oubli est défini comme le nombre d'événements "vrais" non détectés par l'algorithme sur le nombre total d'événements "vrais".

2.5.3 Détection des groupes de temps d'apparition des événements acoustiques

L'observation de plusieurs signaux d'impacts pour une même configuration initiale montre que les différents événements acoustiques apparaissent à peu près aux mêmes temps, avec un décalage de quelques millisecondes entre les différents impacts. En effet, sur l'exemple présenté en Fig. 2.12, deux paquets d'événements sont visibles autour d'environ 125 ms et 185 ms. Les mesures vidéos montrent que les événements acoustiques arrivant à des temps similaires pour une même configuration correspondent à un même type d'événement hydrodynamique, qui peut se produire (ou non) avec des légères différences de temps d'une mesure à l'autre. Ainsi, même si les signaux acoustiques ne sont

pas répétables pour une même configuration, l'observation d'un grand nombre de ces signaux permet de mettre en évidence, en analysant leur temps de démarrage, des zones d'apparition des différents événements, qui peuvent être représentées par une moyenne et un écart-type. Ces groupes de temps d'apparition sont facilement visibles à l'œil nu la plupart du temps (comme montré en Fig. 2.12). Cependant la détection automatique de ces groupes permet de gérer un grand nombre de données rapidement et d'avoir des critères de délimitation objectifs lorsque les groupes sont moins bien définis.

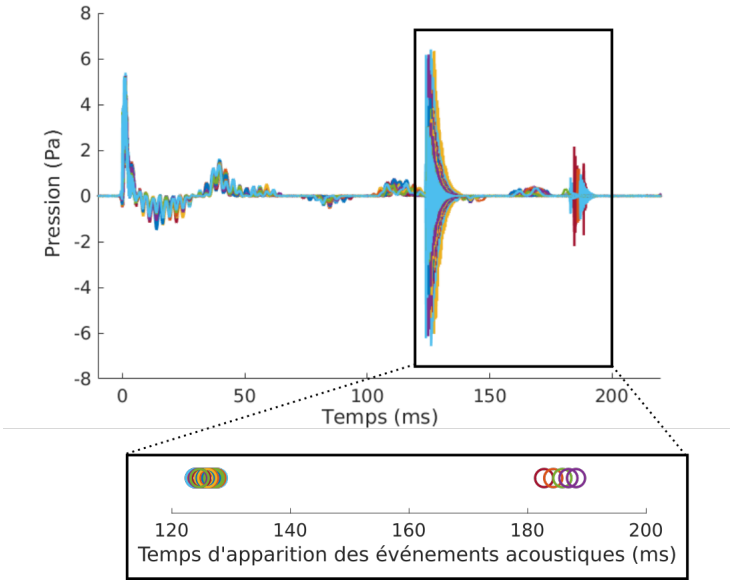

FIGURE 2.12 – Superposition de signaux acoustiques de l'hydrophone issus de mesures successives d'impact d'une goutte avec la même configuration (haut). Le temps de démarrage des événements acoustiques visibles sur les signaux (bas) est détecté à l'aide de l'algorithme de détection automatique.

C'est pour répondre à cette problématique qu'un algorithme capable de délimiter ces groupes est développé. Cet algorithme, détaillé en Fig. 2.13, fonctionne de la manière suivante :

— tri des valeurs de temps de démarrage dans l'ordre croissant,
— calcul de l'écart entre chaque point,
— parmi les écarts calculés, détection des valeurs aberrantes (valeurs qui s'écartent de la distribution moyenne).

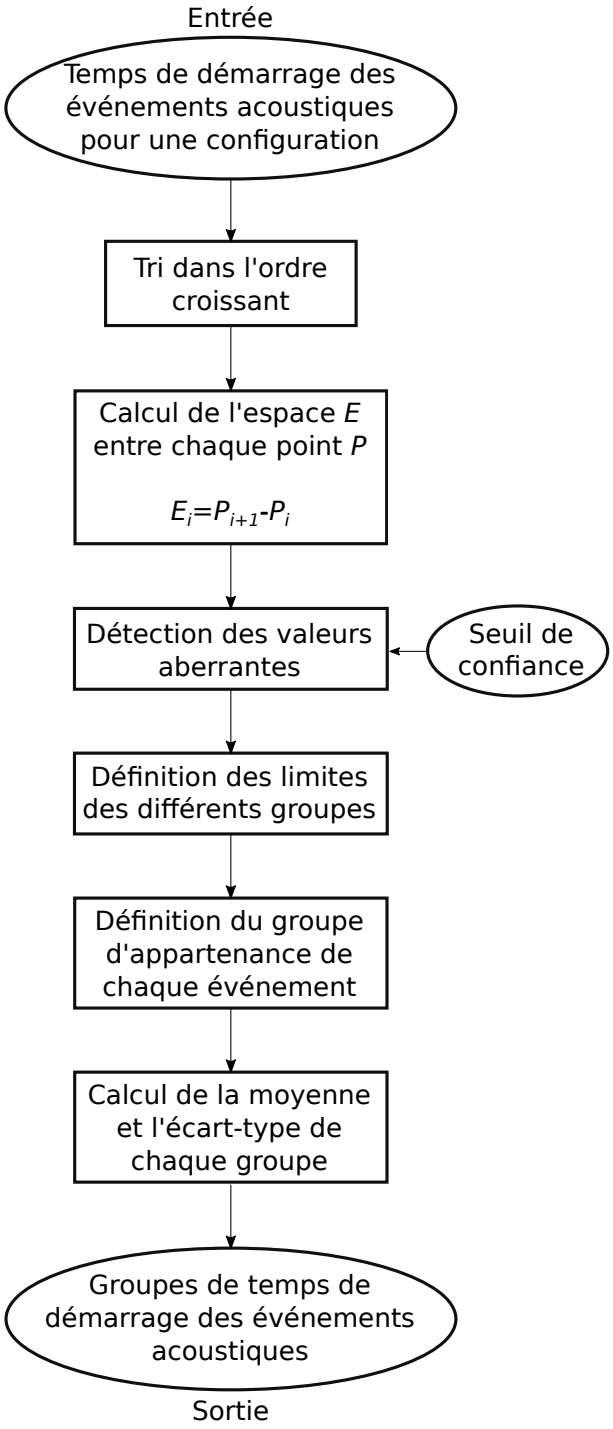

FIGURE 2.13 – Graphe de l'algorithme de détection des groupes de temps d'apparition des événements acoustiques.

Les valeurs aberrantes correspondent à des écarts plus importants entre deux points : c'est le passage d'un groupe à un autre. Ces points permettent ainsi de définir la frontière entre deux groupes, comme illustré en Fig. 2.14. Le principal défaut de cette méthode est sa sensibilité à la dispersion des points au sein des groupes. En effet, si les points d'un groupe sont dispersés et que ce groupe est proche d'un autre, l'algorithme ne sera évidemment pas capable de les distinguer.

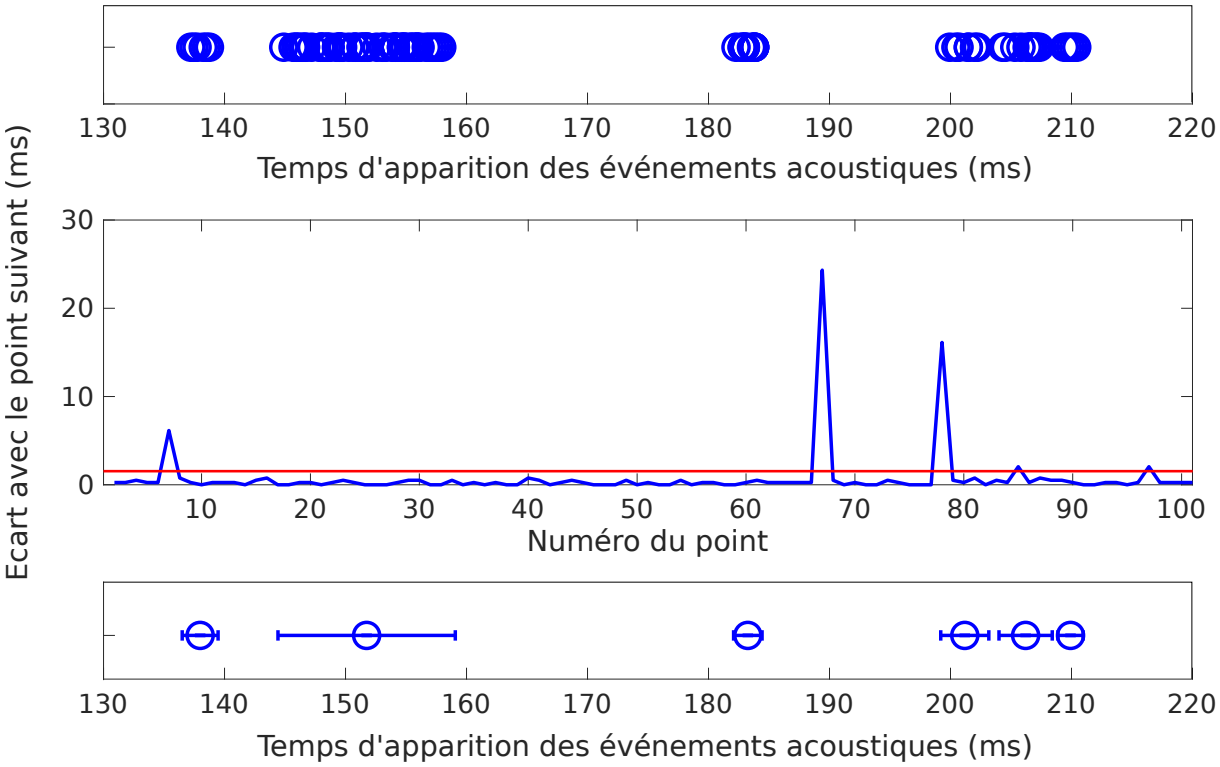

FIGURE 2.14 – Illustration des différentes étapes du programme de clustering : à partir des temps d'apparition détectés (haut), l'écart de temps entre chaque point est calculé (milieu). Les valeurs aberrantes, correspondant à l'écart entre deux groupes, sont détectées, les groupes sont formés et représentés par une moyenne et un écart-type (bas).

Un exemple des résultats obtenus par l'algorithme est présenté en Fig. 2.15. Il apparaît évident que la représentation des groupes par la moyenne des temps et leur écart-type

est plus claire que la représentation des temps bruts. Un des avantages de ce traitement est de pouvoir facilement écarter les points isolés, pouvant représenter des événements exceptionnels ou des erreurs de détection. En effet, pour cette représentation, seuls les groupes contenant au moins cinq points sont représentés.

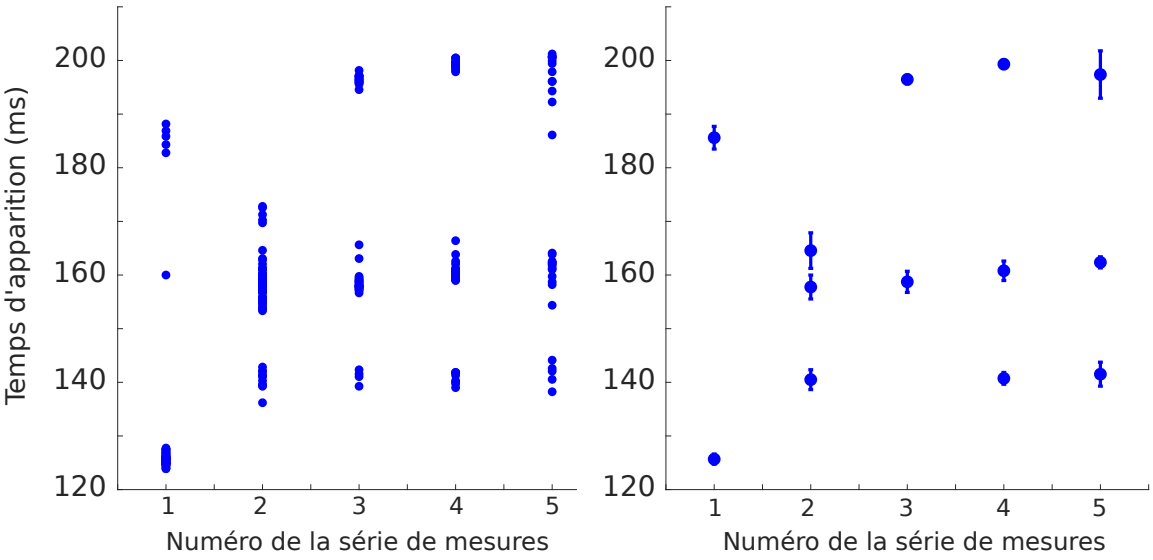

FIGURE 2.15 – Exemple des temps de démarrage des événements acoustiques issus de plusieurs séries de mesures : représentation brute (gauche) et après regroupement par l'algorithme (droite).

Ce regroupement automatique des temps de démarrage proches a l'avantage, en plus de clarifier les représentations graphiques, de permettre d'étudier chaque groupe d'événements indépendamment et de calculer facilement leur dispersion (étalement des valeurs) et leur répétabilité (nombre de points dans le groupe normalisé par le nombre total de mesures). Ainsi, la succession des événements acoustiques pour une configuration peut être étudiée globalement à partir d'un grand nombre de mesures. Une étude détaillée de la répétabilité des événements acoustiques, à l'aide de cet algorithme, est exposée en Annexe A.

2.5.4 Calcul du temps caractéristique de décroissance des signaux de bulle

Les différents événements visibles sur les signaux acoustiques, dus à l'emprisonnement de bulles dans le liquide, sont des sinusoïdes amorties. C'est la signature typique de la vibration libre d'une bulle. Le taux d'amortissement de la sinusoïde est ainsi lié à l'amortissement des vibrations de la bulle, et donc à sa dynamique. C'est donc un indicateur pertinent, au même titre que la fréquence de la sinusoïde, apportant des informations sur la forme et la dynamique des bulles emprisonnées durant les mouvements de l'interface suivant l'impact d'une goutte.

Un algorithme de calcul du temps caractéristique de décroissance des sinusoïdes est développé. Il se base sur le modèle de vibrations amorties d'une bulle. En effet, une bulle peut être assimilée à un oscillateur amorti à un degré de liberté. Ainsi, le signal acoustique qu'elle émet, lié directement à sa vibration, s'exprime [85], pour $t \in [t_1, t_2]$,

$$P(t) = \text{Real}\left[P_A \mathrm{e}^{-\beta(t-t_1)} \mathrm{e}^{i(\omega_0(t-t_1)+\phi)}\right], \tag{2.2}$$

avec P_A le niveau de pression à $t = t_1$, β la constante d'amortissement, ω_0 la pulsation propre de la bulle, t le temps et ϕ un terme de phase. L'enveloppe des oscillations est donc définie par une exponentielle décroissante. Cette propriété est utilisée pour remonter à la constante d'amortissement β.

L'algorithme développé détecte dans un premier temps les maxima locaux, correspondant à la crête des oscillations, comme illustré dans la Fig. 2.16-a. Ces maxima locaux suivent une loi en exponentielle décroissante, comme le montre l'équation 2.2. Une fonction logarithme est appliquée aux valeurs de pression des maxima, afin qu'ils suivent une fonction linéaire. Son équation est estimée par régression linéaire, comme illustré en Fig. 2.16-b. Le coefficient de la droite correspond ainsi à la constante d'amortissement β, qui est estimée avec une incertitude. La même opération est réalisée avec les minima afin d'éventuellement compenser des asymétries sur certains signaux. Cette méthode a l'avantage d'être peu sensible aux petites variations de l'enveloppe globale (Fig. 2.16-c) et aux variations de fréquence du signal.

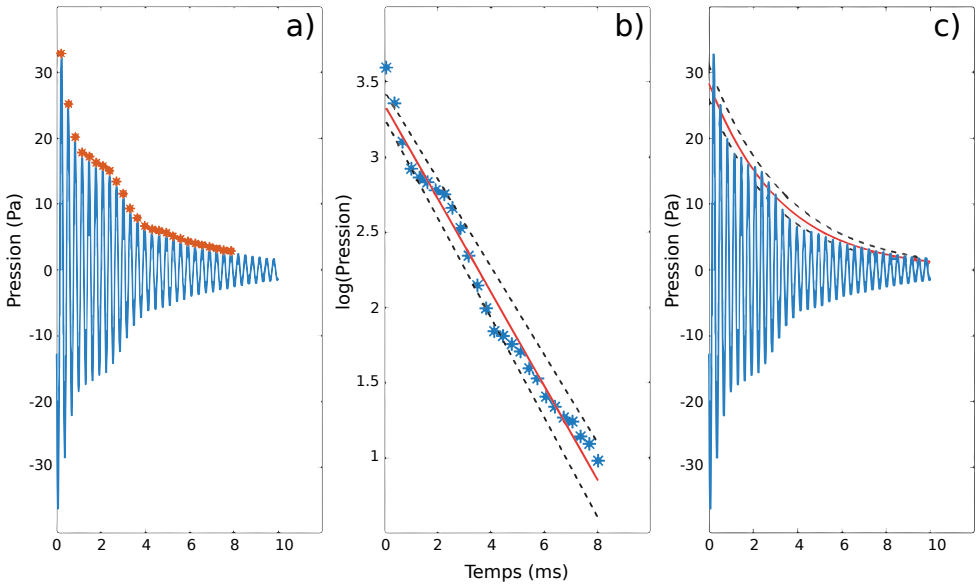

FIGURE 2.16 – Illustration de la méthode de calcul de la constante d'amortissement des oscillations amorties enregistrées sur les signaux d'impacts de gouttes : les maxima locaux sont détectés (a), une régression linéaire est calculée sur le logarithme de ces maxima en fonction du temps (b), le coefficient directeur de la droite obtenue donne le taux d'amortissement des oscillations, avec les incertitudes (c).

2.5.5 Traitements vidéos

2.5.5.1 Visualisation synchronisée

L'utilité principale des mesures vidéos est d'identifier la source des événements acoustiques. Il est donc nécessaire de pouvoir observer les événements hydrodynamiques se déroulant au moment du démarrage des signaux acoustiques. Pour faciliter cette observation, une interface est programmée permettant de visualiser la vidéo de l'impact en même temps que le signal acoustique. Cette interface, développée en Matlab durant la thèse, est adaptée en Python lors d'un projet étudiant afin d'en améliorer les performances. Un exemple de l'utilisation de cette interface est présenté en Fig. 2.17. La vidéo et les deux signaux acoustiques sont synchronisés en corrigeant le temps de vol des ondes acoustiques, déterminé théoriquement à l'aide du relevé des positions de l'impact, du microphone et de l'hydrophone durant les mesures. Un curseur est défini sur les signaux acoustiques pour marquer le temps correspondant à l'image de la vidéo affichée. Ce curseur peut être déplacé, ainsi le signal peut être parcouru tout en observant les événements hydrodynamiques correspondants.

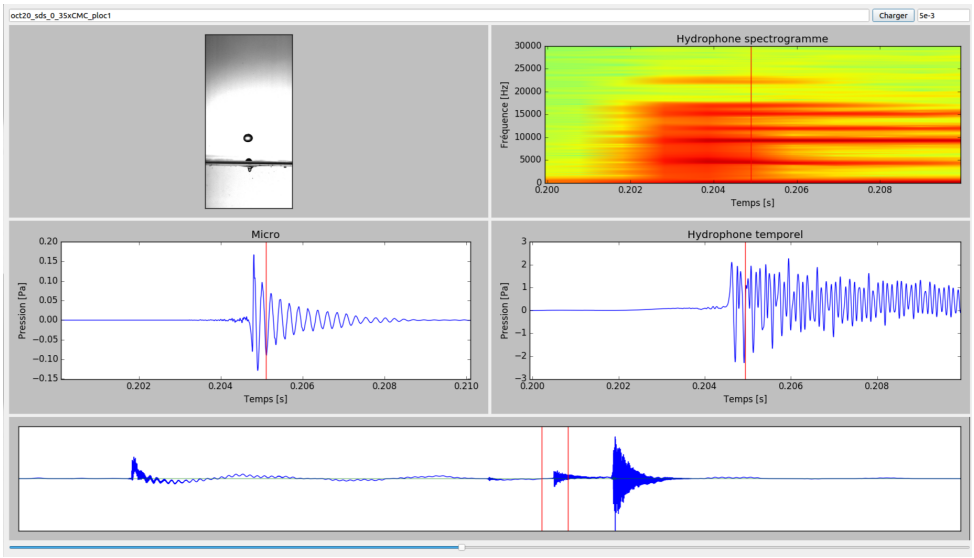

FIGURE 2.17 – Interface de visualisation développée pour l'identification des sources des événements acoustiques. Les images issues de la vidéo, visibles dans le cadre supérieur gauche, correspondent au temps marqué par le curseur rouge, sur les cadres du milieu, qui correspondent à un zoom sur le signal du microphone (gauche) et de l'hydrophone (droite). Ce curseur peut être déplacé le long du signal de l'hydrophone (cadre inférieur). Une représentation temps-fréquence de la portion du signal encadrée est également donnée dans le cadre supérieur droit.

2.5.5.2 Tracking

En plus de pouvoir observer les événements hydrodynamiques se déroulant après l'impact, les vidéos permettent de mesurer différents éléments, comme des tailles de bulle ou des vitesses de jet. La mesure de ces différents éléments à la main est possible, bien que longue et peu précise.

Un programme de tracking est donc développé. L'éclairage utilisé pour les vidéos étant en contre-jour, le fond général est donc clair et les déformations de l'interface apparaissent en teintes plus foncées, comme montré en Fig. 2.18-a. Les images sont débruitées, en leur soustrayant une image prise avant l'arrivée de la goutte, quand l'interface est calme. Ceci permet de supprimer l'ombre due au ménisque du liquide sur la paroi et d'éventuelles tâches et inhomogénéités d'éclairage pouvant perturber la suite du traitement (Fig 2.18-b). Ensuite, les images, jusque-là en niveau de gris, sont converties en format binaire et

transformées en négatif, afin que les objets d'intérêt apparaissent en blanc et le fond en noir (Fig. 2.18-c). La binarisation de l'image se fait en déterminant un seuil pour lequel chaque pixel est traduit soit en pixel blanc, soit en pixel noir. Ce seuil est défini suivant l'éclairage des différentes vidéos. Un autre traitement est également appliqué, permettant de transformer les groupes de pixels noirs entourés de blanc en pixels blancs, afin de combler d'éventuels "trous" dans les objets détectés. Enfin, les groupes de pixels blancs sont détectés. Les différents objets ainsi obtenus, mis en évidence en couleurs sur la Fig. 2.18-d, peuvent être identifiés.

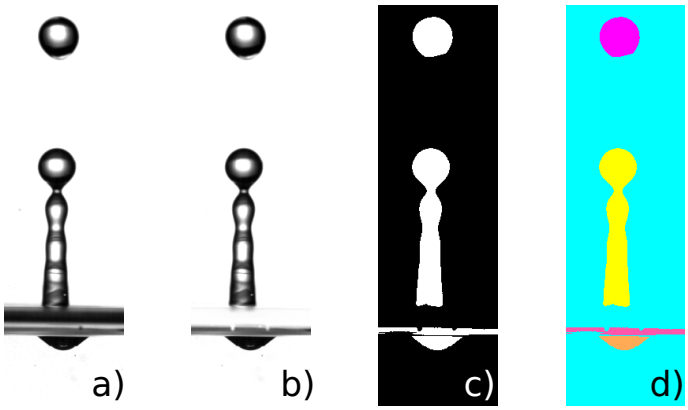

FIGURE 2.18 – Différentes étapes du traitement vidéo : l'image d'origine en niveaux de gris (a) est débruitée en soustrayant l'image du fond (b). Le résultat est ensuite converti en format binaire (c). Les groupes de pixels adjacents sont enfin détectés pour définir les différents objets de la vidéo (d).

A partir de là, la taille et la position des différents objets peuvent être relevées image par image. Cela permet de tracer les trajectoires des différents éléments en fonction du temps, de calculer leur vitesse ainsi que de relever automatiquement certains points particuliers (hauteur maximale, temps de retombée sur la surface, etc...). Un exemple du résultat d'un tracking est montré Fig. 2.19. La hauteur de l'interface, détectée automatiquement par le programme, définit le 0 de hauteur, les événements se déroulant sous la surface ayant ainsi une hauteur négative. Le moment où la goutte touche la surface, détecté sur le signal acoustique de l'hydrophone, définit le temps $t = 0$. On peut voir, pour les temps négatifs, l'arrivée de la goutte. Ensuite, de 0 à environ 45 ms, le tracé représente l'évolution du point

le plus bas de la cavité. Le tracé pour des temps supérieurs à 50 ms montre l'évolution du point le plus haut du jet de Rayleigh. Les deux décrochages présents à environ 80 ms et 120 ms sont dus au détachement successif de deux gouttelettes secondaires du jet. Les tracés rouges représentent ainsi l'évolution du point le plus haut de ces deux gouttelettes. Ce type de représentation permet de disposer d'une vision globale du déroulement des événements après l'impact et de comparer aisément la dynamique de plusieurs mesures.

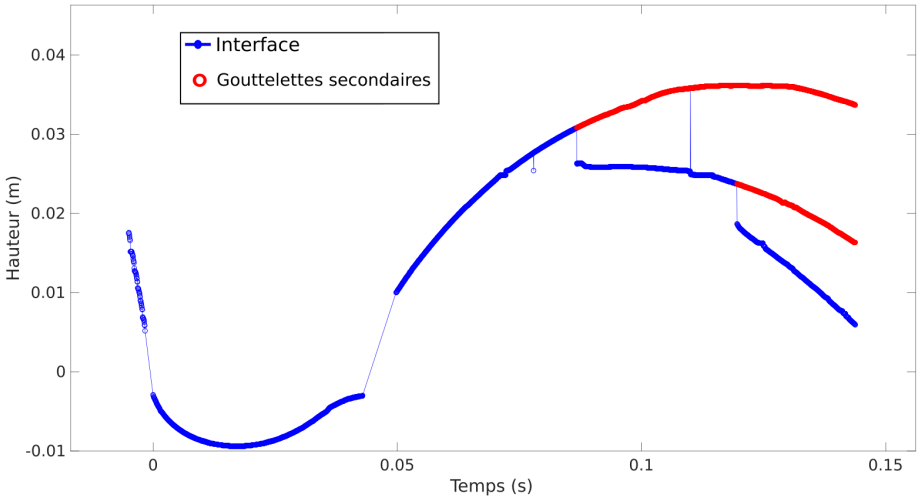

FIGURE 2.19 – Résultat du tracking de la hauteur de l'interface pour une vidéo d'impact d'une goutte.

2.5.5.3 Mesure de formes

La détection automatique des objets sur les vidéos permet également d'étudier l'évolution des contours de ces objets. A titre d'exemple, cela peut ainsi permettre d'analyser l'évolution du profil du jet de Rayleigh ou de la cavité en fonction du temps. La Fig. 2.20 montre un exemple de la superposition des contours de cavité extraits de plusieurs vidéos. La comparaison de plusieurs configurations peut ainsi se faire directement et les petites variations peuvent être relevées plus facilement. Ainsi, sur l'exemple de la Fig. 2.20, il est clairement visible que la cavité de la configuration 1 est plus rétractée que celle des autres configurations. Les ondulations visibles sur ces contours sont dues aux ondes capillaires qui se propagent le long de la cavité lors de sa rétraction. Celles-ci peuvent également être suivies grâce à cette détection de contours.

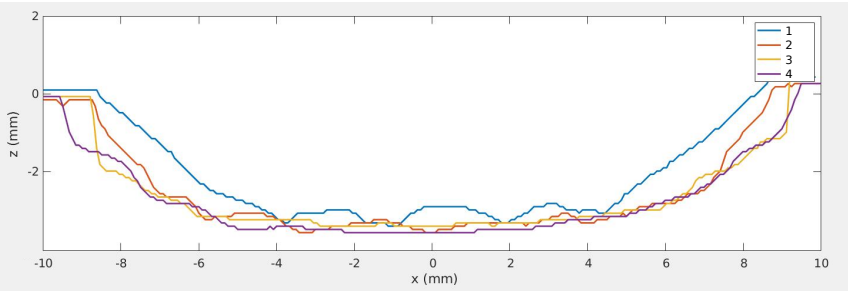

FIGURE 2.20 – Comparaison des contours de cavité issus de plusieurs configurations d'impact.

La détection des contours des différents objets présents sur les vidéos permet également l'évaluation de la surface et du volume de ces objets. Cette évaluation permet d'estimer différentes valeurs d'énergie et leur évolution durant les différents événements hydrodynamiques. La méthode employée, explicitée en Fig. 2.21, est valable seulement pour les objets présentant une axisymétrie, ce qui est le cas pour la majorité des objets observés lors de l'impact (gouttes, cavités et jets). Une fois le contour détecté, l'objet est décomposé en cylindres creux superposés, avec une hauteur de 1 pixel et un diamètre défini par la distance entre deux points du contour qui délimitent une ligne. Le volume de ces cylindres est ensuite simplement calculé et sommé, de même que leur surface extérieure (avec en plus l'ajout de la surface circulaire au sommet de l'objet). Cette méthode permet d'évaluer assez précisément volume et surface, et est applicable aux formes complexes, tant que celles-ci sont axisymétriques suivant l'axe vertical dans le plan de la caméra.

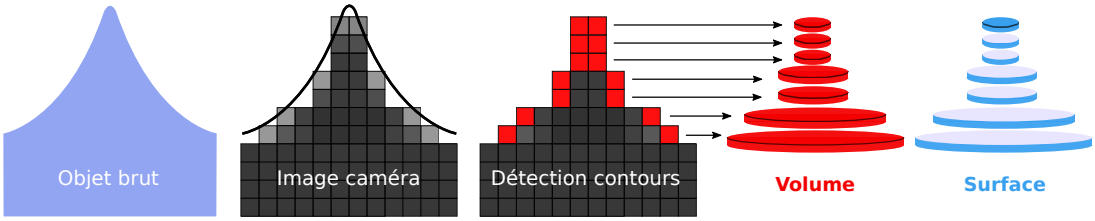

FIGURE 2.21 – Illustration de la méthode d'évaluation du volume et de la surface des objets sur les vidéos : les contours de l'image brute de l'objet sont détectés, puis chaque ligne de pixels est approximée par un cylindre de hauteur de 1 pixel et de diamètre égal au nombre de pixels constituant cette ligne. Le volume et la surface de chacun de ces cylindres sont additionnés pour approximer le volume et la surface de l'objet.

Comme évoqué dans l'introduction, le son caractéristique de l'impact de goutte est généré par la vibration d'une bulle d'air emprisonnée dans le liquide lors des mouvements de l'interface. Ainsi, l'observation et l'étude de ces bulles d'air grâce à la vidéo sont essentielles pour comprendre les caractéristiques du signal acoustique. La déformation des bulles ayant un effet sur leur fréquence de résonance, cette information est intéressante à relever. Cependant, ces bulles peuvent parfois prendre des formes assez complexes, et la détection de contours donne des géométries peu exploitables. Afin de simplifier l'étude de ces bulles, il est ainsi décidé d'assimiler la forme complexe des bulles à une forme plus simple. La forme retenue est l'ellipse, car elle permet d'avoir la déformation globale de la bulle (par rapport à un cercle pour une bulle à l'équilibre) et les modèles traitant de la déformation de bulles dans la littérature utilisent des ellipsoïdes pour les décrire [86]. Ainsi, un algorithme permettant d'estimer l'ellipse la plus proche à partir des contours de la bulle est utilisé. Cet algorithme prend en entrée les coordonnées des contours de l'objet et utilise la méthode des moindres carrés pour trouver les paramètres de l'équation d'ellipse permettant d'être au plus proche des contours réels. Un exemple de résultat est montré en Fig. 2.22, où l'ellipse la plus proche trouvée par l'algorithme est représentée en traits pointillés sur l'objet donné en entrée. Le résultat, bien que la forme de la bulle soit plus complexe qu'une ellipse, permet d'évaluer son élongation (rapport grand axe sur petit axe), ce qui sera utilisé dans les corrections de fréquence (voir chapitre 3). Cet algorithme est également utilisé pour évaluer les dimensions de la goutte à l'impact sur les vidéos. En effet, celle-ci est légèrement aplatie quand elle arrive sur la surface, et présente ainsi une forme ellipsoïdale plutôt que sphérique. L'application de l'algorithme permet ainsi d'estimer les dimensions de l'ellipsoïde et de calculer le volume réel de la goutte. Elle permet également d'obtenir l'angle du grand axe de la goutte avec l'interface, qui peut varier d'un impact à l'autre, comme détaillé dans la partie 5.5.

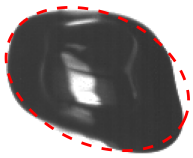

FIGURE 2.22 – Image d'une bulle créée lors d'un impact de goutte. Les traits pointillés représentent l'ellipse la plus proche de la forme des contours de la bulle, calculée par l'algorithme d'estimation d'ellipse.

Chapitre 3

Étude de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau

3.1 Introduction

Ce chapitre décrit les principaux résultats obtenus lors de l'étude de l'impact d'une goutte d'eau sur une surface d'eau, pour un régime d'impact particulier. Ces résultats sont présentés sous la forme d'un article paru en juin 2020 dans la revue Physics of Fluids [87].

Dans un premier temps, le déroulement des événements hydrodynamiques suivant l'impact est décrit en détail, à l'aide d'images issues de vidéos obtenues à l'aide de la caméra rapide. Les signaux acoustiques associés à l'impact, à la fois dans l'eau et dans l'air, sont synchronisés avec les images. Ces mesures, vidéos et acoustiques, permettent de mettre en évidence la formation d'une bulle durant l'effondrement du jet de Rayleigh, responsable de l'événement acoustique principal des signaux microphoniques et hydrophoniques. Cette bulle est formée par un mécanisme de «fermeture éclair liquide», qui est mis en évidence et détaillé pour la première fois dans cet article.

Les signaux acoustiques de la bulle et les vidéos associées sont ensuite analysés en détail et confrontés aux modèles existants. Quatre différences majeures sont mises en évidence entre mesures et modèles :

— la fréquence du signal de la bulle n'est pas constante dans le temps,
— la fréquence dominante du signal est environ 30 % plus élevée que la fréquence prédite par le modèle de Minnaert [59],

— le temps d'amortissement caractéristique du signal hydrophonique de la bulle est plus élevé que ce qui est prédit par les modèles,
— le taux de transmission du signal acoustique à l'interface eau/air est plus élevé qu'attendu, d'au moins deux ordres de grandeur.

Ces différences sont par la suite expliquées et modélisées en considérant la proximité de la bulle à l'interface et la réverbération de l'aquarium dans lequel les mesures sont réalisées.

3.2 A new insight on a mechanism of airborne and underwater sound of a drop impacting a liquid surface

3.2.1 Introduction

Besides producing a fascinating hydrodynamic ballet, a drop impacting a liquid surface generates a highly distinguishable sound. It is well known that the sound produced by a falling drop on a liquid surface strongly depends on the formation or not of an entrapped bubble [18, 20]. Indeed, after the impact, an open-air cavity develops inside the liquid until it reaches a maximum size, and then retracts while a liquid jet arises above the liquid surface [88]. The latter destabilizes into secondary droplets which in turn impact the disturbed liquid surface. At different stages of this process and through several mechanisms, a bubble could be entrapped inside the liquid, producing the characteristic noise of a dripping faucet [39]. Even if this topic has mainly been approached by fundamental studies, the potential applications that can result from understanding this phenomenon are quite varied, such as climatic measurements [89], analysis of underwater events [7] or sound synthesis [3].

All this process, and in particular the entrapment or not of a bubble, strongly depends on the initial drop diameter d and its speed v at the impact. A state diagram in d-v coordinates has been proposed by Pumphrey *et al.* [5, 21], suggesting different regimes for bubble formation. Probably the most well-known one, called *regular entrainment*, is observed for small drops and low impact speed. It has been investigated by several au-

thors [22, 26, 90, 91] who all showed that a small bubble is created through a pinching mechanism just before the retraction of the cavity.

At higher speed and for bigger drops, another area for bubble formation appears in the *d*-*v* diagram. Already observed by Franz [20] and mentioned by Leng [26], it is designed as *irregular entrainment* regime [5, 22]. Thus, the bubbles are formed later in the process, in an irregular way by detaching from a second cavity appearing after the collapse of the liquid jet which coincides with the detachment also of a secondary drop. It is worth mentioning that this area has attracted less attention from researchers and its mechanisms are not yet described in the literature.

In the past few years, there has been growing interest in measuring the related acoustic signals to get a deeper insight into fast hydrodynamical events such as bubble bursting [2, 92]. As for the concern, synchronizing acoustic records and image captures, some authors [20, 22, 23] confirmed that the bubble apparition is accompanied by an intense acoustic signal, where the dominant frequency is linked to the radius of the bubble following Minnaert theory [59]. However, only few acoustic results have been reported yet in both air and water [22, 62, 93]. It appears that the microphone signal is similar to that of the hydrophone, except that its amplitude is unexpectedly high and some physical events seem to be absent.

In this article, we present a fundamental study of a droplet falling on a liquid surface. The project aims to suggest a new analysis of the physics of this phenomenon. The perfect synchronization of acoustic signals in water and air with the associated hydrodynamic flows has allowed us to finely relate four hydrodynamic events to their acoustic signature and to understand, in particular, the differences between the acoustic signals in water and in air.

More specifically, by setting the conditions at the frontier of the so-called *irregular entrainment* regime, we have shown that the phenomenon responsible for the entrapment of the air bubble, at the origin of the acoustic wave, is completely new and is highly reproducible and regular although the details of the flow may fluctuate from one experiment to another. The latter, similar to a liquid zipper, occurs when a drop detached from the Rayleigh jet closes the subsidiary cavity. A thorough study of the acoustic signals reveals

a time-dependence of the instantaneous frequency with a dominant frequency higher than Minnaert prediction, a damping and an amplitude of the acoustic signal that do not match the predictions of existing models. We suggest that all these features can be understood by taking into account the dimensions of the tank and especially the proximity of the bubble to the air/water interface.

3.2.2 Materials and methods

The water drop is created by a PhD Ultra syringe pump, equipped with a 60 ml syringe ended by an Interchim Teflon cylindrical hose, usually used for chromatography analysis, with an interior and exterior diameter of 1 mm and 1.5 mm, respectively. The syringe pump flow rate is set to 10 ml/h, and thus, the diameter of the created droplet is 3.70 ± 0.05 mm. The tank and the syringe are filled out with distilled water, unless otherwise specified.

Pressure signals are recorded both underwater, by a Brüel & Kjær Type 8103 hydrophone, and in the air, by a G.R.A.S. Type 40BP 1/4 in. microphone. The hydrophone is located at 5.3 cm and the microphone at 6.4 cm from the impact location. The hydrophone is connected to a conditioning amplifier Brüel & Kjær Type 2692-0S4. The microphone is connected to a G.R.A.S. Type 26AC 1/4 in. preamplifier, linked to a conditioning amplifier Brüel & Kjær Type 2690. Both signals, recorded by a digital oscilloscope Picoscope 4262 with a sampling rate of 500 kHz, are treated to reduce the noise by an algorithm based on spectral subtraction of the recorded ambient noise from the signal.

A video of the impact is recorded by a high-speed camera Photron FastCam SAX2 equipped with a Sigma Macro 105 mm lens. A led-based backlight is used to shine the experiment. The sample rate of video acquisition is set at 20 000 fps, unless otherwise specified. A spherical object of known dimensions is used to determine the magnificence and to check that the image is not distorted.

The different acquisitions are triggered by an XCSource TE174 infrared sensor module, linked to an Arduino Mega card. The module is situated just underneath the hose to detect the droplet when it detaches. All the acoustic signals are synchronized to the video footage. So, both signals are shifted with respect to time to account for the propagation

times of acoustic waves from the impact point to the microphone and the hydrophone. The origin of time corresponds to the moment when the droplet touches the water surface.

The drop falls into a glass tank with external dimensions of 341×165×218 mm^3 and 3.4 mm thick walls. It is filled with distilled water, up to its maximum height (218 mm). It is supported by four blocks of solid polymer foam to avoid vibration transmission between the tank and the metallic structure, which allows us to keep a fixed position between the different measurement campaigns. The structure is placed in a semi-anechoic room to avoid any acoustical reflections in the air for frequencies higher than 100 Hz. The room is located in the underground floor, so the temperature, even not controlled, is almost constant and is around 19°C. The height of fall of the drop is fixed at 76.5 cm. Thus, the velocity of the falling drop is about 3.34 ± 0.01 m/s as determined by tracking its trajectory on the video footage. Each measure is launched after the water surface is calm. Each measurement is repeated at least 50 times to quantify the repeatability of the acoustic signals and video movies.

3.2.3 Results and discussion

3.2.3.1 Hydrodynamic and acoustic investigation of the events leading to a new mechanism of bubble entrapment

Typical acoustic signals following the drop impact are presented in Fig. 3.1. The top and bottom signals correspond to the air and underwater pressures, respectively. We identify four main events. The time $t = 0$ is arbitrary fixed at the moment when the drop touches the surface of the liquid. The *First Impact (FI)* begins at $t = 0$ ms and ends around 40 ms with the appearance of the *Rayleigh Jet (RJ)*, which is the second event. The instability of the Rayleigh jet involves the detachment of secondary drops during its collapse. The third event, called *Bubble Formation (BF)*, first consists of the creation of a second air cavity from 140 ms approximately until it is suddenly closed by a secondary drop at 150 ms, creating an air bubble. Subsequently, the sudden closure of the cavity, which characterizes the beginning of the fourth event, causes an acoustic signal that gradually subsides over time and cohabites with the *Bubble Dynamic (BD)*. In the following, the acoustic and hydrodynamic features of these four events are precisely detailed.

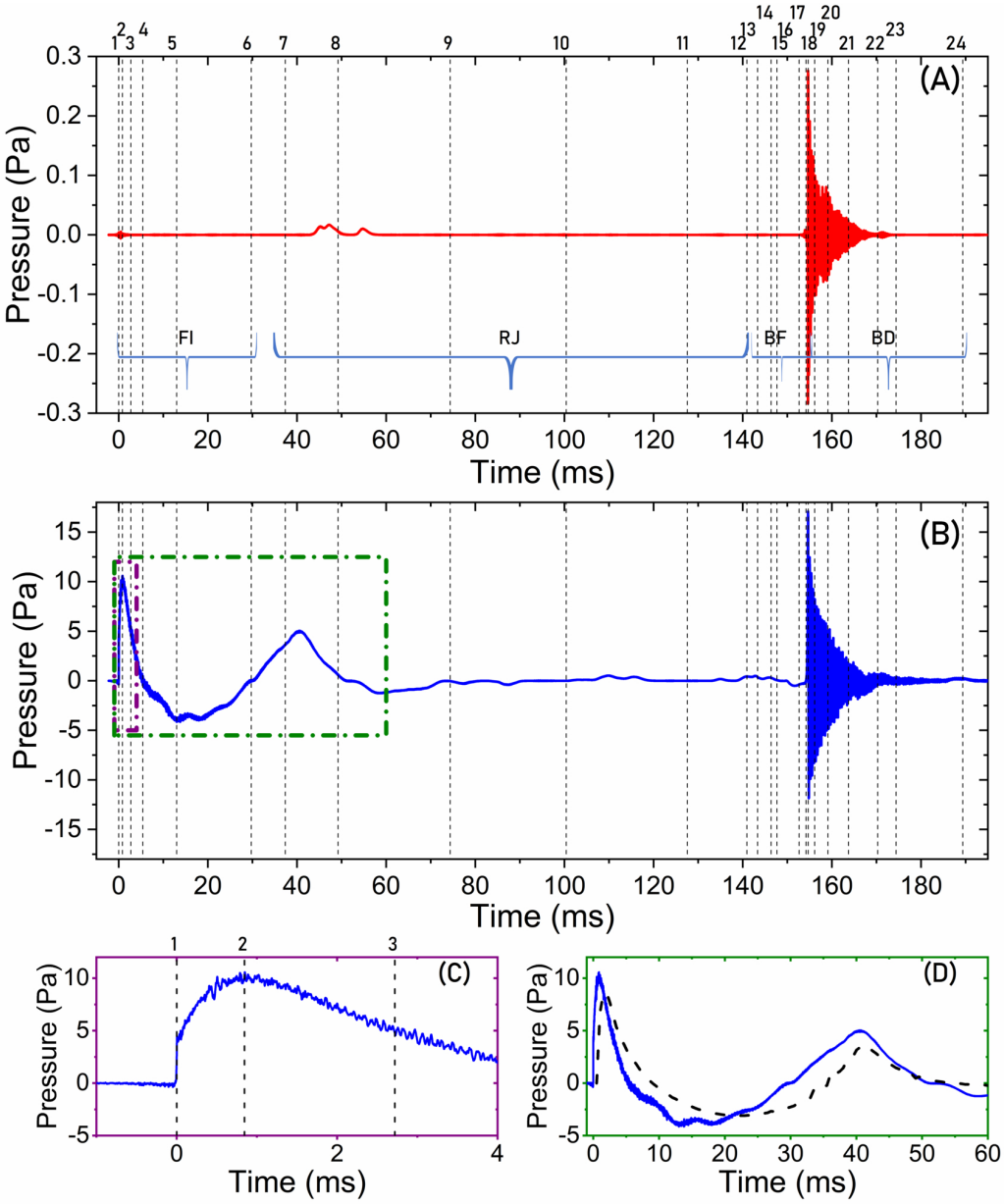

FIGURE 3.1 – (A) Signal recorded by the microphone. (B) Signal recorded by the hydrophone. Time $t = 0$ s is taken when a drop impacts the water surface. Dotted lines represent the times at which the images of Figs. 3.2–3.5 and 3.8 are taken. From the left to the right, four main events are identified : the First Impact (FI), Rayleigh Jet (RJ), Bubble Formation (BF), and Bubble Dynamic (BD) events. (C) A zoom at the beginning of the FI event, given by the purple box on (B), with markers 1, 2, and 3 corresponding to the images of Figs. 3.2 and 3.3. (D) A comparison between the beginning of the measured hydrophone signal and a fluid mechanics simulation (dashed line) of the hydrodynamic pressure during the first hundredth of seconds after a drop impact, given by the green box on (B).

First impact (FI) The first event begins with the initial impact of the water drop on the water/air interface (event FI in Fig. 3.1) and lasts about t =40 ms. First, an air cavity develops inside the liquid until it reaches its maximum size, and then retracts while the Rayleigh jet emerges above the interface. Note that, for lower impact energy, a bubble may be pinched during the retraction of the cavity, as described by numerous authors [5, 20-22, 26, 62, 90]. This pinching mechanism (called *regular entrainment* in [5]) is not observed in the configuration of this study.

The images related to this event are displayed in Figs. 3.2 and 3.3 with the corresponding times (1–6) on the acoustic signals (Fig. 3.1). On the hydrophone, the impact induces slow pressure variations but with a large amplitude. On the microphone, the signal amplitude is much weaker than the hydrophone one. At the moment of the impact (image 1), a sharp overpressure is generated in water [see Fig. 3.1(C)]. As the drop merges with the liquid (image 2), the pressure continues to rise until a maximum. Then, a liquid crown develops above the surface while an air cavity develops underwater (images 2–5). During this stage, a depression is recorded by the hydrophone. When the crown and the cavity are around their maximum size (image 5), a minimum in pressure on the hydrophone signal is measured, then the crown collapses, the cavity retracts (image 6), and the underwater pressure rises until a maximum. This maximum of pressure corresponds to the beginning of the development of the Rayleigh jet.

In parallel, numerical simulations are performed. We use the open source software OpenFoam with interFoam solver that solves the Navier–Stokes equation considering incompressible fluids. The details of the simulations are based on the work reported by Castillo-Orozco et al. [47], which we had just adapted to our case. Using axisymmetric conditions, the impact of a water drop on a water surface is defined, imposing the same drop diameter and impact velocity as in the experiments. The volume of fluid (VOF) method is used to deal with the interface dynamics [94]. The hydrodynamic pressure in water during the impact is calculated at the same location of the hydrophone in the experiments. It appears that the numerical predictions are in good agreement with the measurements without any adjustable parameter [see Fig. 3.1(D)]. Results can be improved by further refining the mesh and taking into account the finite size of the hydrophone membrane of about 6 cm^2.

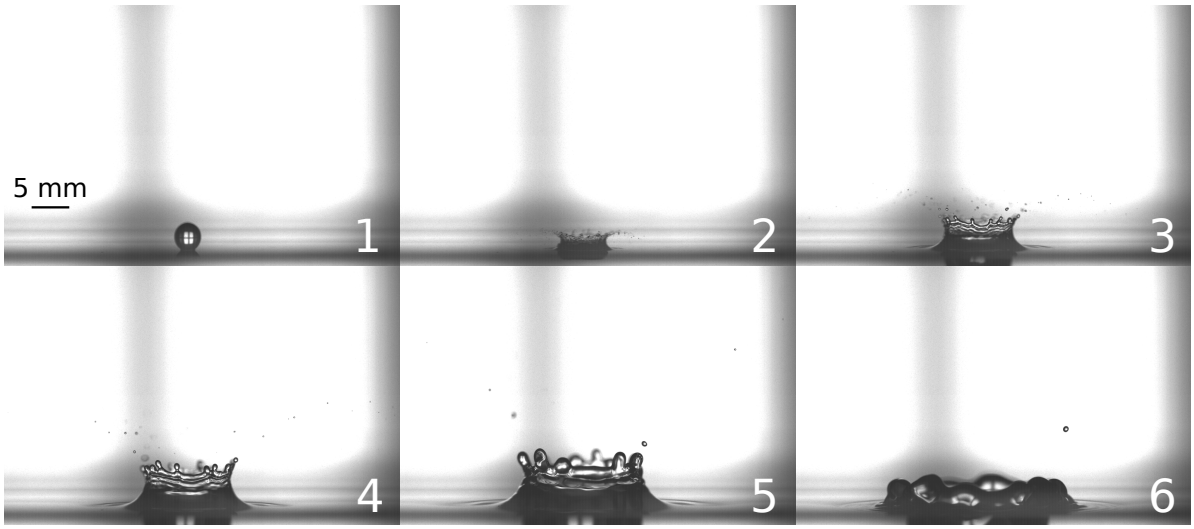

FIGURE 3.2 – Hydrodynamic flow above the water surface for the First Impact (FI) event. The marks are the same as reported in Fig. 3.1. The images are taken at (1) $t = 0$ s, (2) $t = 0.84$ ms, (3) $t = 2.72$ ms, (4) $t = 5.41$ ms, (5) $t = 12.99$ ms, and (6) $t = 29.72$ ms.

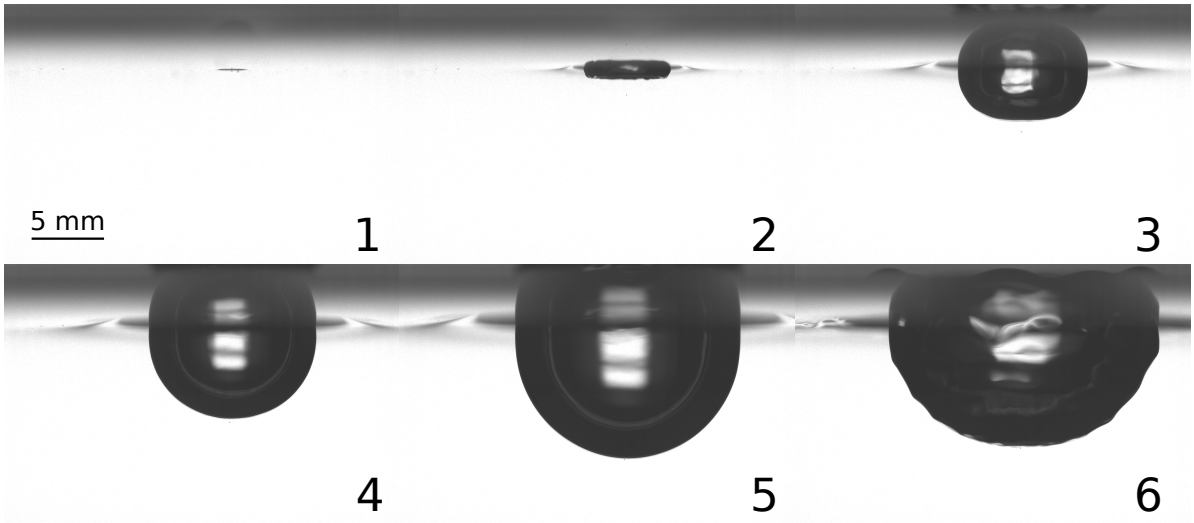

FIGURE 3.3 – Hydrodynamic flow under the water surface for the First Impact (FI) event. The images are taken at (1) $t = 0$ s, (2) $t = 0.84$ ms, (3) $t = 2.72$ ms, (4) $t = 5.41$ ms, (5) $t = 12.99$ ms, and (6) $t = 29.72$ ms.

The Rayleigh jet (RJ) Between 40 ms and 140 ms (Fig. 3.1), the Rayleigh jet development and its collapse, designed as a Rayleigh Jet (RJ) event, happens. It does not show a noticeable signature on both hydrophone and microphone acoustic signals. The corresponding images are given in Fig. 4. At $t = 40$ ms, the cavity developed after the impact starts to retract due to surface tension and gravity, while a Rayleigh jet emerges above the surface (images 7–9). The converging flow under the cavity creates the jet and corresponds to a decrease in underwater pressure. When the jet reaches its maximum height, Rayleigh instabilities take place and lead to the detachment of two secondary droplets (images 10–12) at variable heights of the jet. In the following, we call SD1 the first detached droplet and SD2 the second one. The remaining jet continues to collapse. Images 10–12 show how the distances between the jet column and the detached droplets increase since the surface tension and the gravity act on the column while only the gravity acts on the secondary droplets.

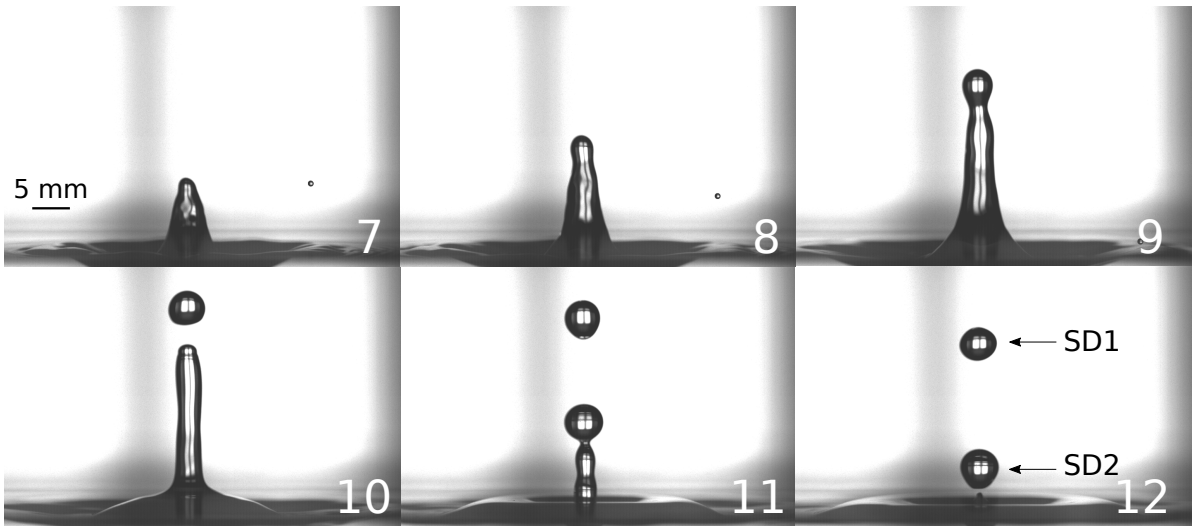

FIGURE 3.4 – Hydrodynamic flow above the water surface for the Rayleigh Jet (RJ) event. The images are taken at (7) $t = 37.37$ ms, (8) $t = 49.21$ ms, (9) $t = 74.38$ ms, (10) $t = 100.39$ ms, (11) $t = 127.58$ ms, and (12) $t = 140.94$ ms.

The bubble formation (BF) : Liquid zip-like flow mechanism The third event leads to a bubble formation (BF), which has both an acoustic and a hydrodynamic signature. As shown in images 13–16 of Fig. 3.5, the base of the remaining Rayleigh jet creates an air cavity by collapsing into water. This cavity is further closed by the first arriving droplet (SD2) (image 17) thus trapping an air bubble (image 18). The closing of the cavity by this droplet can be considered as a liquid zip-like flow, lasting about 0.15 ms, between images 17 and 18. The closing of the interface is undoubtedly faster than the rising of the bottom of the cavity to drive out the air. As a consequence, a pocket of air remains trapped. We get a more detailed description with a 40 000 fps movie. Selected images are shown in Fig. 3.6. The cavity closing begins when SD2 touches the interface at one edge of the cavity (dashed red circle in image 17-b) and starts to merge with the liquid around the cavity. This merging at the top of the cavity thus propagates like a zip-process along the periphery of the cavity (images 17-c to 17-e). The detachment of the bubble is clearly reflected by the gray line crossing the cavity. The free surface is then rather at rest when the second droplet (SD1) arrives a few tens of milliseconds after.

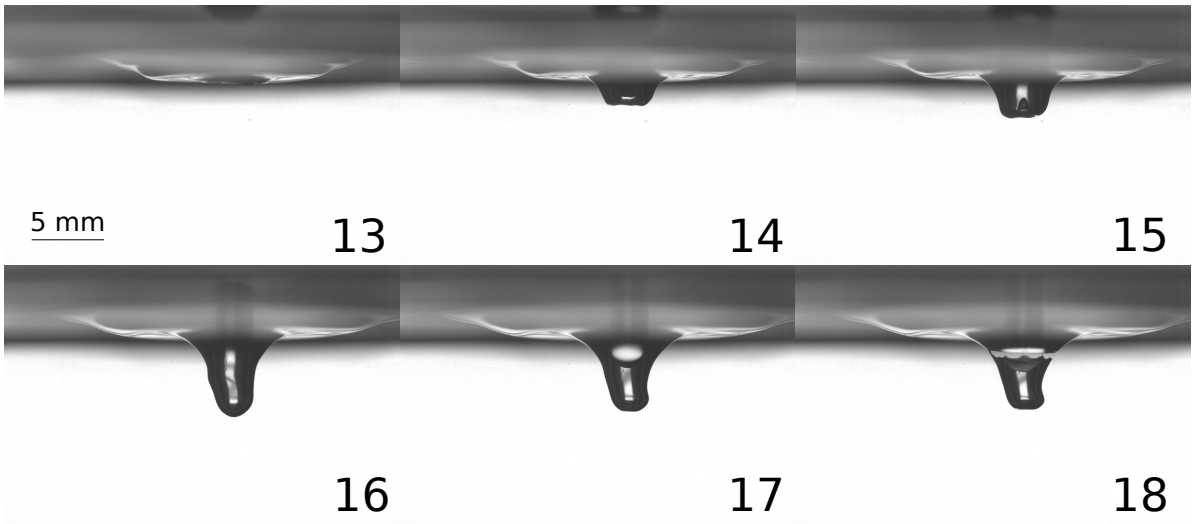

FIGURE 3.5 – Hydrodynamic flow under the water surface for the bubble formation (BF) event. The images are taken at (13) $t = 143.34$ ms, (14) $t = 146.37$ ms, (15) $t = 147.65$ ms, (16) $t = 152.62$ ms, (17) $t = 154.21$ ms, and (18) $t = 154.65$ ms.

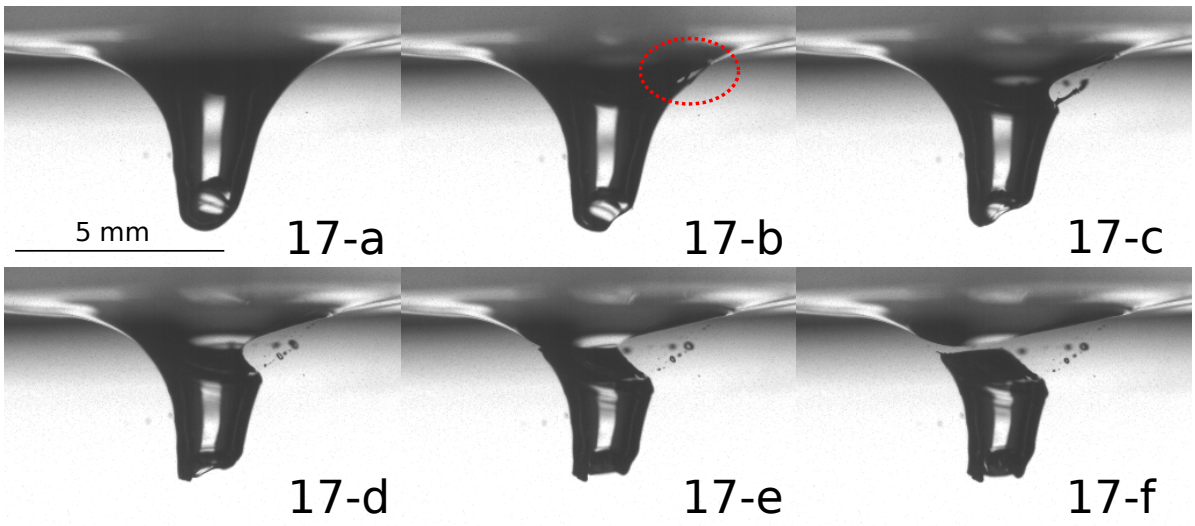

FIGURE 3.6 – Detailed images of the detachment of the air bubble (BF) and the evolution of the liquid zip-like flow mechanism. The times for each image are presented in Fig. 3.7. The dashed red circle shows the moment when SD2 touches the interface at one edge of the cavity. The images are taken at (17-a) $t = 152.25$ ms, (17-b) $t = 152.43$ ms, (17-c) $t = 152.59$ ms, (17-d) $t = 152.73$ ms, (17-e) $t = 152.84$ ms, and (17-f) $t = 152.89$ ms.

The acoustic signal of the hydrophone shows that the pressure rises during the liquid zip-like flow mechanism until a maximum when a complete detachment of the bubble happens (see image 17-f in Fig. 3.6 and the marks in Fig. 3.7). On the contrary, the microphone signal shows first a decrease in the pressure during the liquid zip-like flow mechanism, followed by an instantaneous high pressure at the end of the liquid zip-like mechanism. Considering several impacts, the microphone signal is rather variable and depends on the accurate delay between the secondary droplet SD2 and the remaining Rayleigh jet retraction. As shown in Fig. 3.7, a horizontal shift (t_0) of the curves along the time axis is made, reveals that the depressions follow the same exponential curve, and the overpressure levels are circumscribed under an exponential curve too (drawn in dashed line). In addition, the ratio between these two extrema remains approximately constant for all the events. The last point concerns the difference between the time lags between these two extrema, which remains invariable for all the recorded experiments and lasts around 15 μs. Note that the larger is the relative speed between the bottom of the cavity and the droplet SD2 at the impact, the higher is the maximum of the pressure.

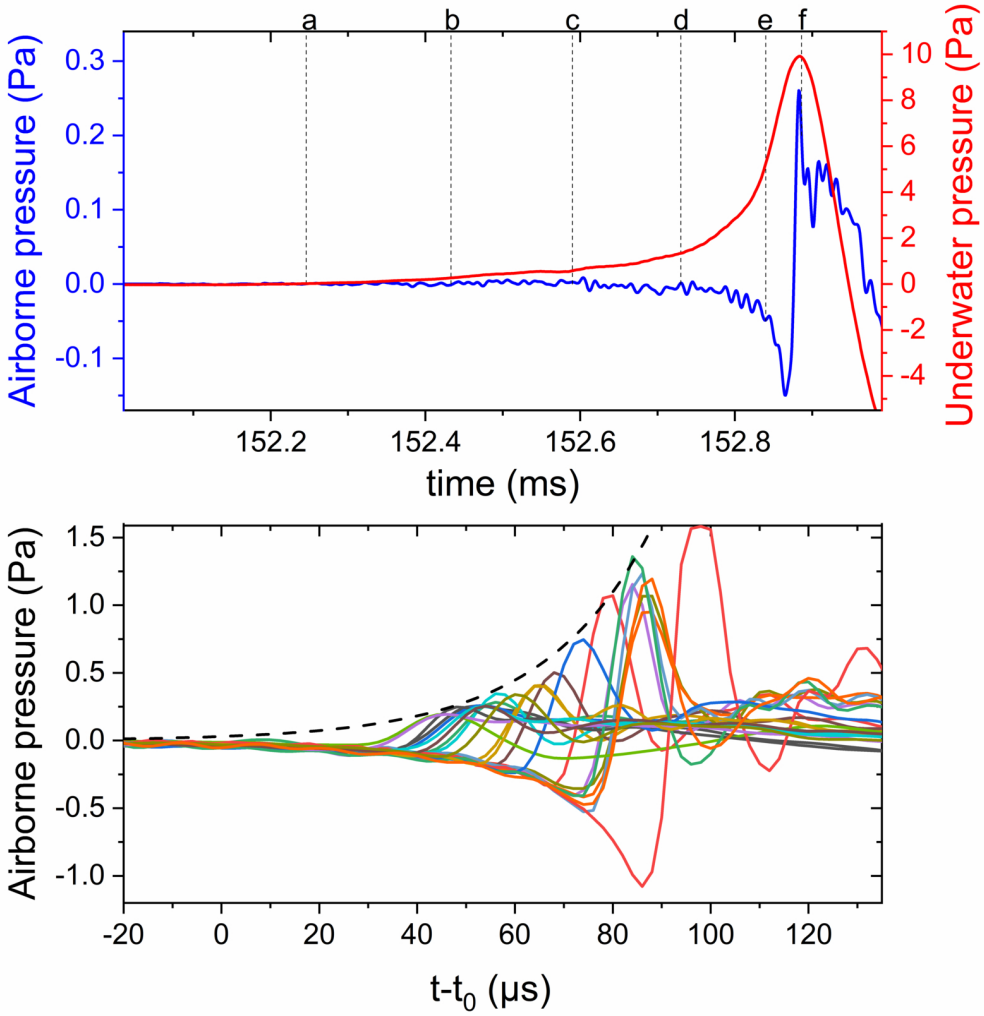

FIGURE 3.7 – Top : airborne and underwater acoustic signals during the bubble creation. Markers on the acoustic signals indicate the time when each video frame of Fig. 3.6 was taken. Bottom : superposition of microphone patterns by an arbitrary lag time t_0 for different measurements during the liquid zip-like flow mechanism, preceding of the intense damped sinusoidal signal. The dashed line is an exponential curve that circumscribes the maxima of the airborne pressure just at the closure of the cavity.

The bubble dynamic (BD) The sudden detachment of the bubble corresponds to the beginning of the fourth event called Bubble Dynamic (BD) event. The images are given in Fig. 3.8. In the first moments, the bubble moves away from the interface while oscillating (images 19 and 20), and then the cavity caused by the impact of SD2 tends to approach this bubble (images 21 and 22), before finally moving away from it (images 23 and 24).

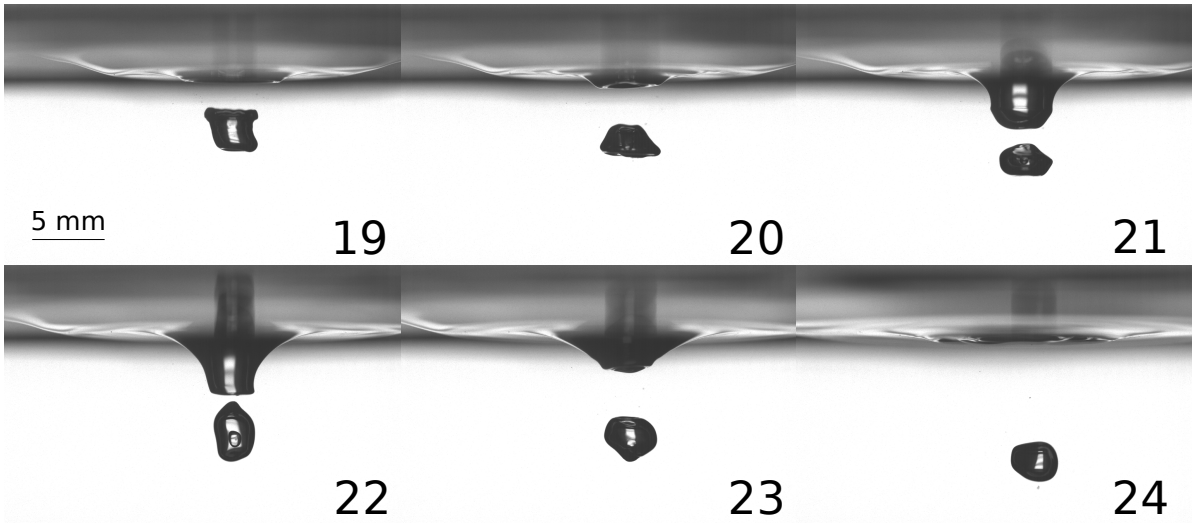

FIGURE 3.8 – Images corresponding to the evolution of an air bubble and the water interface after the formation of the bubble (BD). The images are taken at (19) $t = 156.14$ ms, (20) t = 159.11 ms, (21) $t = 163.73$ ms, (22) $t = 170.26$ ms, (23) $t = 174.42$ ms, and (24) $t = 189.38$ ms.

The maximum pressure when the bubble is detached, visible on the underwater and airborne signals, is followed by damped sinusoidal oscillations [Figs. 3.1(A) and 3.1(B)], which correspond to the sound which is heard, in fact, around 150 ms after the initial drop has touched the water surface. The damped underwater and airborne signals have the same dominant frequency, which depends on the bubble radius, as predicted by Minnaert [59]. Nevertheless, a thorough analysis of these acoustic signals reveals some rather sophisticated and unexpected features. This is the subject of section 3.2.3.2.

3.2.3.2 Analysis of the acoustic signal of the oscillating bubble

The frequency of the bubble oscillation The Minnaert model describes the volume oscillations of a spherical bubble in an infinite medium [59]. The natural frequency f_M of a bubble with a radius R_0 is :

$$f_M = \frac{1}{2\pi R_0}\sqrt{\frac{3\gamma P_0}{\rho}}, \tag{3.1}$$

where γ is the ratio of specific heat of the gas inside the bubble, P_0 is the hydrostatic pressure, and ρ is the density of the fluid. As can be seen, the natural frequency of the bubble is inversely proportional to its radius.

a. Time-dependence of the frequency The time variation of the frequency of the damped sine of the underwater acoustic signal is shown in the spectrogram in Fig. 3.9. The spectrogram is measured with a sliding window of 2048 points (corresponding to 4.1 ms), exhibiting an information mainly concentrated around the so-called instantaneous frequency. The instantaneous frequency appears to change during the oscillations of the signal. During the first milliseconds, the frequency decreases rapidly, then remains constant for several milliseconds, and often finally rises at the end of the oscillations.

On the basis of video observations, the shape of the bubble and its distance to the water/air interface change continuously. According to Strasberg [86], the resonance frequency of a bubble actually depends on its deformation and on its distance to the interface. It may be corrected as follows :

$$f_s = (c_e \cdot c_d) f_M, \tag{3.2}$$

$$c_e = \left(\frac{e^{2/3}}{\sqrt{e^2-1}}\arctan\sqrt{e^2-1}\right)^{-1/2}, \tag{3.3}$$

$$c_d = \left(1 - \frac{R_0}{2d} - \left(\frac{R_0}{2d}\right)^4\right)^{-1/2}, \tag{3.4}$$

where c_e and c_d, given by Eqs. 3.3 and 3.4, are the correction coefficients due to the deformation of the bubble and to the proximity to the interface, respectively. R_0 is the bubble radius at rest, d is the distance between the center of the bubble and the interface, and

e is the ratio of the major axis to the minor axis considering the deformed bubble as an ellipsoid. It appears that, as the distance between the bubble and the interface is smaller, the corrective coefficient c_d is higher.

A tracking algorithm has been developed to follow the evolution of the bubble position and shape during its oscillations. From these measurements, Strasberg correction coefficients can be calculated for each frame and applied to the theoretical Minnaert frequency considering a bubble radius measured on the images when the bubble is at rest.

The instantaneous frequency is then corrected according to this concept and plotted on the graph. The results show both qualitative and quantitative agreement, which we will detail in Sec. 3.2.3.2-b. In particular, the occurrence of the frequency at the end of the oscillations, reported elsewhere [3], is due to a strong decrease in the distance between the bubble and the interface, caused by the impact of SD2 (see images 20–22 in Fig. 3.8).

b. Comparison to Minnaert frequency. For each pressure oscillation of the underwater acoustic signal, the dominant frequency $F_{main}^{(h)}$ is calculated by taking the maximum of the Fourier transform over the entire oscillating signal (see example in Fig. 3.9). On the other hand, the tracking algorithm, as described above, allows us to determine the average coefficients $\bar{c_d}$ and $\bar{c_e}$. Then, we use them to calculate the corrected frequency f_c [Eq. 3.5],

$$f_c = F_{main}^{(h)} \frac{1}{\bar{c_d} \cdot \bar{c_e}}. \tag{3.5}$$

Fig. 3.10 compares f_M to f_c . Error bars correspond to the minimum and maximum frequencies calculated, from the maximum and minimum distances and deformations measured during the volume oscillation of each bubble. After the correction, the measurements are in very good agreement with Minnaert theory. It is worth mentioning that, in the conditions of this study, the correction due to the bubble deformation is small compared to the correction due to its distance from the air/water interface (see the inset in Fig. 10).

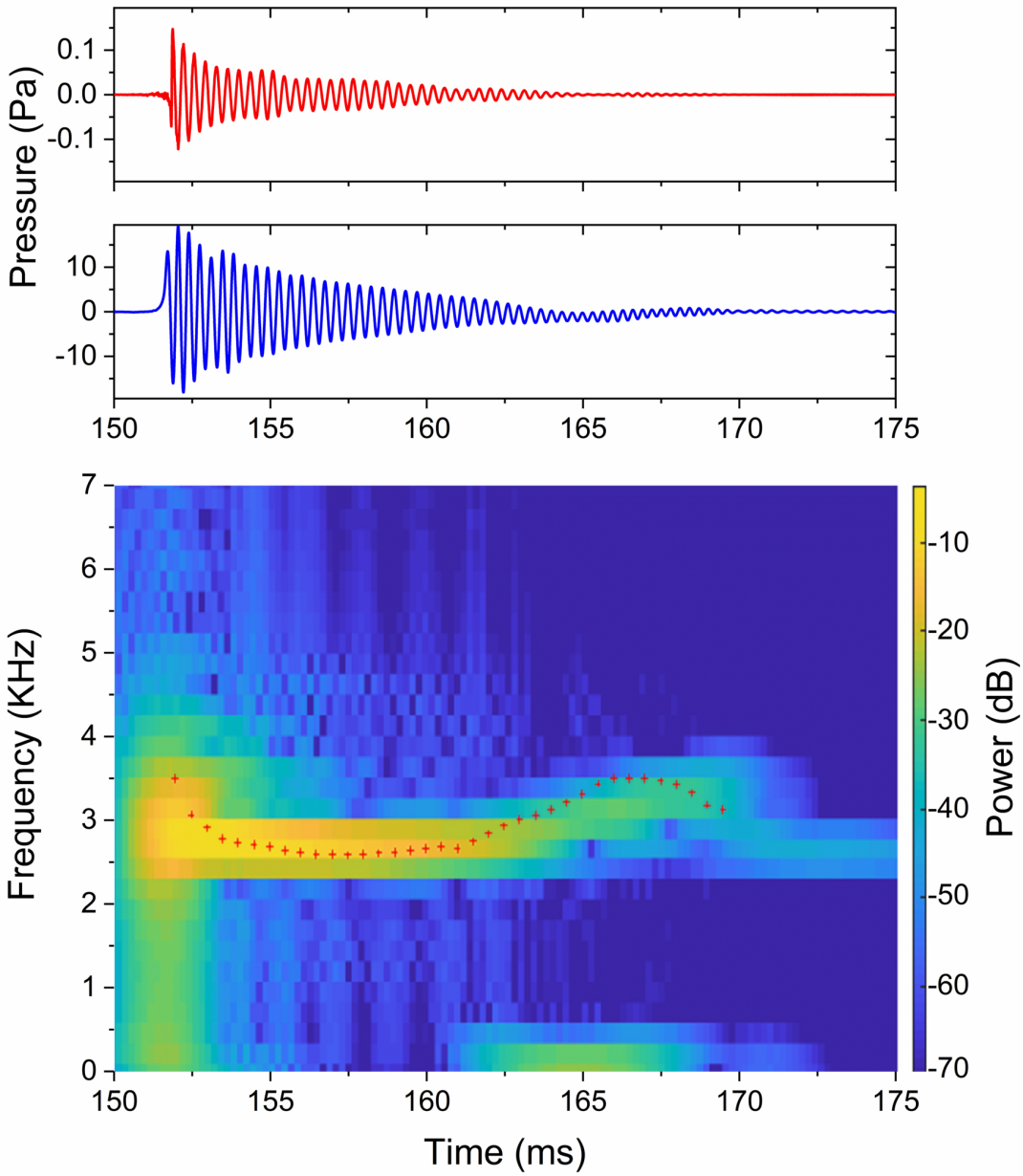

FIGURE 3.9 – Top : graphs of the temporal evolution of the pressure measured by the microphone (red) and hydrophone (blue). Bottom : time–frequency representation of the damped oscillations of the underwater pressure produced by a bubble formed after a drop impact. Red dots represent the computed frequency predicted when applying the Strasberg corrections.

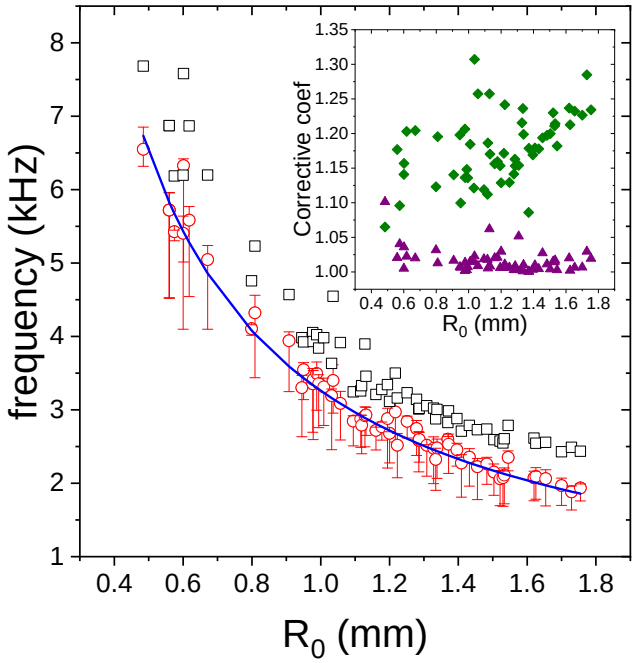

FIGURE 3.10 – The measured dominant frequencies $F_{main}^{(h)}$ (black squares) as a function of the bubble radius at rest (R_0), and the corrected frequencies f_c (red circles) accounting for the bubble/interface distance and the anisotropy of the bubbles. The blue solid line is the prediction of the Minnaert model with the radius R_0 . The inset represents the Strasberg coefficients, c_e (purple triangles) and c_d (green diamonds), calculated from the movies for each case.

Air–water transmission For a plane wave traveling from water to air, the pressure transmission coefficient is given by $Tr = \frac{2Z_{air}}{Z_{air}+Z_{water}}$, with $Z_{air} \sim 4.10^2$ Pa.s.m^{-1} and $Z_{water} \sim 15.10^5$ Pa.s.m^{-1} , the impedances, respectively, of air and water, predicting a transmission around 5.10^{-4}. For these measurements, the hydrophone is situated at 4 cm horizontally from the impact point, and 3.4 cm vertically. The microphone is situated 6 cm horizontally, and 2.1 cm vertically from the impact point. The water-to-air pressure transmission is roughly constant and equal to 10^{-2} (see, for example, acoustic signals in Figs. 3.1 and 3.9). This value is roughly the same as the one reported by Phillips et al. [62]. They explained the unexpected transmission value by the oscillation of the water surface. However, we prove here that this high transmittance value is essentially a consequence of the proximity between the bubble (source of the acoustic signal) and the interface.

The entrapped bubbles usually produce oscillations at frequencies mainly between 2 kHz and 10 kHz, corresponding to wavelengths λ between 15 cm and 75 cm in water, which is much larger than the bubble–interface distance of about a few millimeters. Thus, the acoustic signal arriving on the interface cannot be considered as a plane wave, and one must consider the geometry features of the problem, i.e., a spherical source and a planar interface. So, a spherical wave may be described as an infinite sum over frequencies of monochromatic plane waves, and in this situation, this sum contains evanescent waves [95]. Due to the proximity of the source and the interface, evanescent waves in water can reach the interface and produce propagative waves in the air (as Z_{air} is much smaller than Z_{water}). Theoretical studies have shown that this effect leads to a large increase in the acoustic energy transmitted to the air [95-97].

Numerical simulations based on the finite element method (using Comsol Software, acoustics module) have been computed to predict the transmission coefficient in our experimental conditions. Using axisymmetric geometry, a water–air interface is simulated. A monopolar source is defined just below the interface. As the transmission coefficient should depend on the ratio of the source–interface distance over the wavelength, it is chosen to fix the frequency at 3 kHz and to vary the source–interface distance. Perfect matching layers are used to simulate an semi-infinite medium both in water and in air. The pressure calculations in the air and in water are performed at the same locations as the microphone and hydrophone in the experimental setup. The results, shown in Fig. 3.11, display an increase in the transmission coefficient when the ratio of the distance of the interface to the wavelength decreases.

The experimental transmission coefficients are measured. For each bubble oscillation, the pressure values of the extrema of the oscillating signal for both microphone and hydrophone are measured, and the ratio is calculated. Note that this method allows us to follow the temporal evolution of the transmission coefficient, which varies with time. This can be explained by the variation of the bubble–interface distance during the oscillations. In order to compare with the simulation, a mean transmission coefficient is calculated, as well as a mean bubble–interface distance, measured on the video footage.

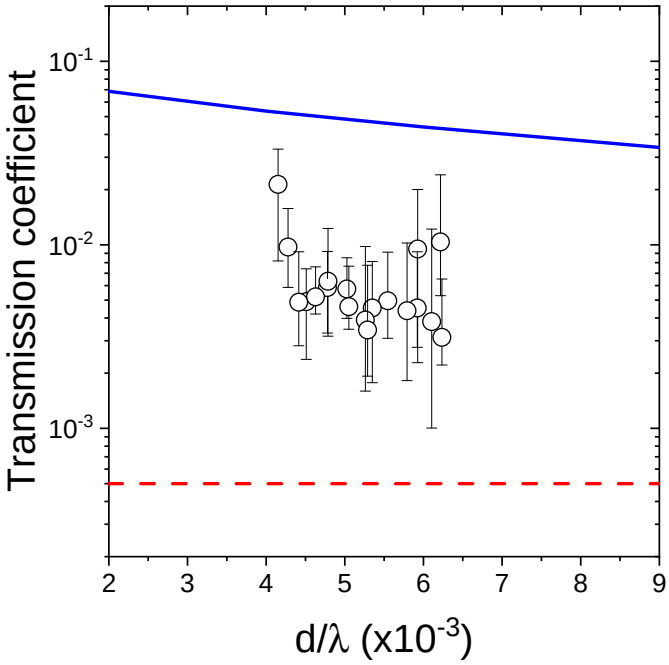

FIGURE 3.11 – Transmission coefficient through the water–air interface as a function of the ratio of the distance between the acoustic source to the interface and the wavelength of the acoustic wave in the water. The circles correspond to the experimental measurements, and the solid line is the theoretical prediction accounting for the geometry of the acoustic source and the distance to the interface. The dashed line is the transmission coefficient given by the plane wave theory.

The results are plotted in Fig. 3.11. The error bars display the maximum and minimum values for both the distance and the transmission coefficient. The measured pressure ratios are of the same order of magnitude as the simulation, although slightly lower. This effect may be explained by the tank influence on the acoustic field in water. Although the simulations are performed for a semi-infinite medium, the pressure measured by the hydrophone is the sum of the direct source radiation and the reflected radiation on the tank walls, and the measured transmission coefficient is then underrated. The role of the reflections on the tank walls is clearly attested in Sec. 3.2.3.2.

Damping We now focus on the apparent damping of both underwater and airborne acoustic signals. The experimental damping time τ of each signal (τ_{water} and τ_{air} measured in water and in air, respectively) is calculated by measuring the evolution in time of the extrema of each signal and fitting them by an exponential decrease of characteristic time τ. For several experiments, bubbles of various sizes and so various oscillation frequencies are produced, and the damping times are measured for each case. As shown in Fig. 3.12, τ_{water} is clearly larger than τ_{air} for any frequency.

For a bubble in an infinite medium (i.e., far from both the free surface and the tank walls), the dimensionless damping constant δ defined by $\delta = 2/\omega_0\tau$ is due to three origins [85],

$$\delta = \delta_{rad} + \delta_{th} + \delta_{vis}, \tag{3.6}$$

with ω_0 being the natural bubble pulsation, and δ_{rad}, δ_{th}, and δ_{vis} describing the radiation damping, thermal damping, and viscous damping, respectively. These three different quantities are expressed as [85] :

$$\delta_{rad} = \frac{\omega_M R_0}{c_0}, \tag{3.7}$$

$$\delta_{vis} = \frac{4\eta}{R_0^2 \rho \omega_M}, \tag{3.8}$$

$$\delta_{th} = \frac{P_0 \mathrm{Im}(\phi)}{R_0^2 \rho \omega_M^2}, \tag{3.9}$$

with c_0 being the celerity of longitudinal acoustic waves in the liquid, η the shear viscosity, ρ the density of the liquid, and $\phi = 3\gamma\left(1 + 3i\frac{(\gamma-1)l_d}{\sqrt{2}R_0}\right)$ in the adiabatic limit ($l_d \ll R_0$), with l_d being the thermal diffusion length. As shown in Fig. 3.12, the values of the damping time obtained by this model are in satisfactory agreement with those of the experimental damping time measured in the air but far from the values measured in water.

To identify a possible role of the tank walls in the signal measured by the hydrophone, experiments were performed in a real pool of dimensions $10\times25\times2.2$ m^3. In these conditions, the measured τ_{water} and τ_{air} are similar and consistent with the theoretical values (see Fig. 3.12). In the pool, the working area (impact point and hydrophone) is at 2.2 m of the closest wall, in order to maximize the time lag between the direct signal and the first reflection on the wall (the reflection from the interface cannot be avoided). The first

echo is therefore supposed to be measured on the hydrophone after about 3 ms, which is higher than the characteristic damping time of most bubbles.

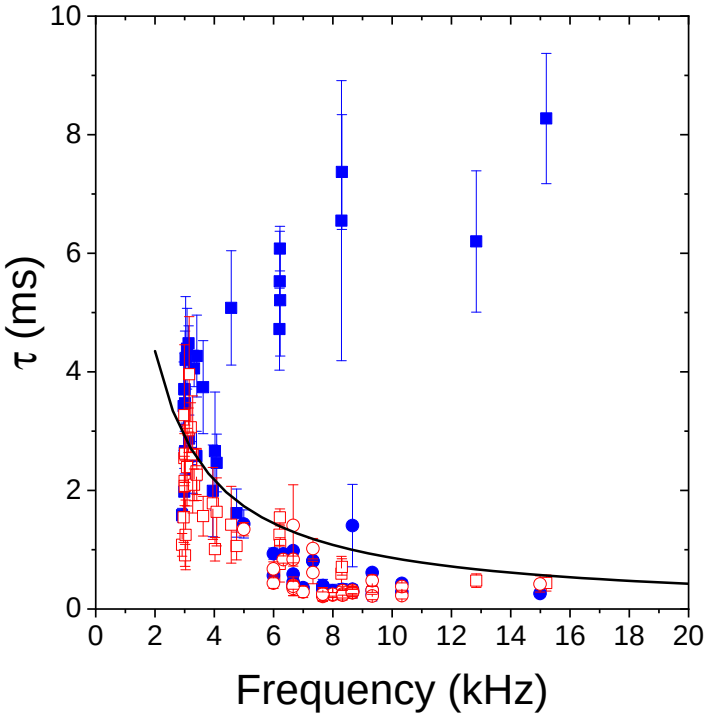

FIGURE 3.12 – Characteristic damping time τ of the oscillating signals measured in water (blue closed symbols) and in the air (red open symbols). Measurements performed both in a tank (square symbols) and in a big swimming pool (circle symbols) are compared to the theoretical predictions (solid line).

This result suggests that the hydrophonic signals obtained in a tank are made up of the acoustic emission of the bubble and all the reflections on the walls of the tank. Moreover, the amplification at a given frequency depends on the frequency resonance of the water volume. However, the damping time deduced from the microphone measurements is not influenced by the liquid container. Indeed, the microphone measures the direct field of the source, without the reflections on the container walls.

3.2.4 Conclusion

This work reports on the hydrodynamics and acoustics, below and above the water surface, of a drop of water impacting the liquid surface at the frontier of the so-called irregular entrainment regime. The synchronization of the images obtained by a fast camera and the acoustic signals allowed a very fine and novel description of the phenomenon.

During the first hundredth of seconds, the hydrophone signal shows a relatively slow variation in pressure associated with the development of an air cavity following the impact. At about 150 ms after the impact, an intense acoustic signal is recorded both under water and in the air. It corresponds to the free oscillations of an air bubble whose entrapment mechanism is first revealed here. Indeed, when the Rayleigh jet, induced by the retraction of the primary cavity, collapses, two secondary droplets are released. The second droplet falls back and closes the air cavity created by the retraction of the Rayleigh jet. The closing of this cavity resembles a liquid zipper and generates a specific pressure signal in the air.

Once the bubble has formed, an acoustic signal is measured in the air and under water, corresponding to the oscillations of the bubble volume, as described by Minnaert. However, the measured frequency values are about 20%–30% higher than those predicted by the Minnaert model. In addition, we have highlighted the time-dependence of the instantaneous oscillation frequency. These features are related to the proximity of the bubble to the interface and to its deformation. The corrections applied to the Minnaert theory, as proposed by Strasberg, show good agreement with the experimental results.

The transmission coefficient across the water–air interface is also studied and is more than ten times higher than the predicted one for plane waves. In contrast, the proximity of the bubble to the interface and the spherical geometry of the source may explain the increased transmission across the interface.

Finally, the comparison between measurements in a tank and in a large swimming pool shows the important role of the tank dimensions. The results highlight that the duration of the acoustic signal measured on the hydrophone is greatly increased by acoustic reflections from the tank walls.

Chapitre 4

Mécanismes de formation de bulle et leur signature acoustique

4.1 Introduction

Ce chapitre présente différents mécanismes de formation de bulle observés lors de l'impact d'une goutte sur un liquide dont la tension de surface est modifiée, pour le régime d'impact détaillé dans le chapitre 3, ainsi que leur signature acoustique. Il présente également une méthode de classification automatique de ces mécanismes à l'aide de leur seul signal acoustique, développée dans le cadre de cette thèse. Ces résultats sont présentés sous la forme de deux articles.

Le premier article, paru en juillet 2021 dans la revue Physics of Fluids [98], présente les résultats issus de l'étude de l'impact d'une goutte d'eau sur une surface d'eau avec un tensioactif, le sodium dodecyl sulfate (SDS). L'attention est portée sur les événements observés dans le signal acoustique de l'impact. Comme détaillé dans le chapitre 3, pour des conditions d'impact particulières, l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau engendre un seul événement acoustique, dû à l'emprisonnement d'une bulle par un mécanisme de "fermeture éclair liquide". L'ajout de SDS dans le bain, pour les mêmes conditions d'impact, provoque l'apparition d'autres événements acoustiques. Ces événements, dus à la vibration de bulles, changent en fonction de la concentration en SDS. Ainsi, cinq familles d'événements hydrodynamiques, associées chacune à un signal acoustique, sont mises en évidence. Elles correspondent à quatre mécanismes différents de formation de bulle et un mécanisme d'excitation de bulle. Ces cinq mécanismes décrits en détail possèdent une signature acoustique propre. Les principales caractéristiques de cette signature sont reportées et reliées à l'hydrodynamique du mécanisme pour chaque famille. Des vidéos des différents mécanismes, associées aux figures de l'article, sont disponibles sur le site Internet de Physics of Fluids.

Le second article, soumis en juillet 2021 à la revue Applied Acoustics, propose une méthode de classification automatique des cinq familles d'événements hydrodynamiques mises en évidence, à partir de leur seul signal acoustique. A partir d'une base de données, constituée de signaux acoustiques dont la famille est identifiée grâce à la vidéo associée, les signaux des différentes familles sont analysés en détail. Des descripteurs, propres à chaque famille, sont alors extraits. Cette base de données de signaux identifiés sert de base d'apprentissage à un algorithme de «K plus proches voisins» (KNN), qui permet de classifier tout nouveau signal dans une des familles. Un taux de réussite supérieur à 80 % est obtenu suite au test de cet algorithme. Cette méthode peut ainsi permettre la reconnaissance du mécanisme de formation de la bulle à l'aide de son seul signal acoustique.

4.2 Acoustic signatures and bubble entrainment mechanisms of a drop impacting a water surface with surfactant

4.2.1 Introduction

The sound of a drop impacting a liquid surface is known to be due to the entrapment of one or several bubbles into the liquid [18, 20]. This entrapment can happen in different ways, depending on the impact speed, the droplet diameter, and the characteristics of the fluids. The different regimes of bubble entrapment are highlighted in [21].

Among these regimes, the most studied one is the so-called "regular entrainment" regime. Indeed, this regime is known to be reproducible. The bubble is entrapped soon after the initial impact, when the cavity created by the impact retracts. During the retraction, capillary waves travel downward the cavity, entrapping or not an air bubble in a pinch-off mechanism. In all cases, the capillary waves meet at the bottom of the cavity, creating a singularity that projects a very fast and thin jet above the surface [99].

Other mechanisms of bubble entrapment exist but have not been studied as much as the regular entrainment. Although, some works have been carried out on the Mesler re-

gime. It consists of the entrapment of a thin air film between the impacting droplet and the liquid bath at the time of the impact. This film of air begins to tear at some stage, leading to the creation of a multitude of microbubbles in the liquid [34, 100, 101].

The complex so-called "irregular entrainment" regime has been less studied [88, 102]. Recently, it was shown that, near the irregular entrainment zone, this regime is quite repeatable [87]. This study highlighted a new mechanism of bubble entrapment that was never described before. In fact, it consists of closing a small air cavity by a secondary droplet detached from the Rayleigh jet. When the later droplet touches the edges of the cavity, the latter closes in a zip-like flow that traps a bubble.

As all the dynamics of this phenomenon involves the volume properties of the fluid but also its interfacial characteristics, we can expect that a change in the surface tension can generate significant changes in the upper described dynamics. The phenomenon is more complex for nonconventional fluids [55].

While some studies have focused on the influence of surfactants on the impact of droplets on a solid surface [103-106] or on a liquid film, [107, 108] very few studies have been devoted, to our knowledge, to the effect of surfactants on the impact of droplets on a deep layer of liquid [44], especially for high-energy impact regimes such as irregular entrainment. It was shown, for example, that adding surfactant, does not improve the repeatability of the Mesler entrainment regime [100] but can strongly affect the morphology of the Rayleigh jet [47, 51, 79].

In particular, no studies have been reported on the influence of the surfactant on the acoustics of the droplet impact on deep layers of liquids. However, it is worth noting the remark reported in [21], that the addition of surfactant can suppress the sound of the so-called regular entrainment.

In this work, we present a study on the effect of adding surfactants into water used as a deep liquid layer on the acoustic signature following the impact of a water drop at the limit of the irregular entrainment regime zone. Thus, the hydrodynamic mechanisms inherent to the capture or excitation of an air bubble, i.e., the origin of the acoustic source, are detailed. In particular, we present five different families of events responsible

for bubble entrainment or excitation at the origin of the acoustic signal. For each family, the features of both acoustic signals underwater and in the air are described in detail.

4.2.2 Materials and methods

A distilled water drop is generated by a Ph.D. ultra syringe pump equipped with a 60 ml syringe connected to an Interchim Teflon cylindrical hose. The inside and outside diameters of the hose are 1.0 and 1.5 mm, respectively. The flow rate is set at 10 ml/h. So the droplet diameter is 3.70 ± 0.05 mm. The height of the drop release is fixed to 0.74 m from the liquid surface, so the measured speed of the impact, deduced by the footage, is about 3.32 ± 0.05 m/s.

The drop falls into a Plexiglas tank with external dimensions of $0.160 \times 0.160 \times 0.110$ m^3 and with 10 mm thick walls. It is filled until its maximum height. The tank lies on four blocks of solid polymer foam in order to reduce vibrations transmission to the tank. All the setup is fixed to a metallic structure to keep the same position between all the measurements.

The tank is filled with different solutions of a given surfactant in distilled water. We use sodium dodecyl sulfate (SDS), purchased from Fisher Scientific as an aqueous solution at 20 wt. % (Lot : 142978). About twenty SDS concentrations are tested, from 0 to 24 g/l. After each new bath with a new SDS concentration, it is left at least 20 min at rest in order to reach the equilibrium of the SDS partitioning.

For each concentration, each measure is realized once with both video and acoustic recordings, then 50 times with only the acoustic part in order to check the repeatability of the acoustic events. There is at least 20 s between two impacts in order for the bath to reach equilibrium again.

The video is recorded with a Photron FastCam SAX2 high-speed camera, equipped with a Sigma Macro 105 mm lens. The video is recorded at a sample rate of 20 000 fps. The camera is set in order to film both above and below the surface.

The acoustic signals are recorded in the air with a G.R.A.S. microphone (Type 40BP 1/4 in), connected to a G.R.A.S. preamplifier (Type 26AC 1/4 in), linked to a conditio-

ning amplifier Brüel and Kjær (Type 2690). The microphone is positioned 0.068 m from the point of impact, almost vertically to it, to leave free the path of the drop during its fall.

The acoustic signals are recorded underwater with a Brüel and Kjær hydrophone (Type 8103), connected to a conditioning amplifier Brüel and Kjær (Type 2692-0S4). The hydrophone is positioned 0.055 m from the point of impact.

All signals are recorded with a Picoscope 4262 digital oscilloscope with a sampling rate of 500 kHz. Each signal is then denoized with a spectral subtraction algorithm to reduce the background noise [82, 109].

The video and acoustic acquisitions are triggered by an infrared sensor module XCSource TE174, situated just underneath the hose and connected to an Arduino Mega card. For their processing, the acoustic signals are then time-shifted to compensate the flight times of the pressure waves, both underwater and in the air, and to synchronize them with the video footage. The origin of time is set to be the instant of the initial impact of the falling droplet on the liquid surface.

All the setup is supported by a metallic structure located in a semianechoic room with a cutoff frequency of 100 Hz. The temperature is quite constant at 19 °C.

4.2.3 Results

4.2.3.1 General behavior of drop impact with various surfactant concentrations

Fig. 4.1 shows the acoustic signals both in air and in water for different SDS concentrations. At first sight, there is no effect of the SDS concentration in the first 130 ms. However, the second part after 130 ms shows one or several acoustic events, with different starting times and temporal shapes. These acoustic events are all damped sines, characteristic of a bubble vibration.

The observation of the hydrodynamics of the interface after the initial impact helps to understand these differences.

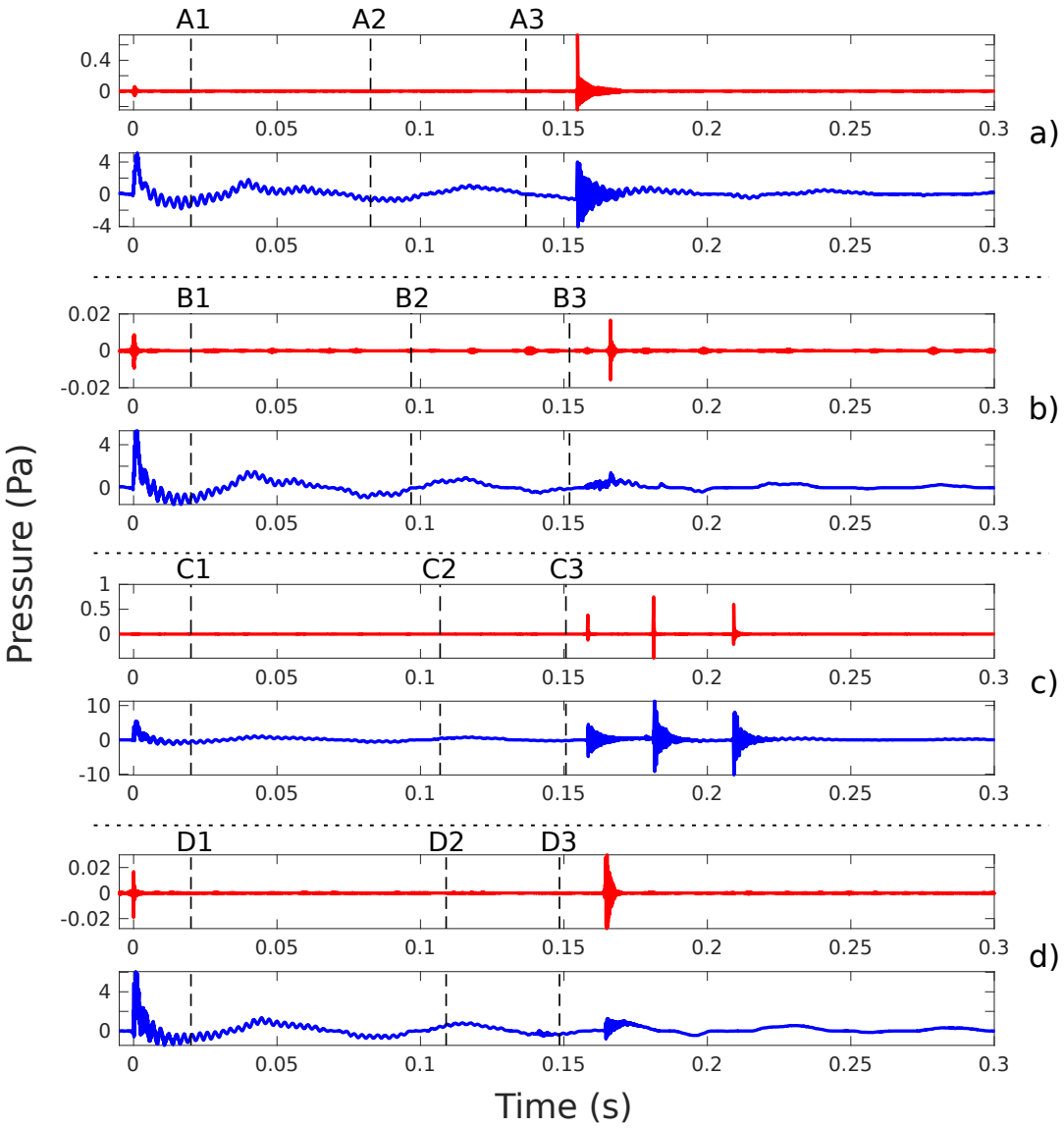

FIGURE 4.1 – Hydrophone (blue) and microphone (red) signals for a water drop impacting a water bath with SDS at a concentration of (a) 0.00, (b) 0.47, (c) 1.18, and (d) 2.00 g/l.

First of all, in the case of an impact on a distilled water surface, a cavity is formed just after the initial impact, with a crown developing above the interface at the same time. The cavity retracts and then ejects a Rayleigh jet. After the jet reaches its maximum height, it starts to collapse, detaching two secondary droplets. After the detachment of the second one, the remaining jet base collapses into the liquid, creating a small air cavity. This cavity is closed by the secondary droplet directly above, entrapping an air bubble into the liquid, and thus, generally, generating an acoustic signal. The highest secondary droplet falls later on the surface and can sometimes entrap bubbles as well. This impact regime is studied in detail in [87].

A first quick observation of the video footage (see Figs. 4.2(a)–4.2(d)) of a drop impact for different SDS concentrations shows that the addition of surfactant does not change the global succession of hydrodynamic events. Indeed, the cavity and crown are formed and then retract to eject a Rayleigh jet which collapses, entrapping bubbles. However, the size and time of these events are modified by the surfactant. The main hydrodynamic events footage (maximum development of the cavity, maximum height of the Rayleigh jet and detachment of all the secondary droplets) corresponding to each signal of Fig. 4.1 is presented in Fig. 4.2. It is clearly visible that the Rayleigh jet maximum height, its diameter, number, size, and height of detached secondary droplets change with the different surfactant concentrations. In particular, the height of the Rayleigh jet first increases with the addition of surfactant and then decreases. Nevertheless, the variation with surfactant concentration is not trivial and requires further investigation to address the effect of surfactant on the features of this hydrodynamic phenomenon.

These differences of the Rayleigh jet hydrodynamics directly influence the acoustic signal of the impact. Indeed, a higher jet takes more time to collapse and therefore leads to secondary droplets impacting later than a lower jet. So the acoustic events, created by the impacting secondary droplets, happen later. Moreover, the variation of number, size, and height of secondary droplets leads to various configurations when they impact the surface. These configurations can be more complex than in the case of distilled water, where the synchronization of the cavity created by the base of the Rayleigh jet and the right above secondary droplet leads to a bubble entrapment.

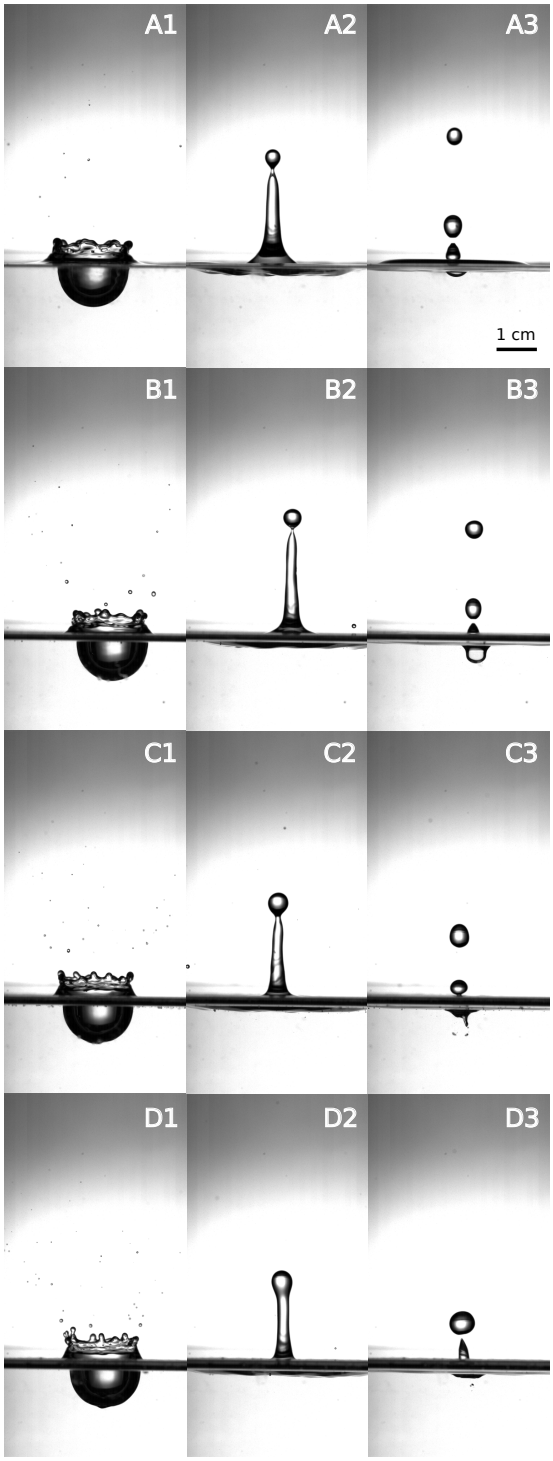

FIGURE 4.2 – Image sequences corresponding to the acoustic signals shown in Fig. 4.1. Multimedia views : https://doi.org/10.1063/5.0055361.1

It is worth noticing that, when observing 50 acoustic measurements for one configuration, the acoustic events happening at about the same time after the initial impact show a similar temporal shape. Knowing that the observed regime is quite reproducible in terms of the succession of hydrodynamic events, we can assume that the acoustic events happening at about the same time for one concentration correspond to the same bubble entrainment mechanism. Therefore, a particular bubble entrainment mechanism produces an acoustic signal with typical characteristics. This is the case in our measurements, and the different mechanisms identified with their typical acoustic signals are described hereafter.

4.2.3.2 Typical acoustic signatures of the different types of hydrodynamic events

By varying the SDS concentration on a wide range, we highlight five families of hydrodynamic events. Each of these families displays a typical acoustic signature, both in the air and underwater. A brief description of each family of hydrodynamic event and an analysis of the main features of the associated acoustic signals are given in the following.

Family 1 : Bubble pinch off The first family is called "bubble pinch off". It is similar to the well-known bubble entrainment mechanism characteristic of the regular entrainment regime, which was already reported in the literature [21, 22, 25, 30, 38, 90].

The mechanism of this bubble entrainment is shown in Fig. 4.3. An air cavity, generally created by a secondary droplet impact, starts to retract. The walls of the cavity are retracting simultaneously, while the cavity bottom is delayed (image P1). The neck created between the bottom and the rest of the cavity gets thinner as the cavity is retracting (image P2), until the bubble detaches and starts to vibrate (images P3 and P4). The recorded acoustic signals, shown in Fig. 4.4, display a damped sine typical of free vibration of the bubble.

The detached bubble radius is about 0.7 mm, which corresponds to a frequency of about 4.6 kHz according to the Minnaert formula. The damped sine main frequency, clearly visible on both hydrophone and microphone power spectra on Fig. 4.4, is in agreement with this result, taking into account that the bubble frequency must be a little higher than predicted by Minnaert because of its proximity to the interface [101]. The other peaks on the hydrophone spectrum correspond to the tank acoustic frequency response function.

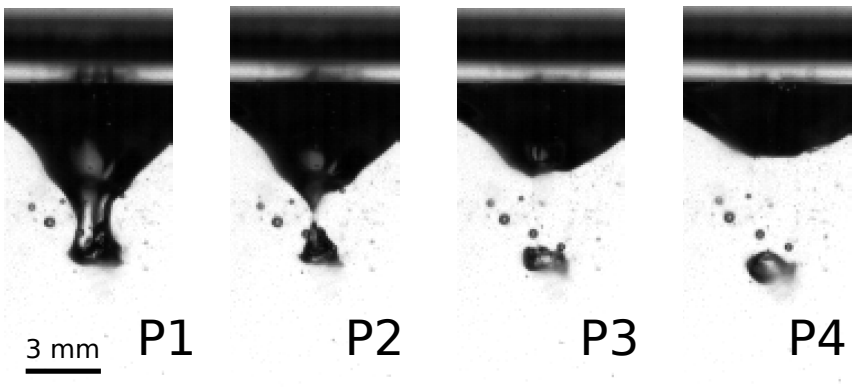

FIGURE 4.3 – Video footage corresponding to the event bubble pinch off. Multimedia view : https://doi.org/10.1063/5.0055361.5

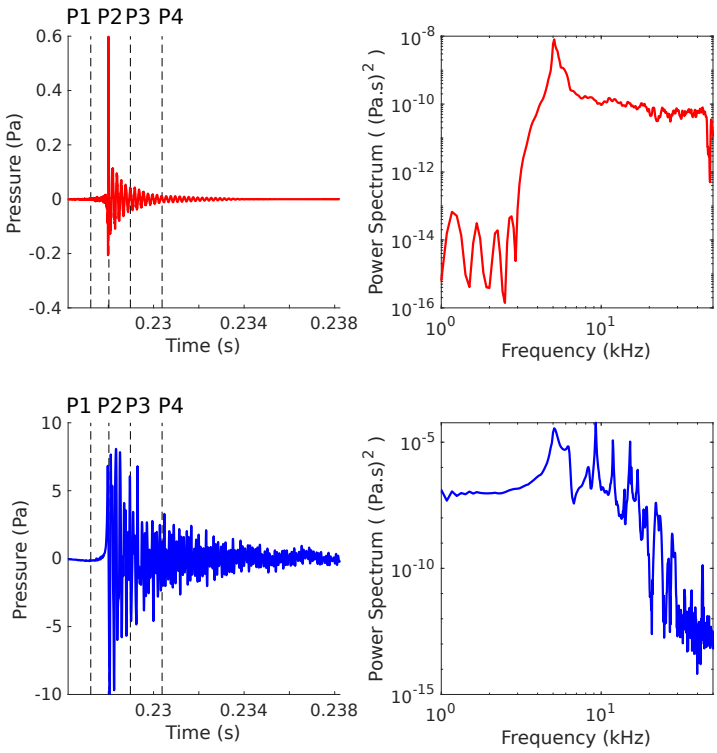

FIGURE 4.4 – Acoustic signals from a microphone (top, red) and hydrophone (bottom, blue) corresponding to the event bubble pinch off. The dotted lines mark the times when the pictures of Fig. 4.3 are taken. Left column : Time representation. Right column : Power spectra. Multimedia view : https://doi.org/10.1063/5.0055361.6

Indeed, an acoustic study of the tank used shows that its first resonance is located at about 10 kHz, which is also visible on the hydrophone power spectrum.

Family 2 : Zip-like flow The second family of hydrodynamic events corresponds to a mechanism of bubble entrainment studied in detail [87]. As shown in Fig. 4.5, it consists of a cavity, created earlier by the Rayleigh jet base collapse or a secondary droplet impact (image Z1), which is closed by an impacting secondary droplet. As this secondary droplet falls onto the cavity, it closes it with a zip-like flow (image Z2), entrapping an air bubble into the liquid (images Z3 and Z4). When the bubble detaches, its vibration generates acoustic signals (Fig. 4.6) : a damped sine typical of a bubble-free oscillation.

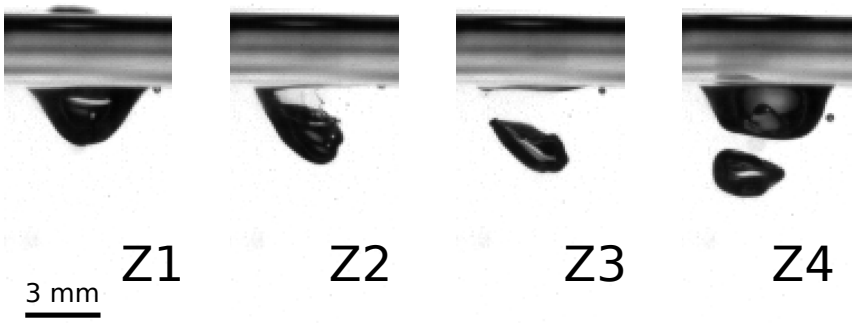

FIGURE 4.5 – Video footage corresponding to the event zip-like flow. Multimedia view : https://doi.org/10.1063/5.0055361.7

The bubble has a radius of 1.1 mm, corresponding to a frequency of about 3 kHz. Considering the bubble distortion and its proximity to the interface, its frequency is slightly higher than predicted by Minnaert. It is in agreement with the power spectra in Fig. 4.6.

Family 3 : Donut Splatch The third family of events presented is called the "donut splash." The setup is the same as the "zip-like flow", except that the secondary droplet impacts the surface later, when the cavity is almost completely retracted and begins to project a vertical jet, as shown in Fig. 4.7 (image D1) : the entrapped air volume has, therefore, a donut shape (image D2). This leads to the entrainment of several small bubbles

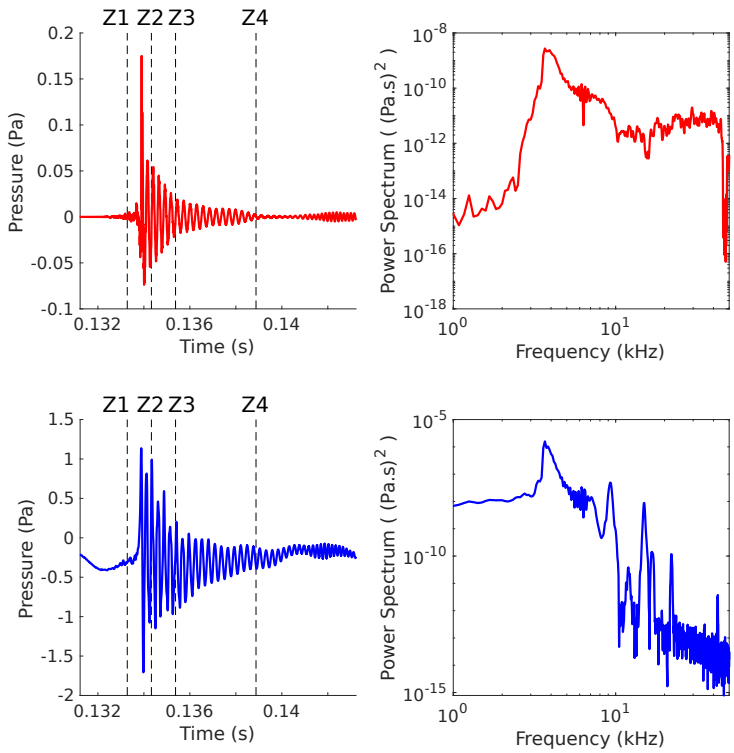

FIGURE 4.6 – Acoustic signals from microphone (top, red) and hydrophone (bottom, blue) corresponding to the event zip-like flow. The dotted lines mark the times when the pictures of Fig. 4.5 are taken. Left column : Time representation. Right column : Power spectra. Multimedia view : https ://doi.org/10.1063/5.0055361.8

instead of a large unique bubble (images D3 and D4). Even if there is only a little difference between the zip-like flow and the donut splash hydrodynamics, the differences in the acoustic signals are significant (Fig. 4.8). While the zip-like flow shows a simple damped sine both on the microphone and the hydrophone signals, the donut splash shows a mixture of several damped sines of high frequencies due to the several bubbles entrained, in addition to a rise in the mean pressure on the hydrophone signal. This rise is due to cavity retraction. Indeed, the entrapped bubbles have a radius between 0.24 and 0.34 mm, leading to frequencies between 9.5 and 13.5 kHz. These frequencies correspond to the wide peak observed on the microphone power spectrum, which is made of several wideband peaks. For the hydrophone signal, the bubbles frequency being in the same range as the first tank resonances, their peaks are merged with the tank frequency response function and are therefore hard to discern.

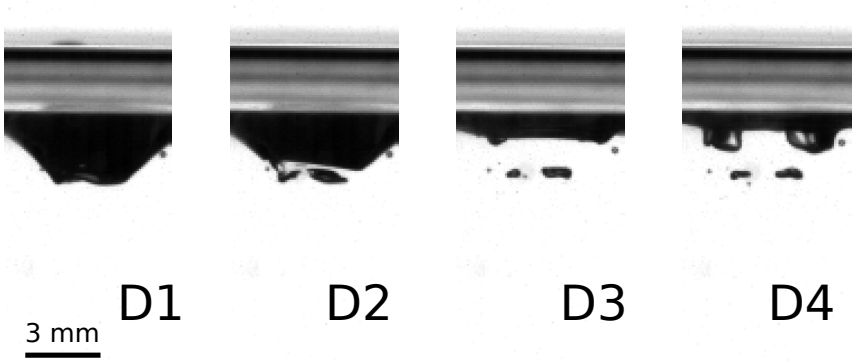

FIGURE 4.7 – Video footage corresponding to the event donut splash. Multimedia view : https://doi.org/10.1063/5.0055361.9

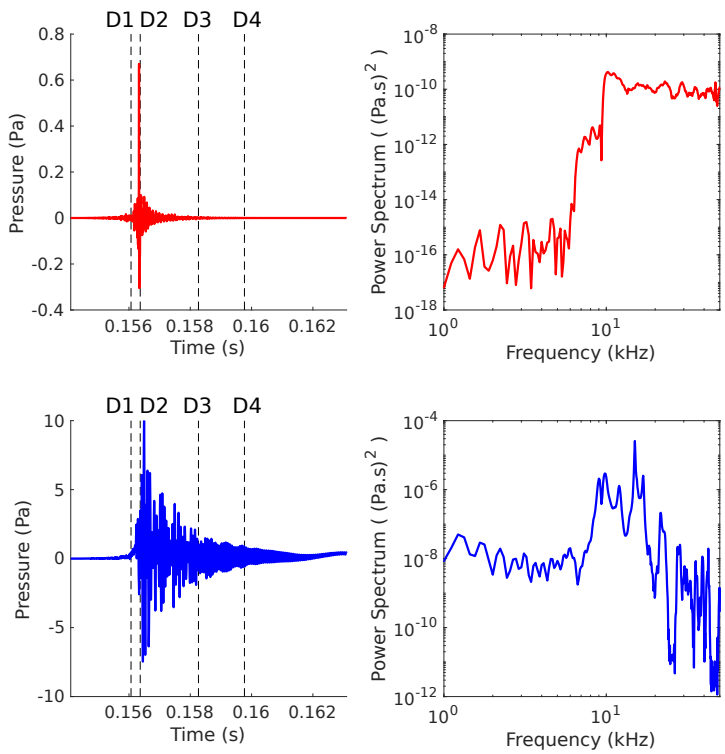

FIGURE 4.8 – Acoustic signals from microphone (top, red) and hydrophone (bottom, blue) corresponding to the event donut splash. The dotted lines mark the times when the pictures of Fig. 4.7 are taken. Left column : Time representation. Right column : Power spectra. Multimedia view : https://doi.org/10.1063/5.0055361.10

Family 4 : Mesler-Like Entrainment The fourth family of events is called the "Mesler-like entrainment," as it looks like the well-known bubble entrainment regime called "Mesler entrainment" [34, 100, 101]. The event consists of the formation of a thin air film between the liquid bath and the liquid of the impacting object, as shown on Fig. 4.9 (image M1), in a similar way that in the case of antibubble formation [110, 111]. At some point, the film tears up (images M2 and M3), creating a multitude of tiny bubbles (image M4). For the regime studied in this paper, this air film is entrained by the collapse of the Rayleigh jet base into the bath. The film can reach a great area before tearing apart. As the bubbles are detaching from the initial film, they emit damped sines. The different bubbles being detached at different times, as the tearing propagates along the film, the damped sines start at different times, as it can be seen on the hydrophone signal in Fig. 4.10. The small amplitude of the sines on the hydrophone signal and their high frequency lead to a small transmission rate through the interface, i.e., a small amplitude on the microphone signal. The image M4 shows three main bubbles, of radius above 0.35 mm, with a frequency below 10 kHz (the first peak on hydrophone power spectrum), medium bubbles of radius around 0.25 mm, of frequencies around 15 kHz (the second peak) and other little bubbles with radius below 0.15 mm, corresponding to frequencies above 20 kHz (the other peaks). It can be noticed that, compared to the other hydrophone power spectra, the tank resonances are not visible for this event. This is due to the smoothness of the event, which does not create an excitation in the bandwidth corresponding to the frequency range of the tank resonances.

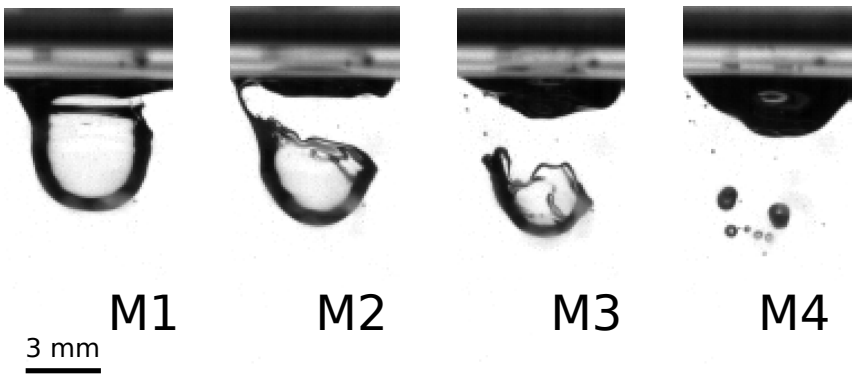

FIGURE 4.9 – Video footage corresponding to the event Mesler-like entrainment. Multimedia view : https://doi.org/10.1063/5.0055361.11

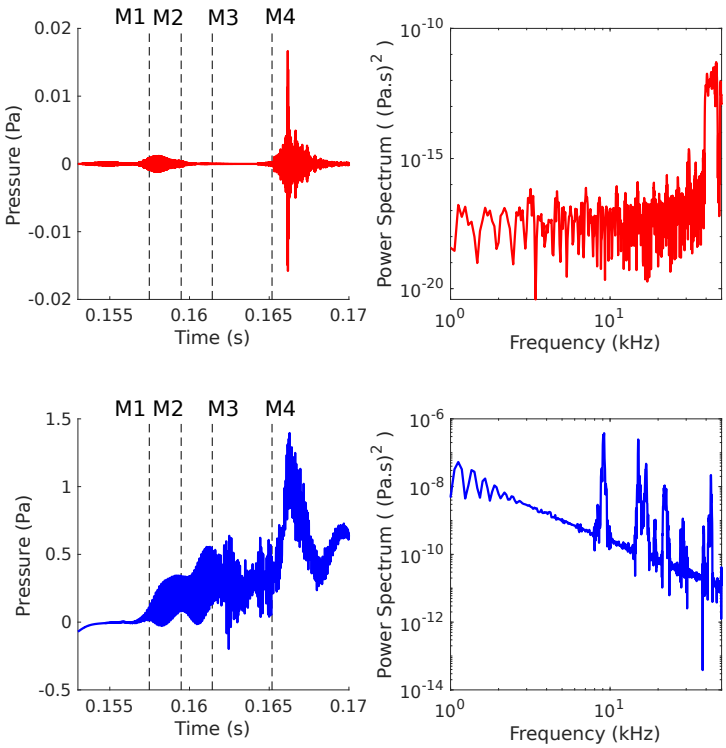

FIGURE 4.10 – Acoustic signals from microphone (top, red) and hydrophone (bottom, blue) corresponding to the event Mesler-like entrainment. The dotted lines mark the times when the pictures of Fig. 4.9 are taken. Left column : Time representation. Right column : Power spectra. Multimedia view : https://doi.org/10.1063/5.0055361.12

Family 5 : Touched Bubble The fifth family of events is more anecdotal, as it is rarer than the other ones. It is named "touched bubble." This family of events does not involve bubble entrainment, as the bubble is created before and already exists in the bath and is at rest, as shown on Fig. 4.11 (image T1). If the bubble is still near the interface, the bottom of a cavity can reach it and start to merge with it. Before the bubble is absorbed by the cavity, the cavity retracts (images T2 to T4), detaching from the bubble and so making it vibrate again. As a consequence, the acoustic signal for this event is the one of a vibrating bubble, i.e., a damped sine close to Minnaert frequency (Fig. 4.12). In addition, the hydrophone signal shows an abrupt rise and fall of the mean pressure, due to the abrupt cavity retraction. The bubble excited here has a radius of 0.5 mm, corresponding to a frequency of about 6 kHz, which is in agreement with the peak visible on the hydrophone power spectrum. The bubble vibrations being of quite low amplitude and the bubble being far from the interface, no acoustic signal is recorded on the microphone.

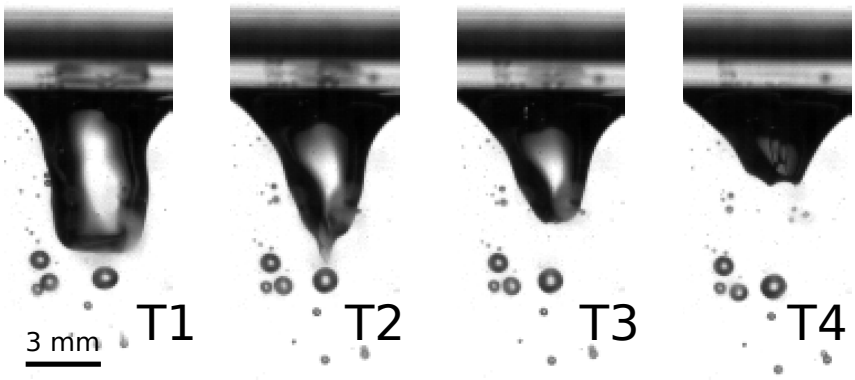

FIGURE 4.11 – Video footage corresponding to the event touched bubble. Multimedia view : https://doi.org/10.1063/5.0055361.13

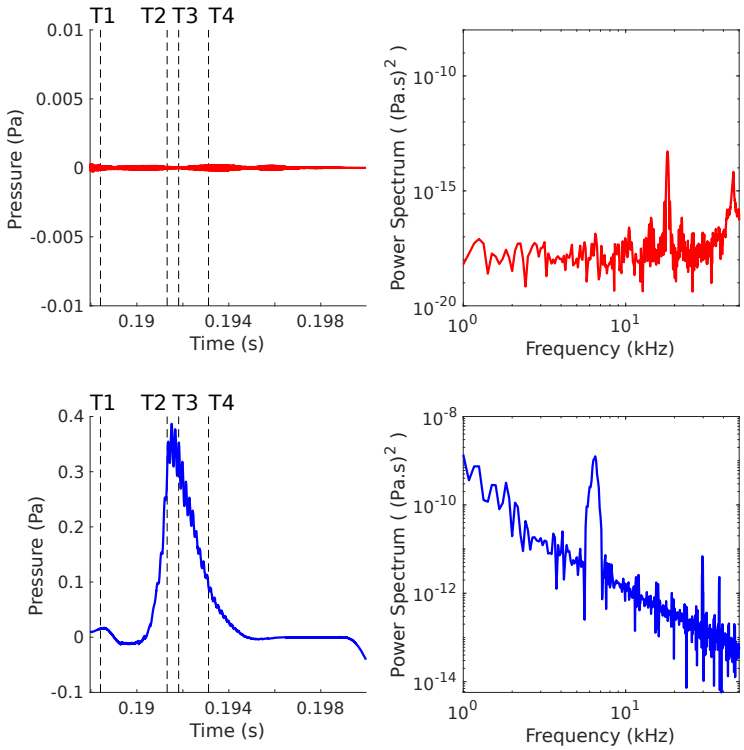

FIGURE 4.12 – Acoustic signals from microphone (top, red) and hydrophone (bottom, blue) corresponding to the event touched bubble. The dotted lines mark the times when the pictures of Fig. 4.11 are taken. Left column : Time representation. Right column : Power spectra.Multimedia view : https://doi.org/10.1063/5.0055361.14

4.2.4 Discussion

This work allows us to identify different hydrodynamic events and their associated acoustic signatures that can happen during a water drop impact on a water bath after the addition of surfactant. Under fixed impact conditions, located near the irregular entrainment regime, the addition of surfactant enriches the observable hydrodynamic events compared to pure water.

The fine analysis of the hydrodynamic flows and the associated acoustic signals, in water and in the air, helps us to identify five families of hydrodynamic events over a wide range of SDS concentrations from 0 to 24 g/l.

Each family displays a typical acoustic signal, both on the microphone and on the hydrophone. As signals from the same family display similar temporal shapes, we could classify them by extracting discriminant descriptors. Here, we compare three basic descriptors for classifying the five families :

— The signal main frequency, which corresponds to the frequency of the maximum of the hydrophone power spectrum.
— The ratio of hydrodynamic pressure energy over the total energy of the hydrophone signal. The hydrodynamic pressure variations, which are due to the liquid flows, are extracted from the signal with a low-pass filter, with a cutoff frequency of 250 Hz. Indeed, as the variations of hydrodynamic pressure are much more slower than the bubble vibrations, it is then easy to separate the two contributions.
— The ratio of microphone signal energy over the hydrophone one.

These descriptors are given in Fig. 4.13. All of the families presented above are represented, except for the touched bubble family, which is only seen once in this set of measurements. The measurements show a great variability of these descriptors for a same family. Indeed, even with similar initial conditions, the hydrodynamics of the Rayleigh jet is so sensitive to little perturbations that the size of the bubble entrapped via the same mechanism can vary a lot, as it was observed before for the case of zip-like flow in [87]. The boundaries of the different families are not straightforward as a function of SDS concentration neither. However, the data indicate the following trends :

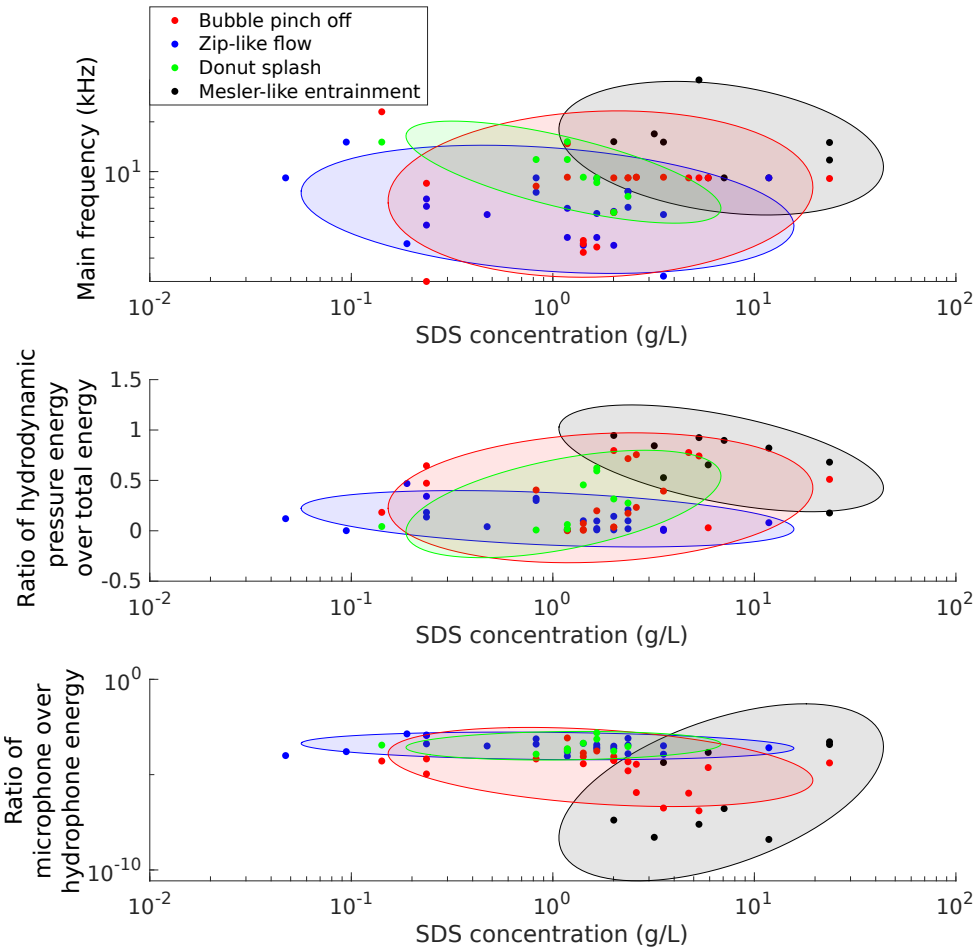

FIGURE 4.13 – Descriptors for all the acoustic events detected during drop impact on water bath with various SDS concentrations. The ellipses show the dispersion of each family with a 90% confidence interval error.

— When looking at the dispersion along the x-axis, all the families are visible globally on the whole range of concentrations except for the Mesler-like entrainment, which is only visible for concentrations above 1g/l. This can be due to the fact that high concentrations of surfactant help to develop the air film trapped that leads to a Mesler-like entrainment event by stabilizing it.

— While the zip-like flow and the bubble pinch-off families display a wide range of bubble sizes, i.e., of frequencies, the donut splash and Mesler-like entrainment families display only high-frequencies, i.e., small bubbles. It is understandable,

considering that these two mechanisms involve the decomposition of an air volume into several small bubbles.

— As the bubble acoustic energy is always dominant over the hydrodynamic pressure energy for the zip-like flow family, it is the opposite for the Mesler-like entrainment. The other two families exhibit rather diverse values for this parameter.

— When zip-like flow and donut splash sounds show a great transmission ratio across the interface, bubble pinch off and Mesler-like entrainment show lower ones. This can be due to the greater depth at which the bubbles are entrained for these two families, associated with higher frequencies, as it is known that these two parameters play a major role concerning the transmission of sound through the interface [95].

The great dispersion of these three descriptors for each family and the great overlap between several families show that these basic descriptors are not enough to identify an acoustic event family without an associated video. However, a more detailed study of the acoustic signals could lead to the identification of main characteristics typical to each family, which could help to identify them without the help of a camera.

4.2.5 Conclusion

A water drop impact on a water surface for the regime used in this study shows only one main acoustic event, due to a bubble entrainment via a zip-like flow mechanism. The addition of surfactant to the water bath changes some aspects of hydrodynamic flow, especially seen on the Rayleigh jet dynamics that causes bubble entrainment via different mechanisms while collapsing.

For the SDS concentrations presented in this study, four mechanisms of bubble entrainment are identified. They all induce an acoustic emission in the form of a damped sine, but with various temporal shapes and features. Another mechanism leading to an acoustic emission is also identified, although it is not a bubble entrainment mechanism. These five families of hydrodynamic events exhibit similar acoustic signal shapes inside the same family. It is, therefore, possible to identify them only with their acoustic signature. The combination of the acoustic signals, both in air and in water, allows to better understand the acoustic signature of the hydrodynamic phenomena generated by the impact of the drop on the water surface.

However, the variability of hydrodynamic flow for the same mechanism leads to an appreciable variability in the features of the acoustic signal. Thus, the acoustic signals for one family cannot be easily distinguished from other families using basic descriptors, such as the signal main frequency, for example. When combining these three descriptors in a k-nearest neighbors algorithm [112], the maximum performance is 55% of correct recognition. Therefore, a deeper analysis of the signals is necessary to identify the common features inside a family and the differences between them. Moreover, the behaviors reported in this study would deserve more investigation to better understand these mechanisms.

4.3 Automatic classification of hydrodynamic phenomena using their acoustic signature : the example of bubble entrainment during a drop impact

4.3.1 Introduction

Fast hydrodynamic events can generate a sound, like bubble bursting [113] or liquid boiling [114]. This sound can carry important information about the hydrodynamic events, and thus can be used to better understand their unfolding [2]. Indeed, even if the development of high-speed cameras allows today to observe in detail fast mechanisms, the setting up of this kind of measures is costly, not always possible and the generated data are heavy. On the contrary, acoustic measures are easy to set up and the generated data are easy to store. Moreover, the use of machine learning algorithms allows great performances for the classification of passive acoustic emissions [115, 116]. The detection and recognition of hydrodynamic events thanks to their emitted acoustic signature can therefore be useful for environmental [117], geological [118] or even structure damage studies [119].

A liquid drop impacting a liquid surface is a fast hydrodynamic event that produces a recognizable sound. This sound is mostly due to bubbles vibration after their entrapment in the liquid [20]. This entrapment can happen at different times after the impact and in different ways, depending on the drop size and its height of fall [21]. The different impact regimes highlighted are generally associated with a typical bubble entrainment mechanism, like the *regular entrainment* and its pinch off mechanism [5, 21-28], the Mes-

ler entrainment and its air film entrapment [31, 32, 34] or even the *irregular entrainment* regime and its bubble entrapment by a secondary droplet [38, 39], with a zip-like flow mechanism described in detail in [87]. The identification of the bubble entrainment mechanism involved during a drop impact can thus lead directly to the impact initial conditions when these are not easily accessible, like in the case of rain studies [5]. Even if acoustic methods for bubbles detection already exist [120, 121], they are not able to identify the mechanism of the bubble formation.

Recently, it was shown that for the *irregular entrainment* regime, the addition of surfactant to the water bath leads to different bubble entrainment mechanisms during the Rayleigh jet collapse [98]. Some of these mechanisms are similar to those observed usually for different impact regimes. More specifically, five mechanisms are reported, including four different bubble entrainment mechanisms and one bubble excitation mechanism. Each mechanism exhibits a typical acoustic signature. However, these acoustic signatures can not be classified automatically by using simple signal features. Thereafter, we call family the set of signals produced by the same mechanism.

In this paper, we propose a deeper study of the acoustic signatures of the different hydrodynamic mechanisms, reported in [98], induced by a drop impact on a liquid pool of various solutions, for the impact regime with bubble entrapment by a secondary droplet described in [87]. This first step will allow to develop an algorithm capable of identifying the hydrodynamic mechanism involved from its acoustic signal alone. In this regard, a more detailed analysis of the common features of the acoustic signal inside the same family is presented. Signal processing tools are then used to extract these typical features from any acoustic signal, in order to obtain a relevant learning base for a classification algorithm. This learning base is then tested with the K-nearest neighbors classification method. The encouraging results obtained are finally analyzed to highlight the possible improvement of the algorithm.

4.3.2 Materials and methods

The measurements used for the algorithm training base come from configurations with different kinds of solutions. However, the measurement set-up shown in Fig. 4.14 is the same for all.

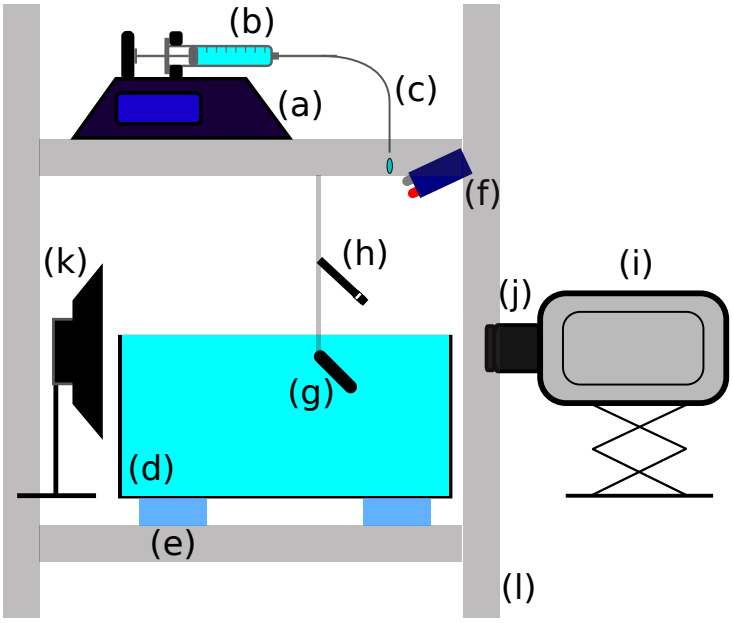

FIGURE 4.14 – Drawing of the experimental set up : a) syringe pump, b) syringe, c) hose, d) tank, e) blocks of solid polymer foam, f) infrared sensor, g) hydrophone, h) microphone, i) high-speed camera, j) lens, k) LED lamp, l) metallic structure.

A drop is generated by a PhD Ultra syringe pump (a) equipped with a 60 mL syringe (b) connected to an Interchim Teflon cylindrical hose (c). The hose's interior and exterior diameter are 1 mm and 1.5 mm respectively. The flow rate is set at 10 mL/h. The drop is made of distilled water or the same solution as is the tank. So the drop diameter is situated between 2.60 and 3.70 $\pm$ 0.05 mm because of the surface tension of the different solutions. The height of the drop released is fixed to 740 mm from the liquid surface, so the measured speed of the impact, deduced by the footage, is between 3.32 and 3.40 $\pm$ 0.05 m/s.

The drop falls into a Plexiglas tank (d) with external dimensions of $160 \times 160 \times 110$ mm^3, with 10 mm thick walls. It is filled until its maximum height. The tank lays on four blocks of solid polymer foam (e) to reduce external vibrations transmission to the tank.

The tank is filled with different aqueous solutions of sodium dodecyl sulfate (SDS), polyoxyethylene lauryl ether (Brij-35), ethanol and glycerol, all with various concentrations. For each concentration, measures are made with a distilled water drop and a bath's liquid drop.

The acoustic and video acquisitions are triggered when the passage of the drop is detected by an infrared sensor module XCSource TE174 (f), situated just underneath the hose and connected to an Arduino Mega card. The origin of time is set to be the instant of initial impact of the falling droplet on the liquid surface.

The acoustic signal is recorded underwater with a Brüel& Kjaer hydrophone (Type 8103) (g), connected to a conditioning amplifier Brüel and Kjaer (Type 2692-0S4). The hydrophone is positioned about 50 mm from the point of impact.

The acoustic signal is recorded in the air with a G.R.A.S. Type 40BP 1/4 in. microphone (h), connected to a conditioning G.R.A.S. Type 26AC 1/4 in. preamplifier, linked to a conditioning amplifier Brüel and Kjær Type 2690. The microphone is positioned about 80 mm just above the point of impact.

All signals are recorded with a Picoscope 4262 digital oscilloscope with a sampling rate of 500 kHz.

A video of the interface is recorded by a high-speed camera Photron FastCam SAX2 (i) equipped with a Sigma Macro 105 mm lens (j). A 50 W RS Pro LED lamp is used to backlight the experiment (k). The video acquisition is made at a sample rate of 20 000 fps.

The all set-up is supported by a metallic structure (l) located in a semi-anechoic room with a cut-off frequency of 100 Hz. The temperature is quite constant around 19°C.

Each signal is denoised with a spectral subtraction algorithm to reduce the background noise [82, 84].

The different acoustic events are detected with a Python algorithm based on a local energy maxima detection. It uses a sliding window along the signal to calculate the local energy. The local maxima of energy are then detected with the `find peaks` function of *Scipy* [122]. These maxima correspond to the initial impact and the beginning of each acoustic event. The acoustic events are then extracted with a window that starts 2 ms before and ends 10 ms after the detected starting time. Thus, each considered signal of

acoustic event has the same length. As no dependence of the acoustic events signal on the liquid properties is observed, the events extracted from all the configurations are gathered in one database.

4.3.3 Acoustic signals of the the different classes

For the studied drop impact regime, the unfolding sequence of hydrodynamic events is mainly the same. As shown in Fig. 4.15, at the initial impact of the drop (a), a large hemispherical cavity expands in the liquid, while a liquid crown rises above the surface (b). When the cavity reaches its maximum depth, it starts to retract, as well as the crown starts to collapse. This leads to the projection of a liquid jet, called Rayleigh jet, upwards above the surface (c). After reaching its maximum height, this jet collapses. During this process, one or more droplets of various sizes, called *secondary droplets*, may break off and subsequently fall back onto the surface of the liquid (d). As reported in the literature, the entrainment of bubbles, responsible for acoustic emissions, is generally caused for this regime by the impact of these *secondary droplets* [21, 39, 87]. For the example in Fig. 4.15, bubble entrainment happens at images (e) and (g), when respectively SD3 and SD2 impact the disturbed liquid surface, and no bubble is entrained by the impact of SD1 (h).

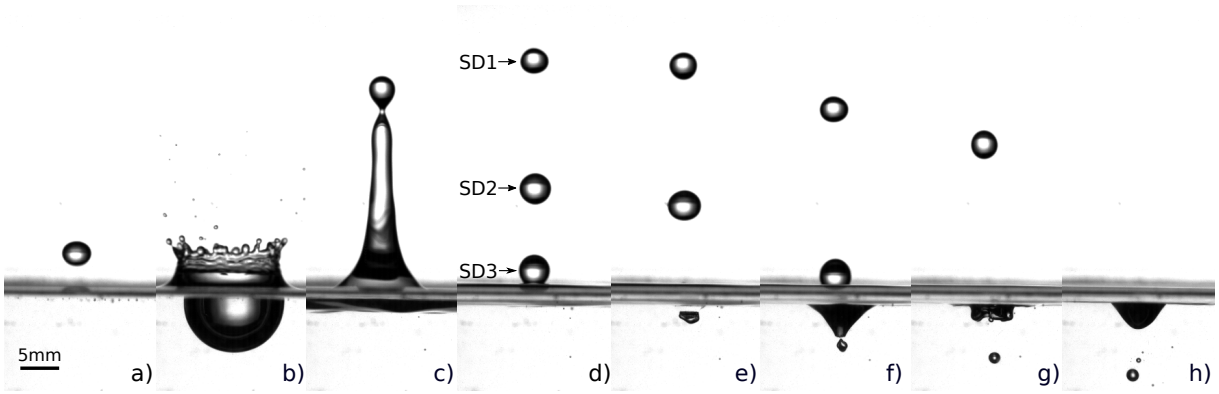

FIGURE 4.15 – Succession of the main hydrodynamic events after a water drop impact on a surface of an aqueous solution of SDS at 240 mg/L. Considering $t = 0$ the time of the initial impact, the images are taken at times $t = -1.3$ ms (a), $t = 6.9$ ms (b), $t = 80.4$ ms (c), $t = 135.4$ ms (d), $t = 141.6$ ms (e), $t = 158.5$ ms (f), $t = 168.3$ ms (g) and $t = 212.4$ ms (h). SD1, SD2 and SD3 are respectively the first, second and third secondary droplets to detach from the jet.

The modification of the liquid surface tension induces changes to the Rayleigh jet height and dynamics. This leads to the detachment of a different number of secondary droplets, with various sizes, heights and times of detachment. Therefore, the successive impacts of the secondary droplets is changed, which brings about new bubble entrainment and excitation mechanisms, with typical acoustic signatures, not observed with pure water. From the measurements with various solutions, five different families are identified [98]. They correspond to five different types of hydrodynamic events involving the vibration of one or several bubbles, shown in Fig. 4.16, and typical acoustic signals in air and in water are given in Fig. 4.17, with the corresponding power spectra shown in Fig. 4.18. As a vibrating bubble emits a damped sine at a frequency depending on its size [59], the acoustic signatures are quite alike. However, some differences are noticeable and allow their identification. The hydrodynamics of the different mechanisms, as well as their acoustic signature, are described in detail in [98]. A brief description of the different families is given below.

— **Mesler-like entrainment (MLE)** : an air film is entrapped between a falling liquid volume of the Rayleigh jet base and the rest of the bath (Fig. 4.16-a), decomposing then into a multitude of tiny bubbles. Therefore, when it is present, it is always the first acoustic event visible on the signal. The hydrophone signal is made of several overlaid damped sines with high frequencies and low amplitudes, as shown in Fig. 4.18-a. Only a very low amplitude signal (or no signal at all) is visible on the microphone signal, as shown in Fig. 4.17-a.

— **Zip-like flow (ZLF)** : a secondary droplet falls onto an air cavity (Fig. 4.16-b), detaching a bubble in a zip-like flow mechanism. The resulting signal is a single damped sine both for the microphone and the hydrophone, as shown in Figs. 4.17-b and 4.18-b. In addition, the microphone signal displays a particular pattern, made of a pressure decrease followed by a sharp rise, just before the beginning of the oscillations. This pattern is typical of the ZLF airborne signature, as described in a previous study [87].

— **Bubble pinch off (BPO)** : a small volume of air detaches from the bottom of a cavity by a pinch off mechanism (Fig. 4.16-c). The resulting signal is a single damped sine both for the microphone and the hydrophone, as shown in Figs. 4.17-c and 4.18-c.

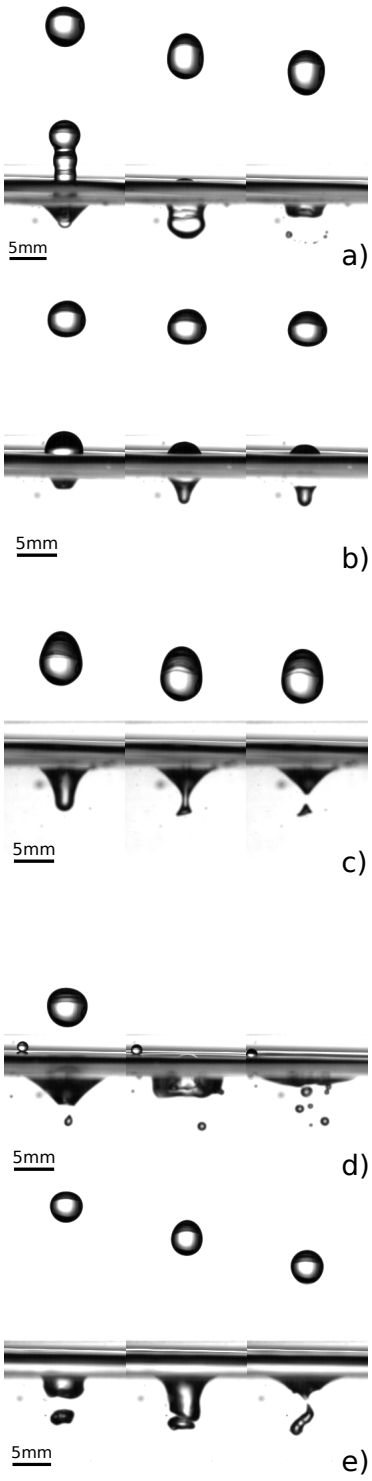

FIGURE 4.16 – Images of the different bubble entrainment mechanisms, from measures of a water drop impact on a aqueous solution of CTAB at various concentrations : a) MLE (328 mg/L), b) ZLF (230 mg/L), c) BPO (443 mg/L), d) DS (279 mg/L) and e) TB (115 mg/L).

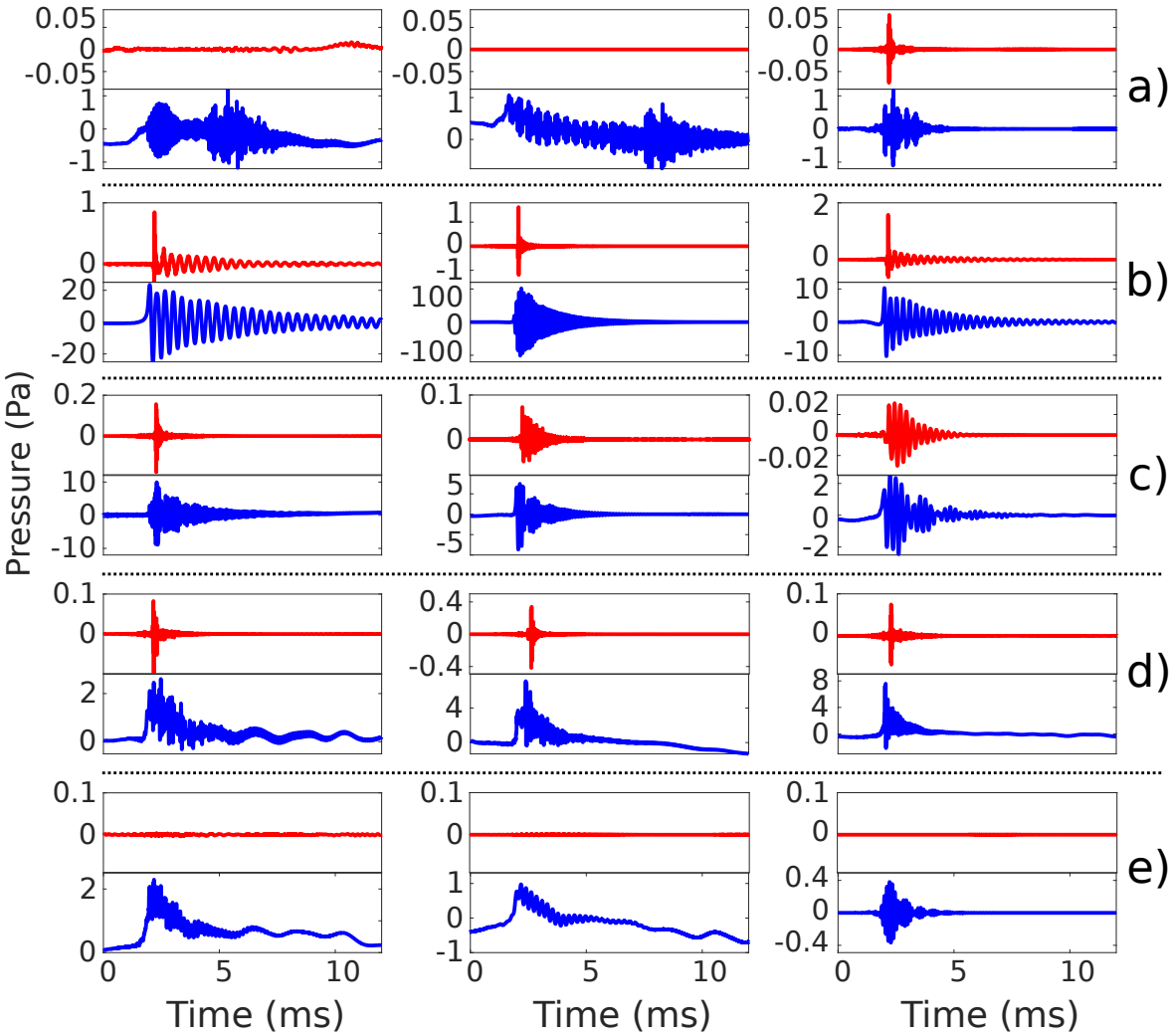

FIGURE 4.17 – Examples of typical microphone (red, top) and hydrophone (blue, bottom) signals from a Mesler-like entrainment (a), a zip-like flow (b), a bubble pinch off (c), a donut splash (d) and a touched bubble (e).

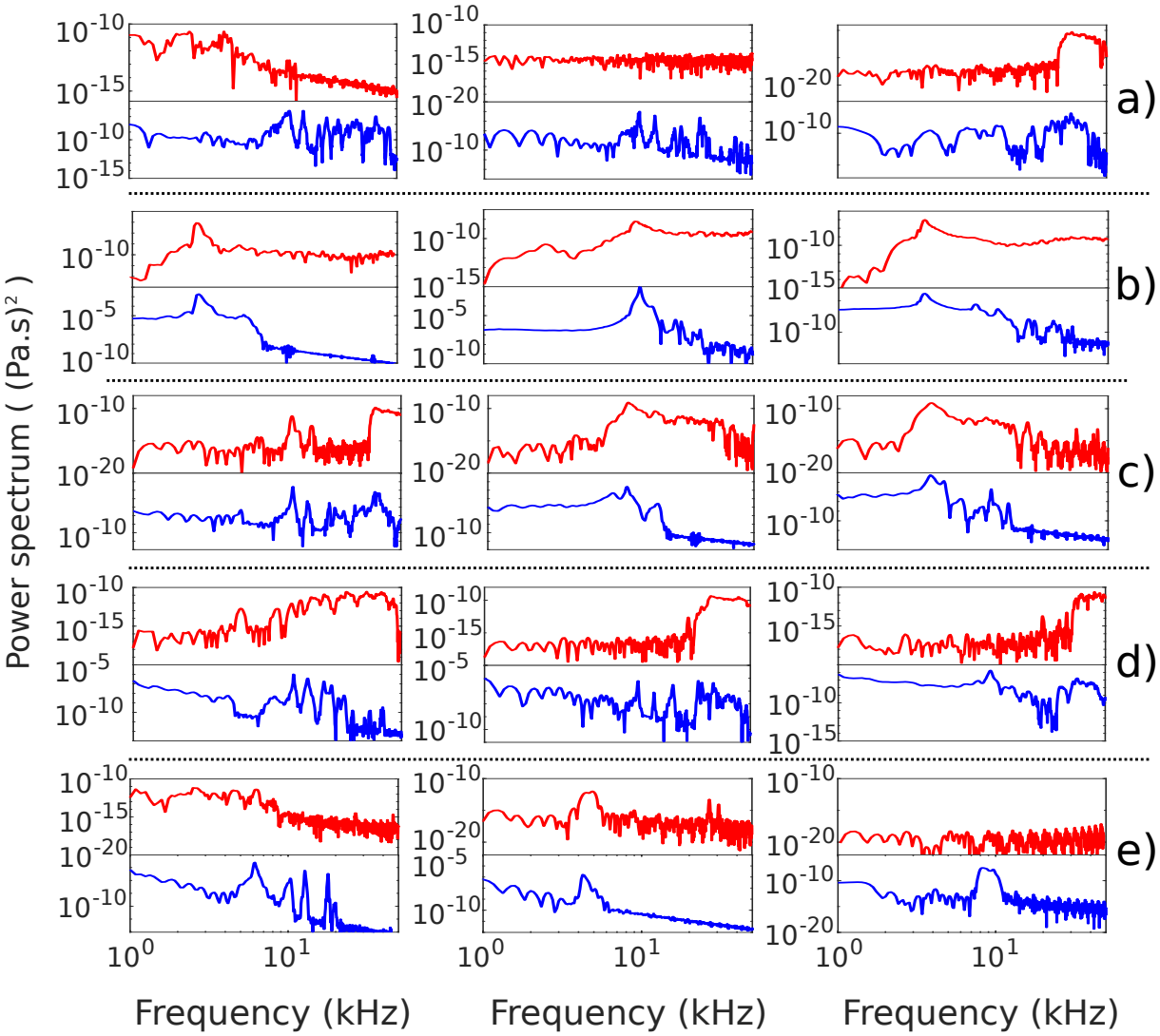

FIGURE 4.18 – Examples of power spectra of typical microphone (red, top) and hydrophone (blue, bottom) signals from a Mesler-like entrainment (a), a zip-like flow (b), a bubble pinch off (c), a donut splash (d) and a touched bubble (e).

— **Donut splash (DS)** : a secondary droplet falls onto a retracting cavity (Fig. 4.16-d), detaching a toroide shaped air volume, which then breaks into several smaller bubbles. The corresponding acoustic signal is generally made of several overlaid damped sines, with different frequencies, corresponding to the emission of the different bubbles (Fig. 4.18-d). A local rise of the mean pressure can also be observed on the hydrophone signal, due to the cavity retraction, as shown in Fig. 4.17-d.

— **Touched bubble (TB)** : a bubble at rest in the liquid is reached by a cavity (Fig. 4.16-e). As both begin to merge, the cavity rapidly retracts, producing the bubble vibration. The hydrophone signal shows a single damped sine (Fig. 4.18-e), generally with a rise of the mean pressure due to the cavity retraction, as shown in Fig. 4.17-e. The microphone signal generally does not show any event.

4.3.4 Signal descriptors

The selection of relevant descriptors to discriminate the different classes is an essential part of the signal classification. Here, we call class the output of the classification algorithm that may or not correspond to a so-called family. The main difficulty for the signals considered in this study is the great variability of basic signal features inside a same family. Indeed, as the bubbles size and the condition of the bubble entrapments are various even for a same mechanism, the corresponding damped sines display various frequencies, amplitudes and damping times. It is thus not possible to discriminate the signals only based on these basic features.

Another difficulty for the signals considered in this study is their similarity. Indeed, as all the signals correspond to bubble vibration, they are made of one or several damped sines with various frequencies. Their differences are quite subtle, but discernible by sight.

A set of relevant descriptors is proposed. Their identification comes from the observation of the temporal shape of the different signals, as well as the hydrodynamic behaviours of both the bubble and the liquid surface during the acoustic emission. Indeed, the different hydrodynamic events responsible for the bubble excitation, specific to each family and easily observable on the video, can lead to different signatures visible on the acoustic signals. For example, the liquid flows, mostly induced by the dynamics of the cavity just above the bubble, lead to variations of the local hydrodynamic pressure, which are recorded by the hydrophone as low frequency variations of the local mean pressure. The cavity

dynamics being typical to the bubble excitation mechanism, i.e. to the family considered, these variations carry essential information for the signal classification.

To calculate the descriptors needed for the classification, different processes are applied to the signals. Thus, the hydrophone signals are decomposed into both an acoustic and an hydrodynamic contributions, by filtering the low frequency component, corresponding to variations of the local pressure due to the different liquid flows, i.e. the hydrodynamic contribution. The low-pass filter used to extract the hydrodynamic pressure part is a FIR filter with a cutoff frequency of 2 kHz. The acoustic part is extracted by a FIR band-pass filter, with cutoff frequencies of 2 and 80 kHz, as no damped sine with a frequency outside of this band is observed in our measurements. Thus, the hydrodynamic pressure variations are removed, as well as high-frequency noise, leaving only the acoustic signal generated by the bubble. An example of an acoustic signature, decomposed into the hydrodynamic and the acoustic contribution, is shown in Fig. 4.19. In the following, it is specified from which signal each descriptor is extracted (low-pass, band-pass or, if no indication, the raw signal).

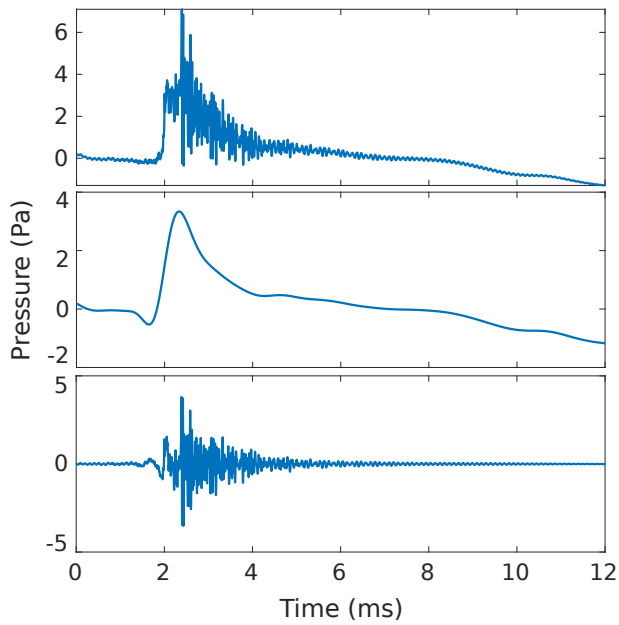

FIGURE 4.19 – Typical hydrophonic signal of a DS event (top), with the hydrodynamic contribution extracted with a low-pass filter (middle) and the acoustic contribution extracted with a band-pass filter (bottom).

The selected descriptors are based on features of the temporal shape of signals, as well as their frequency content and the energy of both acoustic and hydrodynamic contributions. Their definition is detailed hereafter. We respectively note $x^{(h)}[n]$ and $x^{(m)}[n]$ the discrete-time (DT) hydrophone and microphone signals. For the hydrophone signal, we also use the subscripts LP and BP, respectively for low-pass (hydrodynamic contribution) and band-pass (acoustic contribution). Lastly, the number of points used for calculating the descriptors is noted N.

4.3.4.1 Main frequency of the hydrophone signal

The main frequency $F_{main}^{(h)}$ of the hydrophone signal is defined as the frequency corresponding to the maximum of $P_{x_{BP}^{(h)}}(F)$, the power spectrum of $x_{BP}^{(h)}[n]$, defined as :

$$P_{x_{BP}^{(h)}}(F) = \left(T_s \sum_{n=0}^{N-1} x_{BP}^{(h)}[n] e^{-j2\pi F n T_s} \right)^2, \tag{4.1}$$

with $T_s = 1/F_s$ the sampling period, N the number of points and $x_{BP}^{(h)}[n]$ the band-pass filtered hydrophone signal. A simple detection of maximum is then used to extract $F_{main}^{(h)}$.

Even if the main frequency shows a rather important dispersion inside a same family, it carries a useful information concerning the size of the involved bubbles. Thus, as the MLE and the DS families involve rather small bubbles, the main frequency of the signal of these two families is assumed to be high ($>$ 10 kHz) compared to the other families.

4.3.4.2 Microphone signal standard deviation

The microphone signal standard deviation $x_{std}^{(m)}$ is defined as :

$$x_{std}^{(m)} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{n=0}^{N-1} (x^{(m)}[n] - \bar{x}^{(m)})^2}, \tag{4.2}$$

with $x^{(m)}[n]$ the microphone signal and $\bar{x}^{(m)}$ its mean.

This descriptor is linked to the signal amplitude and its shape. The microphone signal amplitude depends on the bubble amplitude of the signal in water, as well as on its frequency and the distance of the bubble from the interface [87]. Thus, this descriptor is

expected to display high values for ZLF, medium values for BPO and DS, and low values for MLE and BT.

4.3.4.3 Number of peaks in the power spectrum of the microphone signal

The number of local maxima of the microphone signal power spectrum $P_{x^{(m)}}(F)$ is estimated. The local maxima are detected with the function `find peaks` from the Python software *Scipy* [122]. The minimum height for the peak to be detected is set to 0.1 % of the power spectrum maximum value, and the minimum prominence is set to 10 % of the power spectrum maximum value. The peaks on the power spectrum correspond to the resonance frequencies of the bubbles. The number of peaks is expected to be low, even close to one, for ZLF, BPO and TB families, as they involve only one bubble, i.e. one frequency. On the contrary, it is expected to be higher for the DS and MLE families as multiple bubbles are entrained.

4.3.4.4 Number of peaks in the power spectrum of the hydrophone signal

This descriptor is of the same nature as the former one, but for the hydrophone signal. The local maxima of the power spectrum $P_{x^{(h)}}(F)$ are detected in the same way as for the microphone signal, with the same parameters.

As multiple bubbles are created for the MLE and the DS families, a large number of peaks is expected to appear on the power spectrum. However, the number of peaks for MLE is expected to be much higher than for the microphone signal, as a lot of small bubbles are entrained deep under the surface so their acoustic emission is not measured in the air. The other families are expected to show a low number of peaks as only one bubble is involved.

4.3.4.5 Part of the acoustic energy in the total hydrophone signal

The energy of the different hydrophone signals may be calculated. We respectively note $E_{x^{(h)}}$ and $E_{x^{(h)}_{BP}}$ the energies of the raw hydrophone signal and the band-pass filtered one. We then define R_E the part of the acoustic energy in the whole energy of the hydrophone signal, as :

$$R_E = \frac{E_{x_{BP}^{(h)}}}{E_{x^{(h)}}}, \tag{4.3}$$

$$E_{x_{BP}^{(h)}} = T_s \sum_{n=0}^{N-1} \left(x_{BP}^{(h)}[n]\right)^2, \tag{4.4}$$

$$E_{x^{(h)}} = T_s \sum_{n=0}^{N-1} \left(x^{(h)}[n]\right)^2, \tag{4.5}$$

$$\tag{4.6}$$

with N the number of points of the signal and T_s the sampling period.

This descriptor is expected to display values close to one for ZLF and BPO families, as the bubbles created in this cases emit an high amplitude signal and the variations of hydrodynamic pressure are quite low. It is however expected to be quite low for the other families.

4.3.4.6 Filtered hydrophone signal amplitude ratio

The filtered hydrophone signal amplitude ratio $Fsar^{(h)}$ is defined as the ratio of the maximum of amplitude of the low-pass filtered hydrophone signal $x_{LP}^{(h)}[n]$ over the maximum of amplitude of the band-pass filtered hydrophone signal $x_{BP}^{(h)}[n]$:

$$Fsar^{(h)} = \frac{\max(x_{LP}^{(h)}[n])}{\max(x_{BP}^{(h)}[n])}. \tag{4.7}$$

This descriptor is mainly linked to the dynamics of the cavity. Indeed, each of the excitation mechanisms of a bubble presented in section 4.3.3 involves a cavity. This cavity dynamics is responsible for variations of the hydrodynamic pressure [98]. As this cavity develops, the hydrodynamic pressure decreases. Then, when the cavity retracts, the pressure rises until a maximum. The maximum of pressure can display an high amplitude, especially for a high retraction speed. Thus, this descriptor compares the contribution of the hydrodynamic pressure to the contribution of the acoustic pressure in the signal. This ratio is expected to be low for ZLF and BPO, as the oscillations are generally of high amplitude and almost no variation of hydrodynamic pressure is observed, and rather high for DS and TB.

4.3.4.7 Min-max microphone signal ratio

This descriptor is defined as the ratio of the minimum of pressure over the maximum of pressure of the microphone signal $x^{(m)}[n]$:

$$MMSR^{(m)} = \left| \frac{\min(x^{(m)}[n])}{\max(x^{(m)}[n])} \right| . \tag{4.8}$$

As the microphone signal for all families is close to a damped sine, with no variations of the mean pressure, the value of this ratio is expected to be close to one, except for the ZLF family. Indeed, for this family, the microphone signal displays a particular pattern, just before the beginning of the oscillations. This pattern is shown in [87] and is typical of the ZLF family. It is made of a decrease in pressure, followed immediately by a sharp and high peak of pressure. The particularity of this pattern is its asymmetry. The pressure peak is systematically of higher amplitude than the minimum of pressure. It is also higher than the following damped sine amplitude. Thus, the min-max microphone signal ratio for the ZLF family is expected to be lower than one.

4.3.4.8 Mean time of the band-pass filtered hydrophone signal

This descriptor can be considered as the center of gravity in time of $x_{BP}^{(h)}[n]$. It is calculated as :

$$\bar{t}_{x_{BP}^{(h)}} = \frac{\sum t \left(x_{BP}^{(h)}[n] \right)^2}{\sum \left(x_{BP}^{h}[n] \right)^2}, \tag{4.9}$$

with $x_{BP}^{(h)}[n]$ the hydrophone signal and t the time associated to the signal. Each time t is defined in such a way that the window begins at $t = 0$, the acoustic event starts at $t = 2$ ms and the window ends at $t = 12$ ms.

As the MLE and the DS signals generally display several successive damped sines, the center of gravity in time is expected to be located later in the signal, when it is expected to be located near the beginning of the signal for the other families, because the signal appears like a single damped sine, with most of the energy concentrated on the beginning.

4.3.5 Classification method

The choice of classification method mainly depends on the database and on the purpose of the classification. Here, we are looking for a method able to identify an hydrodynamic event from its acoustic signature. The use of a supervised learning method is therefore chosen. The database used here is made of 167 items. Each item is composed of an hydrophone signal and its associated microphone signal. These events are picked up from measurements of the various configurations described in section 4.3.2. The family of each signal is determined thanks to the associated video footage. All the five families described in [98] are represented in the database.

As the database is quite small, the method chosen for the classification is the K-Nearest Neighbors (KNN) [112]. The principle of this method is to calculate the distance between a new point to be classified and all the points of a predefined labeled data base. Then only the k nearest neighbors are kept and the majority class among them is attributed to the new point. The number k is defined by the user and is the only adjustable parameter of this method. It is chosen by testing several values and selecting the one that gives the best result.

As the different families of event do not have the same rate of occurrence (the TB, for example, is rarely observed), the different classes are unevenly represented in the data base. In order to compensate this, a weight is attributed to the different points during the classification. The weight is defined as the inverse of the distance from the point to classify, so the closer neighbors have a greater influence on the attributed class.

To evaluate the algorithm performances, the database is separated into a learning base, used to train the algorithm, and a test base. It is chosen to keep 80% of the original database for the learning base and 20% for the test base. Before separation, the data are shuffled to have signals from all the different configurations in both bases. It is also verified that all the classes are represented with a same rate in both bases.

4.3.6 Results and discussion

4.3.6.1 Analysis of the descriptors calculated for the learning database

In a first time, the different descriptors are calculated for every signals of the learning data base, to verify the different tendencies expected and reported in section 4.3.4. The results are presented in Fig. 4.20. The descriptors are represented by pairs related to a similar feature.

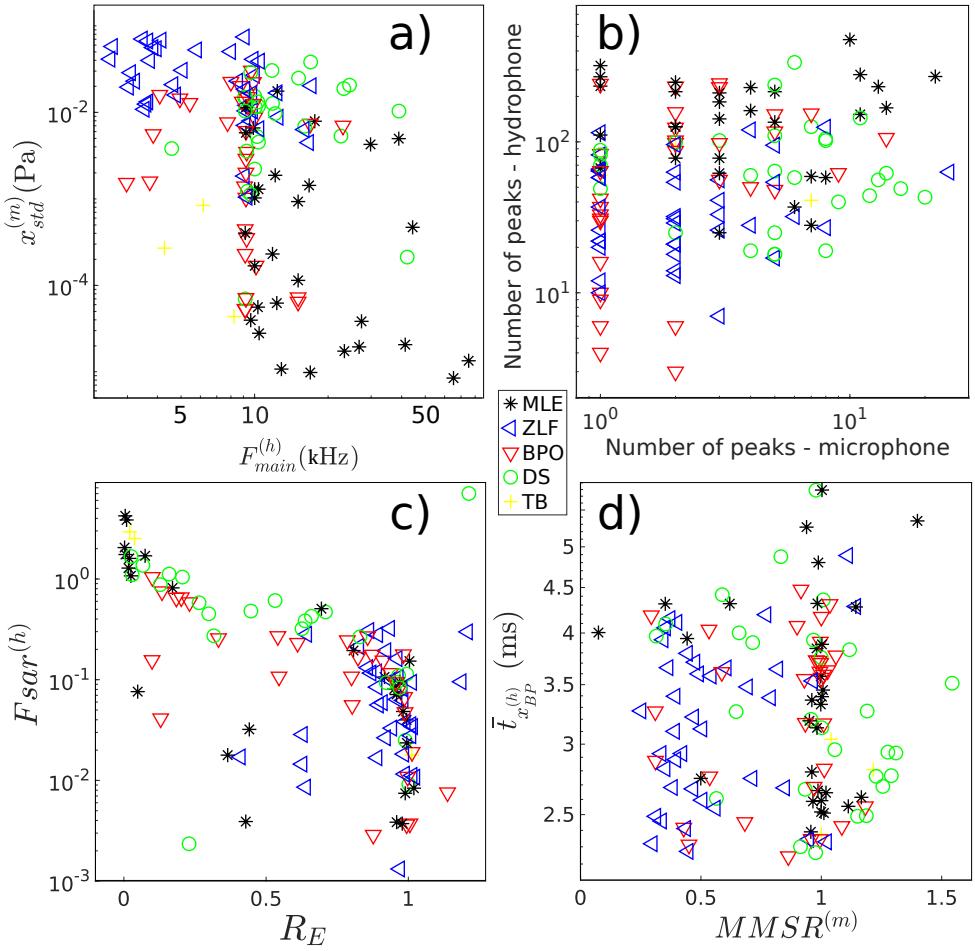

FIGURE 4.20 – 2D representations of the signal descriptors described in section 4.3.4 for the signals of the learning data base.

The main frequency of the hydrophone signal and the microphone signal standard deviation are descriptors mainly linked to the bubble features. As shown in Fig. 4.20-a, both descriptors show tendencies in agreement with the expectations reported in section 4.3.4. However, the two descriptors are not sufficient to separate all the families. Even if the ZLF and MLE families are quite distinct from each other, the BPO and the DS families display however various values for these descriptors, as the bubbles involved are of various sizes and positions under the interface.

The number of peaks both on the microphone and on the hydrophone power spectra is directly linked to the number of bubbles entrained, but also to the energy of these bubbles. Indeed, as the peak detection threshold depends on the amplitude of the maximum of the power spectrum, a high maximum prevents the detection of other peaks (which can be due to other bubbles, noise or resonances). As shown in Fig. 4.20-b, the number of peaks on the hydrophone power spectrum allows to separate MLE and DS families, as the number of peaks on the microphone power spectrum rather allows to separate ZLF and DS families.

The part of the acoustic energy in the total hydrophone signal and the filtered hydrophone signal amplitude ratio are both related to the hydrodynamic contribution in the hydrophone signal. The results displayed in Fig. 4.20-c show rather clustered values, with no distinct tendency. However, as expected, both descriptors allow to separate ZLF and DS families quite well.

Finally, the min-max microphone signal ratio and the mean time of the band-pass filtered hydrophone signal are both related to the temporal shape of the signal. As expected and shown in Fig. 4.20-d, the min-max microphone signal ratio allows to separate quite well the ZLF family from the other families. However, the mean time of the band-pass filtered hydrophone signal displays more disperse values than expected for all families.

In summary, the different pairs of descriptors taken independently are not enough to separate all families. However, as each descriptor appears efficient for a different family, it is expected, by combining all of them, to obtain better performances for the classification.

4.3.6.2 Results of the classification on the test database

In a second time, a classification method based on the KNN algorithm is proposed. The classification method is tested first on the test data base extracted from the original labeled data base. As each point is labeled, the class attributed by the algorithm can be directly compared to the true family of the point, allowing to estimate the success rate of the algorithm. A success rate of **82 %** is obtained for a value of $k = 4$, which is the optimal value according the graph shown in Fig. 4.21. The associated confusion matrix is shown in Fig. 4.22. It allows to see which classes are often confused with others. Four main problems can be observed.

— The 'zip-like flow' class can be confused with the 'donut splash' class. This confusion was expected, because the two events are hydrodynamically close to each other : both consist of a cavity closed by an impacting secondary droplet, the difference being that the secondary droplet impacts the cavity later in the case of 'donut splash' than for 'zip-like flow'. Thus, no physical limit is defined between the two phenomena, leading to a probable 'transition zone' for which the mechanism is a mix between the two phenomena, and so the acoustic signal displays similar features.

— The 'bubble pinch off' class can be confused with the 'donut splash' class. This is due to the high dispersion showed by most of the descriptors for both classes. Indeed, both mechanisms lead to the entrainment of bubbles of various sizes and with various dynamics.

— The 'Mesler-like entrainment' class can be confused with the 'zip-like flow' class. This happens when large bubbles detach from the air film induced in the 'Mesler-like entrainment' mechanism.

— The 'touched bubble' family is not successfully identified at all. This is probably due to the very low number of representative signals of this family into the learning data base. This can also be due to the fact that no feature specific to this family was found. However, the very low number of representatives of this family in the test base (only two) is probably not relevant.

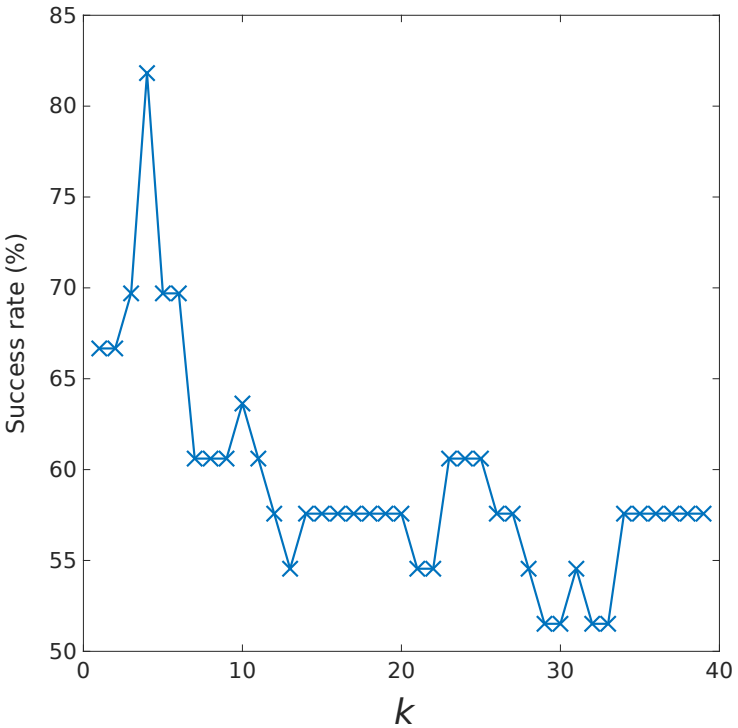

FIGURE 4.21 – Success rate of the classification algorithm for different values tested for the parameter k.

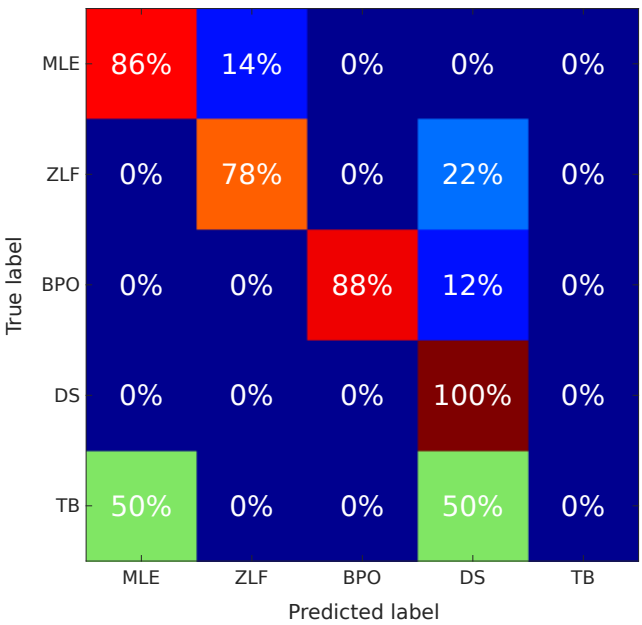

FIGURE 4.22 – Confusion matrix from the test of classification using a KNN method.

The algorithm is then tested on a set of measurements with the same configuration, including one measurement of acoustic signals synchronized with a video and 50 purely acoustic measurements. The configuration corresponding to this set of measurements is a water drop impacting on a water tank with 5% ethanol. The acoustic signal with an associated video is shown in Fig. 4.23-a. The three acoustic events detected are highlighted and identified thanks to the associated video. The first event, detected at 134 ms, only appears on the hydrophone signal with a low amplitude. It is identified as an MLE mechanism. The second event, located at 151 ms, is due to a ZLF mechanism. Lastly, the third one, arriving at 184 ms, is linked to a BPO mechanism. The 50 acoustic signals, represented overlaid in Fig. 4.23-b, show 3 packs of acoustic events at similar times as for the reference signal. Indeed, as the studied impact regime is quite reproducible, it is not surprising to have similar acoustic signals for a same configuration. The events from each pack can be considered to belong to the same family as the corresponding event on the reference signal. The classification algorithm is tested on these events, and the results for each of the three packs are plotted in Fig. 4.23-c. At first glance, it is visible that all the events inside a same pack are not classified in the same class, which is coherent with the not perfect success rate obtained from the test. The first pack is identify as 86% of MLE (which corresponds to the expected family), 7% of TB and 7% of DS. For this first pack, the success rate is coherent with the one obtained on the test. The second pack shows a classification of 67% of ZLF (the expected family for this pack), 29% of DS and 4% of MLE. Once again, the expected family is mostly identified. However, the success rate is lower than the one obtained on the test data base. The second most attributed class is DS. As explained earlier, ZLF and DS have similar hydrodynamic mechanisms and can happen with similar conditions. Thus, the high score of DS can be explained in two ways :

- the strong resemblance between ZLF and DS signals, leading to ZLF signals being confused with DS ones, as observed on the confusion matrix of Fig. 4.22.
- the presence of both ZLF and DS signals in the pack. Indeed, as the two events come from the closing of a cavity by a secondary droplet, it is possible that the little variations between measures lead to the apparition of one or the other for a similar time.

Finally, the third pack shows a classification of 62% of MLE, 25% of BPO (the expected family) and 13% of DS. In this case, the class mostly identified does not correspond to the expected family. Unlike the precedent case, the identification of a MLE is clearly a mistake as this family is always observed to appear first or not at all in all of our measurements. This test highlights a common confusion between BPO and MLE that is not shown on the confusion matrix. The same confusion is also observed when the algorithm is tested on other data set. After a deeper study, this confusion seems to happen when a small bubble is entrained with a pinch off mechanism, leading to an acoustic signal with properties similar to MLE signals. For the studied regime, as it is known that MLE events are only seen as a first event when it appears, this confusion can be corrected by ignoring the MLE class for non first events. This correction leads to a better and more successful classification.

The test of the algorithm on a large number of acoustic signals for a same configuration shows that, even if some errors remain in the classification, the expected family is mostly attributed inside a group of same events. The repetition of several measures for a same configuration, a detection of the group of acoustic events happening at similar time (therefore corresponding to the same family of event) and the determination of the class of each group by choosing the class attributed in majority inside it can help improving the score of the algorithm.

4.3.7 Conclusion

An algorithm for the identification of hydrodynamic events thanks to their acoustic signature in the case of a drop impact on a liquid surface is developed. In particular, the five different families of bubble excitation presented in [98] are considered in this work. The identification of different signal descriptors, using both the hydrophone and the microphone signals and some simple data processing, allows to highlight an effective combination of descriptors for the automatic classification of the acoustic events. The use of the KNN method for the classification based on a learning base of identified signals allows to reach a quite suitable performance. However, systematic confusions between some families still exist, but are understood and could be corrected by enlarging the learning data base. This algorithm can consequently be used to identify the mechanism of bubble entrainment involved in the case of a drop impact on a liquid, without the use of

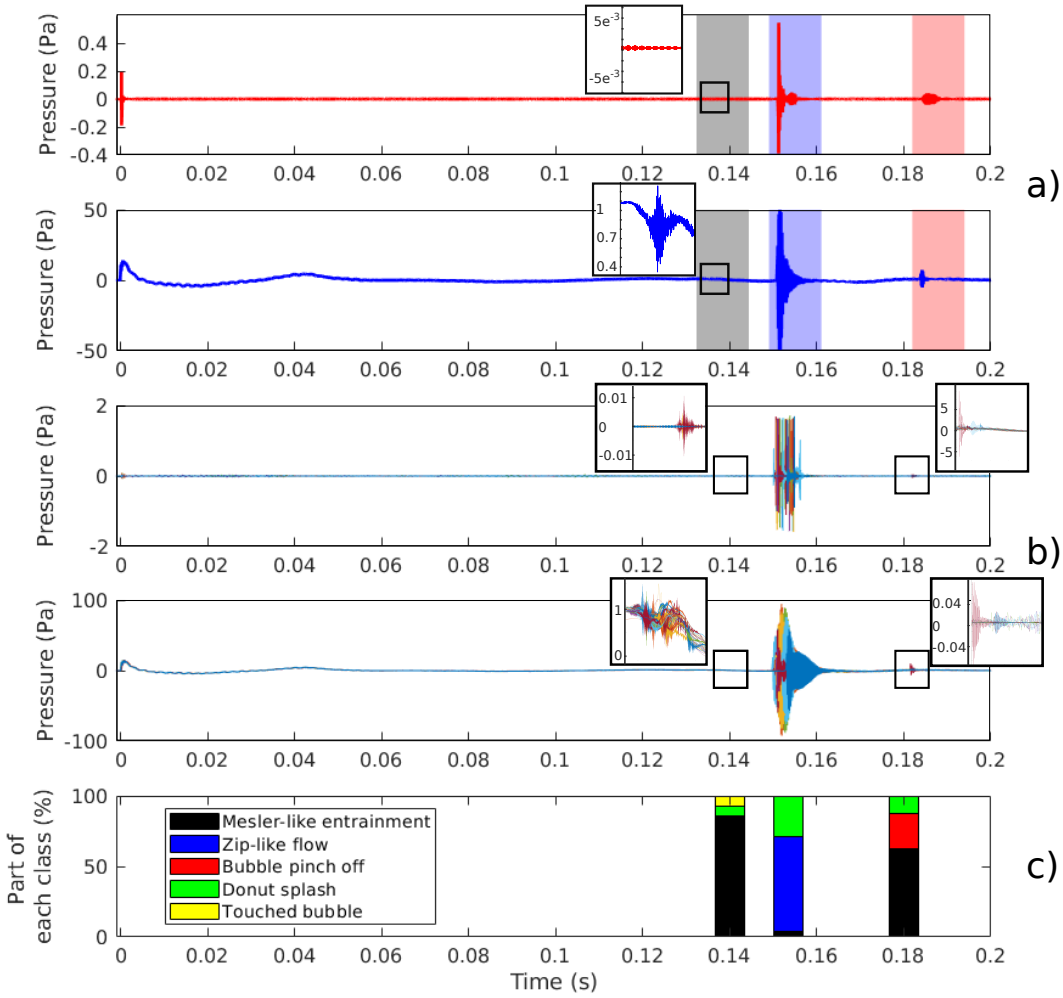

FIGURE 4.23 – a) Microphone (top, red) and hydrophone (bottom, blue) signals from a water drop impact on a water tank with 5% ethanol. The acoustic events are detected and identified with the associated video footage. b) Microphone (top) and hydrophone (bottom) overlaid signals from acoustic measurements of a water drop impact on a water tank with 5% ethanol. c) Percentage of each class label attributed to the detected events by the algorithm.

an high-speed camera. However, it has nowadays only been tested for one impact regime, showing multiple bubble entrainment mechanisms. As these mechanisms are similar to the ones observed for different impact regimes, it would be interesting to test this algorithm for other impact regimes, to see if the acoustic signature of the different bubble entrainment mechanisms are universal.

4.4 Conclusion du chapitre

L'ajout de tensioactif au bain d'eau, lors de l'impact d'une goutte d'eau, fait apparaître de nouveaux mécanismes de formation de bulle, pour des conditions d'impact identiques. Ces formations de bulles prennent place durant l'effondrement du jet de Rayleigh, et peuvent même ne pas être uniques lors d'un même impact, contrairement au cas de l'eau pure où une seule bulle est formée, par un seul mécanisme. Cinq mécanismes différents sont identifiés :

— le «zip-like flow», correspondant à une bulle formée par la chute d'une gouttelette secondaire sur une cavité ; ce mécanisme est celui déjà observé dans le cas de l'eau pure,
— le «donut splash», correspondant à une bulle toroïdale formée par la chute d'une gouttelette secondaire sur une cavité en rétraction, et qui se décompose immédiatement en une multitude de petites bulles,
— le «bubble pinch off», correspondant au pincement d'un volume d'air à l'apex d'une cavité en train de se rétracter,
— le «Mesler-like entrainment», correspondant au déchirement d'un film d'air emprisonné entre la base du jet et le reste du liquide, créant ainsi une multitude de petites bulles,
— le «touched bubble», seul mécanisme qui n'est pas un mécanisme de formation de bulle, mais d'excitation d'une bulle déjà existante ; cette excitation est faite par une cavité qui, après avoir commencé à fusionner avec une bulle dans le liquide, se rétracte en se détachant de cette bulle en provoquant ainsi sa vibration.

Chacun de ces mécanismes a une signature acoustique typique, portée par les signaux enregistrés dans l'air et dans l'eau. Les différences entre ces signatures viennent des différences dans l'hydrodynamique des mécanismes, et sont pour le moins subtiles. L'ex-

traction de descripteurs adéquats et pertinents est nécessaire pour pouvoir différencier ces signatures. A partir de ces descripteurs, il est alors possible de concevoir un algorithme de classification automatique avec un taux de réussite satisfaisant. Cependant, la grande dispersion de la valeur de certains descripteurs au sein d'une même famille limite les performances de l'algorithme. Ainsi, des confusions demeurent entre certaines familles. Néanmoins, un nombre plus important de données d'apprentissage pourrait probablement permettre d'augmenter la confiance en l'algorithme.

Chapitre 5

Modification de la tension de surface

5.1 Introduction

Ce chapitre présente les résultats issus des mesures d'impacts de gouttes sur des surfaces liquides complexes. L'objectif de base est d'étudier l'effet des variations de la tension de surface sur l'hydrodynamique et le signal acoustique de l'impact. La tension de surface a ainsi été modifiée de plusieurs manières : par mélange de liquides miscibles, par ajout de tensioactif et par ajout de protéines. Les résultats concernant les mélanges de liquides et les tensioactifs sont présentés sous la forme de deux articles.

Le premier article, en cours de finalisation, présente l'étude de l'impact d'une goutte d'eau sur des solutions aqueuses d'éthanol. Ces solutions présentent des tensions de surface d'autant plus faibles que la concentration en éthanol est importante. L'attention est portée ici aux premières dizaines de millisecondes après l'impact. Ce temps correspond au développement d'une cavité en-dessous et d'une couronne liquide au-dessus de la surface. Le signal hydrophonique associé à ce phénomène montre de grandes variations de pression hydrodynamique, dues aux flux générés dans le liquide. Alors que la cavité ne montre pas de changement géométrique notable quand la tension de surface est modifiée, la taille maximale de la couronne augmente quand la tension de surface diminue. Ceci induit un retard dans l'effondrement de cette couronne. Un maximum de pression est observable sur le signal hydrophonique au moment où une onde capillaire principale, issue du sommet de la couronne, atteint le bas de la cavité lors de sa rétraction. Cette surpression arrive d'autant plus tard que la tension de surface est faible. Ce retard est visible sur le signal acoustique. Un modèle simple permet ainsi de relier le temps d'apparition de cette surpression à la tension de surface et à la densité du liquide.

Le second article, soumis en octobre 2021 à la revue Journal of Colloid and Interface Science, présente l'étude de l'impact d'une goutte d'eau sur une solution aqueuse de tensioactif. Trois tensioactifs différents sont testés : le sodium dodecyl sulfate (SDS), le cetyltrimethylammonium bromide (CTAB) et le polyoxyéthylèneglycol dodécyl éther (Brij35). L'observation du signal acoustique à différentes concentrations montre une variation du nombre et du temps d'apparition des événements acoustiques (dus à la formation de bulles). Plus particulièrement, une augmentation suivie d'une diminution du temps d'apparition global des événements acoustiques peut être observée pour les trois tensioactifs, avec un maximum situé à une concentration environ égale à un tiers de leur concentration micellaire critique (CMC). Cette variation particulière peut être expliquée par la variation de la taille maximale du jet de Rayleigh, qui suit le même comportement. Une analyse de la vitesse initiale et de l'accélération du jet permet d'expliquer les variations de sa taille maximale. Le comportement particulier de la hauteur maximale du jet de Rayleigh, et donc également du temps d'apparition des événements acoustiques, est finalement expliqué par la combinaison entre des écoulements de Marangoni, qui se mettent en place durant la formation du jet, et la viscosité de la solution.

Une troisième partie présente ensuite les premiers résultats obtenus suite à la mesure d'impact d'une goutte d'eau sur une solution de protéines. Les protéines testées sont la caséine et l'ovalbumine. Ces premiers résultats montrent des comportements proches de ceux observés avec les tensioactifs pour de faibles concentrations. Cependant, l'observation de variations de comportement du jet de Rayleigh entre des mesures successives pour une même concentration témoigne de la dynamique d'adsorption plus lente des protéines par rapport aux tensioactifs.

Une quatrième partie présente enfin une rapide comparaison entre deux configurations de mesure : l'impact d'une goutte d'eau sur une solution de tensioactif et l'impact d'une goutte de solution de tensioactif sur cette même solution. Des différences sont observées, tant dans les événements acoustiques que dans la dynamique du jet de Rayleigh.

5.2 Physicochemical features of homogeneous liquid mixtures revealed by hydrophonic signature of a water drop impact

5.2.1 Introduction

The impact of a drop on a liquid surface causes a succession of typical hydrodynamic events, such as a splashing crown and a Rayleigh jet [18]. The liquid flows induced into the liquid bulk by the interface deformations lead to variations in the hydrodynamic pressure [87, 123] which can be measured by a hydrophone when situated near enough to the impact area.

The cavity created in the liquid after the drop impact is the subject of a substantial number of papers in the literature because its dynamics influences the unfolding of the following events [25, 124-127]. If the description of the hydrodynamic events involved during the development of the cavity has been widely discussed in the literature and some models have been suggested to describe this phenomenon, there are, however, two points that have not been sufficiently addressed in the literature.

The first one concerns the study of the dynamics of the crown developing above the interface at the same time as the cavity.

The second one is related to the nature of the impacted liquid. Indeed, if a drop of water impacts a surface made of a liquid other than water, new hydrodynamic events appear. Worthington reported for instance that adding milk to water modifies the hydrodynamics of the Rayleigh jet [18].

Some studies used different solutions, like glycerol and ethanol, to study the influence of viscosity and surface tension on the Rayleigh jet [47, 48, 128, 129], or on the initial impact [43, 50, 130]. These properties can also be changed by modifying the temperature of the liquid [37, 52, 131]. More complex liquids were also studied [101, 132-135].

However, it it noteworthy to observe that none of these studies focus on the acoustic signal of the impact.

This paper reports the effects of some physico-chemical properties of the liquid bath on water drop impact on the liquid surface. The liquid of the bath is tuned by mixing ethanol with water. The focus is made on the first tens of milliseconds of the impact, i.e. during the crown and cavity dynamics. The variations of the crown dynamics as a function of the surface tension and density are presented and correlated to the hydrophonic signal of the impact. A scaling law approach is proposed to relate the liquid properties to the features of the hydrophonic signal.

5.2.2 Materials and Methods

A distilled water drop is generated by a PhD Ultra syringe pump equipped with a 60 mL syringe. The latter is connected to an Interchim Teflon cylindrical hose. The inside and outside diameters of the hose are 1 mm and 1.5 mm respectively. The flow rate is set at 10 mL/h. So the diameter of the detached drop is 3.70 ± 0.05 mm. The height of the drop release is fixed to 740 mm from the liquid surface, so the measured speed of the impact, deduced by the footage, is about 3.32 ± 0.05 m/s.

The droplet falls into a tank made of 10 mm thick Plexiglas panes and laying on four blocks of solid polymer foam to reduce any transmission of exterior vibrations. The external dimensions of the tank are 160 × 160 × 110 mm^3. For each experiment, the tank is filled to its maximum height.

The video of the impact is recorded with a Photron FastCam SAX2 high-speed camera, equipped with a Sigma Macro 105 mm lens. A lighting is provided by a back light LED projector RS Pro of 50 W. The video is recorded at a sample rate of 20 000 fps. The camera is fitted so that it can film both above and below the surface.

The acoustic signal is recorded underwater with a Brüel&Kjaer hydrophone (Type 8103), connected to a conditioning amplifier Brüel&Kjaer (Type 2692-0S4). The hydrophone is positioned 55 mm beneath the point of impact.

All signals are recorded with a Picoscope 4262 digital oscilloscope with a sampling rate of 500 kHz.

For data processing, each signal is denoised with a spectral subtraction algorithm to reduce the background noise [82]. In addition, a low-pass filter with a cut-off frequency of 250 Hz is applied to the hydrophonic signal to remove the impulse response of the tank, which is excited by the impact.

The video and acoustic acquisitions are triggered by an infrared sensor module XCSource TE174, situated just underneath the hose and connected to an Arduino Mega card. For their processing, the acoustic signals are then time-shifted to compensate the flight times of the pressure waves to synchronize them with the video footage. The origin of time is set to be the instant of the initial impact of the falling drop on the liquid surface.

The all set-up is supported by a metallic structure located in a semi-anechoic room with a cut-off frequency of 100 Hz. The temperature is quite constant around 19°C.

Water/ethanol mixtures of different compositions are used to fill the tank. For each composition, a measurement is realized once with both video and acoustic recordings. Then, 50 acoustic recordings are made to check the repeatability of acoustic events. At least 20 seconds of rest are required between two experiments to ensure that the bath surface remains motionless before the impact.

The surface tension of the tank liquid is adjusted by adding different amounts of ethanol to distilled water. The surface tension of solutions is measured by a profilometry method [136] in a pendant drop configuration using an automatic drop tensiometer (Tracker, Teclis Scientific, France).

The surface tension as a function of the ethanol wt% fraction in water is reported in Fig. 5.1-a. The surface tension decreases from 72 mN/m to 25 mN/m between 1.2 wt% and 44 wt% of ethanol.

In addition to surface tension, mixing of homogeneous liquids affects the density of the mixture. The density of liquids as a function of their wt% fraction in water is reported in Fig. 5.1-b. The density values are extracted from [137]. The density decreases from 998 kg/m^3 to 886 kg/m^3 between 1.2 wt% and 44 wt% of ethanol.

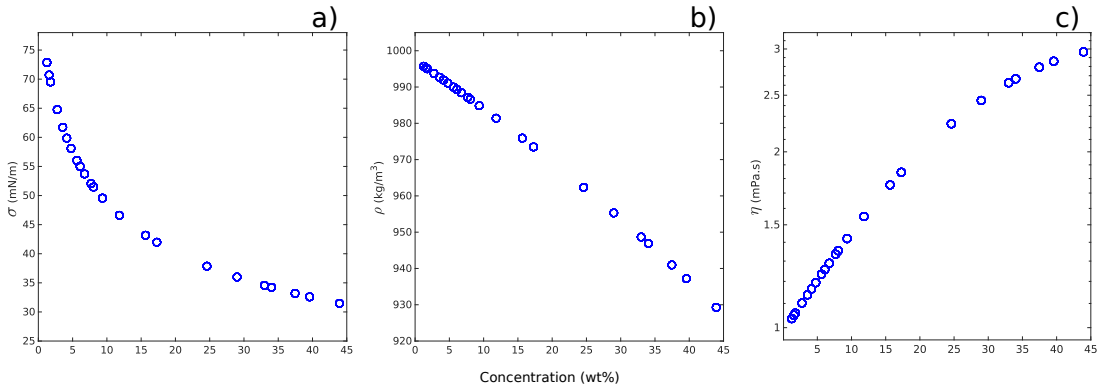

FIGURE 5.1 – a) Surface tension σ, b) density ρ and c) viscosity η of aqueous solutions of ethanol at different wt% fractions. Density and viscosity values are reported from [137].

As well, the viscosity of homogeneous mixtures of liquids varies with their composition. The viscosity of the solutions used in this study as a function of the wt% fraction of ethanol in water is reported in Fig. 5.1-c. The viscosity values are extracted from [137].

5.2.3 Results

The impact regime studied in this work is situated in the so-called "irregular entrainment regime" [21]. It has been finely described in [87] and is summarized briefly hereafter. When the drop impacts the surface of the liquid bath, it creates an air cavity in the liquid and a liquid crown above the surface, as illustrated in Fig. 5.2. The crown is a liquid film of a height H ended with a rim considered as a torus of radius R_{rim}. When the cavity reaches its maximum depth, it starts to retract due to gravity and surface tension effects. This retraction leads to the projection of a Rayleigh jet above the surface, that leads later to bubble entrapment after detaching two secondary droplets at the tips of the jet. This study focuses on the first tens of milliseconds following the first impact i.e. as the cavity and the crown are created up to their collapse.

5.2.3.1 Hydrodynamics and hydrophonic signal with pure water

Fig. 5.3 shows different stages of the cavity and crown development. Just after the initial impact (a), a liquid layer is projected upward as a cavity starts to expand radially (b). The cavity has an hemispherical shape, as already reported in the literature [23, 124, 126, 127], and continues to grow as a liquid crown rises above the surface (c). When the cavity reaches its maximum depth (d), it starts to collapse as the crown is currently doing. At this stage, axisymmetric capillary waves can be seen traveling downward the cavity

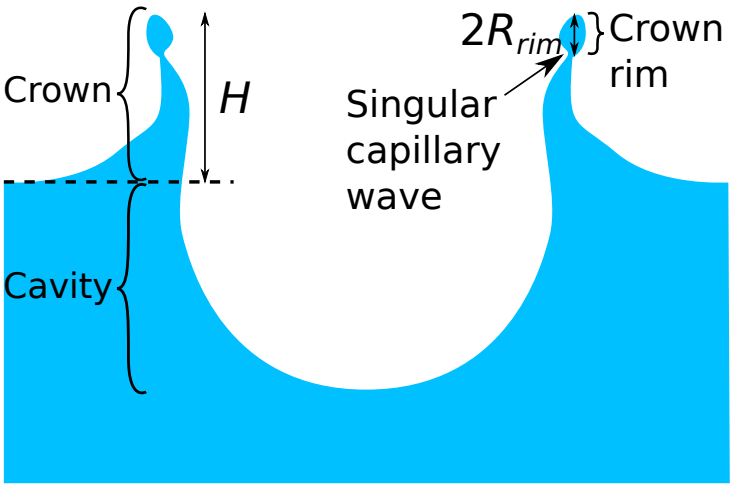

FIGURE 5.2 – Schematic drawing of the surface of a liquid about 20 ms after the impact of a drop of water, showing the cavity, the crown of height H and its rim of radius R_{rim} that will give rise to a singular capillary wave.

as it retracts (e-g). Among these capillary waves, one stands out for its high amplitude. This capillary wave, shown on Fig. 5.3 by red arrows, is already described in the literature [25, 102], and is called indifferently singular [48, 138] or sharp [127] capillary wave. In the following, we will call it "singular capillary wave". As it can be seen on image (d), the singular capillary wave comes from the bottom of the crown rim [127], follows the collapse of the latter (e), propagates along the cavity (f) until it focuses at its apex (g), where the Rayleigh jet is ejected later (h).

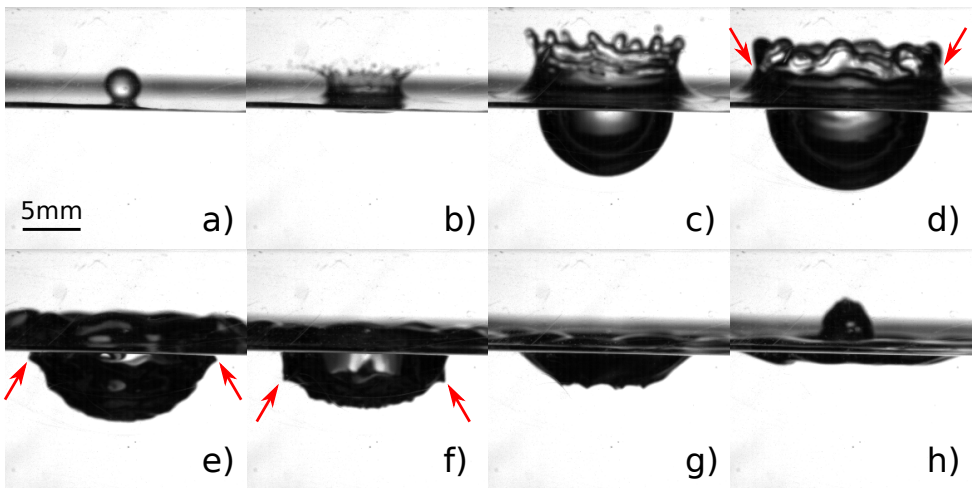

FIGURE 5.3 – Different stages of the cavity and crown development after a water drop impact on a water surface. The red arrows show the position of the singular capillary wave. The images from a) to h) correspond to the times marked in Fig. 5.4.

The dynamics of the cavity and the crown generate liquid flows that lead to variations in the hydrodynamic pressure in the liquid [87, 123] and which may be described by the Bernoulli equation [127]. Experimentally, the variations of hydrodynamic pressure in water can be recorded by disposing a hydrophone near field of the cavity. An example of such a recording is shown in Fig. 5.4. At the initial impact ($t = 0$, image (a) in Fig. 5.3), a sharp rise of pressure is recorded. As the drop coalesces with the liquid, the pressure continues to rise until a maximum at about 1 ms. Then, as the cavity expands, the liquid flow is mainly directed toward the crown above the surface, creating a pressure decrease. At around 17 ms, the cavity and the pressure reach their maximum depth and minimum level, respectively. As the cavity starts to retract, the pressure rises again. Indeed, the liquid in the crown flows back into the bulk, creating a pressure rise up to a maximum around 40 ms. By carefully analyzing the images and the hydrophonic signals, it appears that the maximum of the overpressure coincides with the moment when the singular capillary wave reaches the apex of the cavity. As a result, the liquid flows meet at the apex of the cavity and begin to rise (at about 40 ms), leading to the ejection of the famous Rayleigh jet.

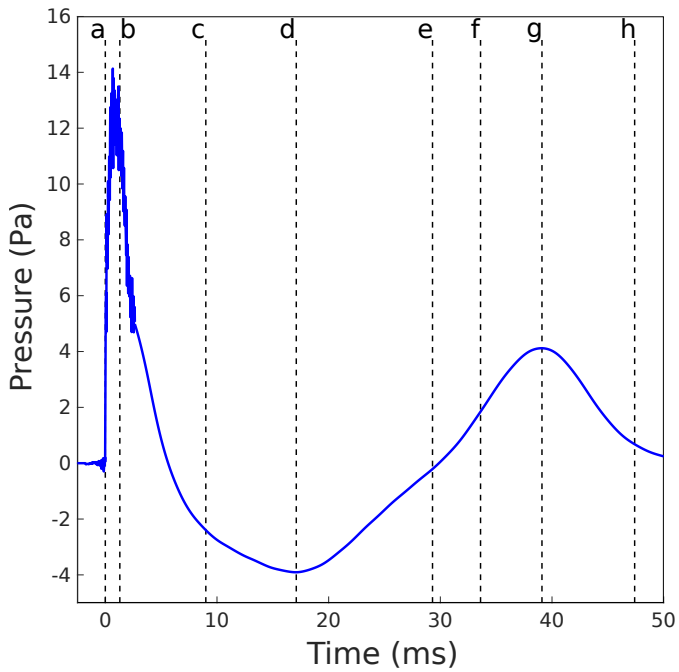

FIGURE 5.4 – Hydrophonic signal corresponding to the cavity and crown dynamics after a water drop impact on a water surface. The dashed lines mark the times at which the images of Fig. 5.3 are taken.

5.2.3.2 Effect of liquid composition on hydrodynamics and hydrophonic signal

Fig. 5.5 shows images of the cavity and the crown at their maximum development for aqueous mixtures of ethanol at different concentrations. At first glance, the cavity dynamics is quite similar for the different compositions as its maximum depth is independent of ethanol concentration. This appears logical, given that the initial energy is the same for all impacts. It follows that the development of the cavity and its relatively large size implies that the elastic energy due to surface tension is negligible compared to the kinetic energy of the fluid and, in this stage, does not play a significant role on the hydrodynamic events.

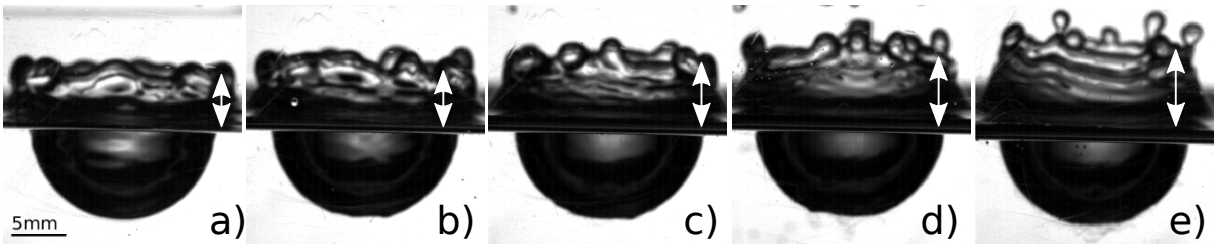

FIGURE 5.5 – Images of the cavity and the crown 20 ms after the initial impact for aqueous mixture of ethanol at concentrations of : 1.2% (a), 3.6% (b), 5.6% (c), 9.4% (d) and 15.6% (e). White arrows show the maximum height considered for the crown, without considering the "fingers" forming at the top.

However, some major differences are observed on the crown development such as its maximum height H or the radius R_{rim} of the crown rim, reported in Fig. 5.6. The maximum height is taken as the distance between the surface and the top of the crown rim, without considering the liquid fingers at the top of the crown. The maximum height of the crown increases with the addition of ethanol, while the radius of the crown rim decreases with increasing liquid concentration.

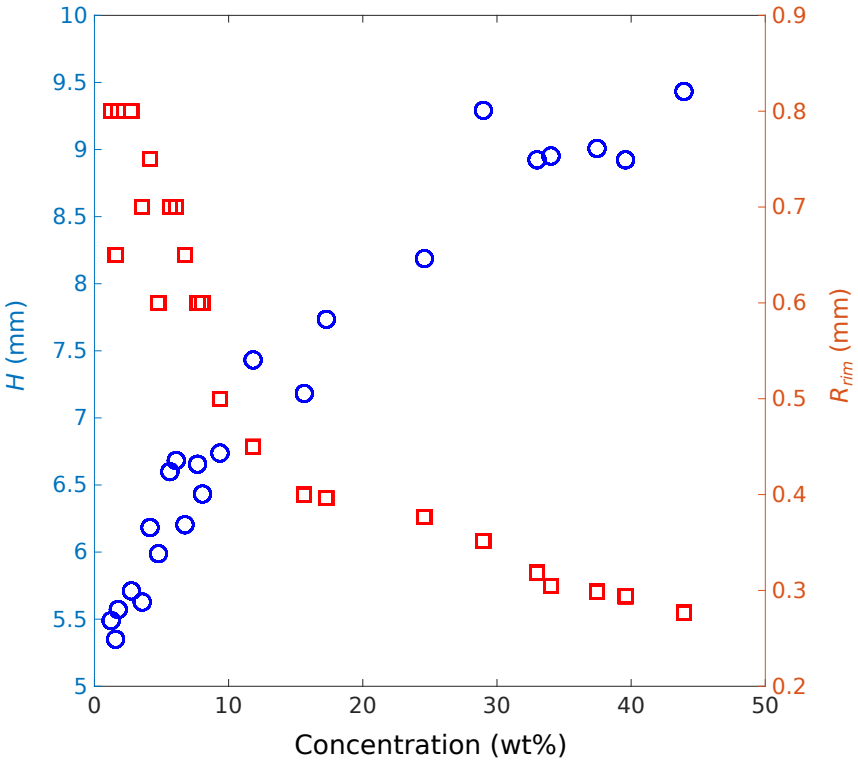

FIGURE 5.6 – Crown maximum height H (blue circles) and rim radius R_{rim} (red squares) at the maximum expansion of the crown as a function of liquid composition for aqueous solutions of ethanol.

Fig. 5.7 shows the hydrophonic signal for several ethanol concentrations. While the time dependence of the hydrostatic pressure is similar for all compositions, differences appear and illustrate the effect of the surface tension of the bath liquid. Up to 30 ms, during the development of the cavity and the crown, no differences are noticed on the hydrostatic pressure. Above this duration, when the crown and cavity are retracting, the overpressure maximum is shifted to higher times as the concentration of ethanol increases : the overpressure maximum is observed at times $t_{max} = 39$ ms, $t_{max} = 42$ ms, t_{max}=44 ms and $t_{max} = 46$ ms for 1.2%, 4.8%, 8.1% and 11.8% of ethanol respectively.

The time shift of the overpressure maximum recorded by the hydrophone is due to changes in the crown dynamics. Indeed, as shown in Figs. 5.5 and 5.6, the crown maximum height increases with ethanol wt%, whereas the cavity does not show any changes. The main changes therefore happen during the retraction stage. Fig. 5.8 shows the edges of the cavity, obtained thanks to edge detection on the video footage, at different times after the impact for the same ethanol concentrations as in Fig. 5.7. Arrows show the position of the singular capillary wave. It can be seen that for the configuration with the higher sur-

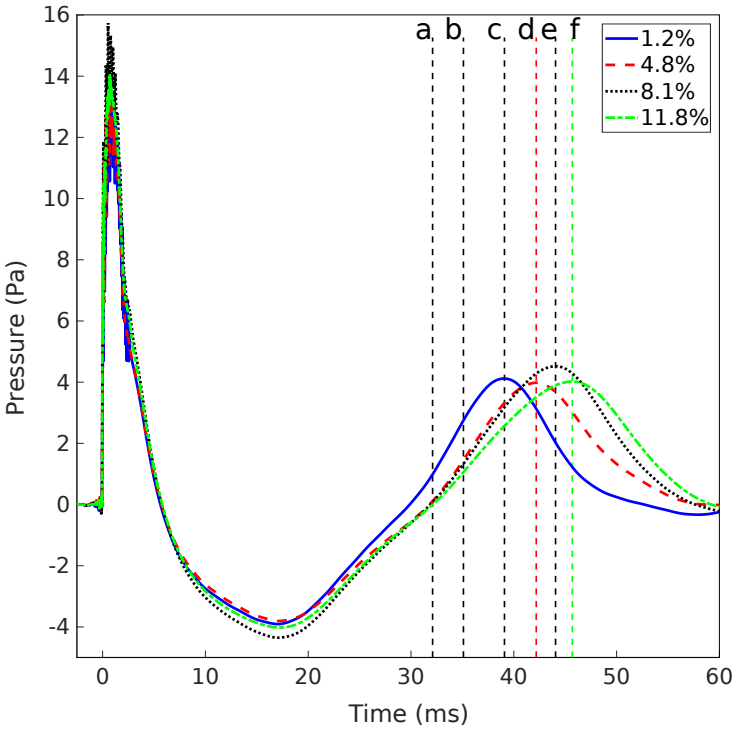

FIGURE 5.7 – Hydrophonic signals corresponding to the cavity and crown dynamics after a water drop impacts on a aqueous solution of ethanol at a concentration of 1.2% (blue line), 4.8% (red dashed line), 8.1% (black dotted line) and 11.8% (green dash-dot line). The landmarks from a to d corresponding to the vertical dashed lines indicate the times at which the images of Fig. 5.8 are taken.

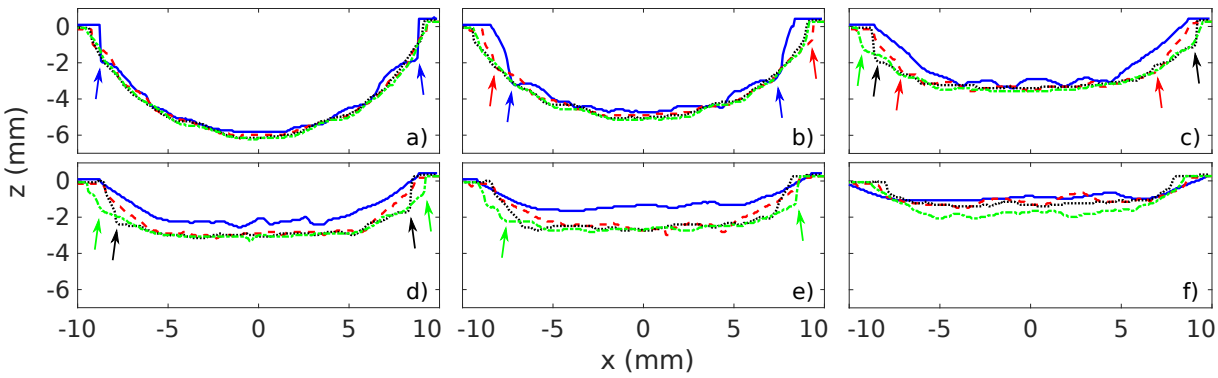

FIGURE 5.8 – Overlay of the cavities cross-sectional profiles from measurements with aqueous solutions of ethanol at a concentration of 1.2% (blue line), 4.8% (red dashed line), 8.1% (black dotted line) and 11.8% (green dash-dot line), at 32.1 ms (a), 35.1 ms (b), 39.1 ms (c), 42.2 ms (d), 40,5 ms (e) and 45.7 ms (f) respectively. Arrows show the position of the singular capillary wave on the edges of the same color.

face tension (1.2 % of ethanol), the singular capillary wave is visible at 32.1 ms (Fig. 5.8, image(a)) before appearing on the other concentrations. When the singular capillary wave of the 4.8% configuration appears (Fig. 5.8, image (b)), it is delayed compared to the 1.2% configuration. In image (c) of Fig. 5.8, corresponding to t_{max}, the time of overpressure maximum for the 1.2% configuration in Fig. 5.7, the singular capillary wave is no longer visible, as it has reached the cavity apex, inducing the projection of the Rayleigh jet upward. However, the singular capillary wave from the three other configurations are visible, with a delay as long as the ethanol concentration is high, i.e. the surface tension is low. As the overpressure maximum is observed when the singular capillary wave reaches the cavity apex, the delay of arrival of this singular capillary wave, observable on Fig. 5.8, can explain the delay of arrival of the overpressure. Thus, a lower surface tension induces a larger delay in the focusing of the singular capillary wave.

All measurements of t_{max}, the time when the overpressure maximum is recorded, are shown in Fig. 5.9 as a function of ethanol concentration of the bath liquids. The trend of increasing t_{max} with the addition of ethanol is then clearly established.

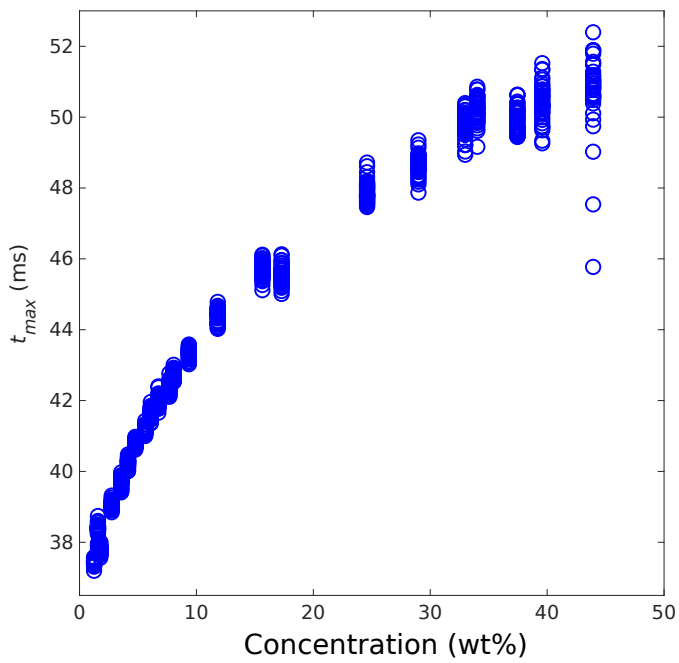

FIGURE 5.9 – Time of the overpressure maximum t_{max} as a function of wt% of ethanol in the liquid bath.

5.2.3.3 Effect of some physico-chemical parameters of the liquid

The flow phenomena involved in the formation of the cavity and the crown mainly involve contributions from the density, viscosity and surface tension of the liquid. In the following, we represent the different parameters H, t_{max} and R_{rim} in terms of these three variables.

The dimensions of the crown H and R_{rim} are plotted in Fig. 5.10 as a function of surface tension σ, density ρ and viscosity η.

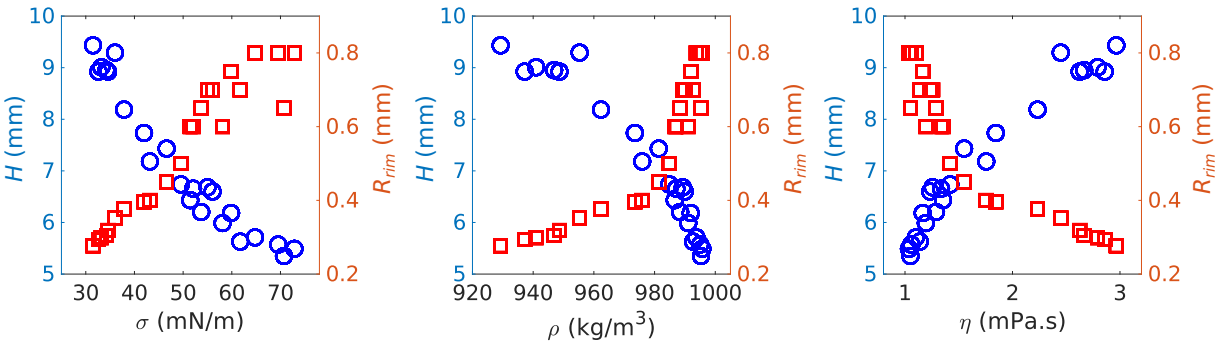

FIGURE 5.10 – Height H (blue circles) and rim radius R_{rim} (red squares) at the maximum expansion of the crown as a function of surface tension σ (left), density ρ (middle) and viscosity η (right) of ethanol-based aqueous solutions.

As the surface tension of ethanol-based solutions varies over a wide range, it appears that the decrease of surface tension favours the slenderness of the crown and at the same time leads to the shrinkage of its rim, which is coherent with the effect of surface tension.

If the density effect on the two dimensions is similar to that of the surface tension for ethanol, the viscosity has the opposite effect of surface tension i.e. where increasing surface tension leads to a decrease in H, increasing viscosity leads to an increase.

All the measurements of t_{max} as a function of surface tension, density and viscosity are shown in Fig. 5.11 for ethanol-based solutions. The trend of decrease of t_{max} with surface tension and density is clearly established. However, as for H, the viscosity has an opposite effect on t_{max}, i.e. when the viscosity increase t_{max} increases.

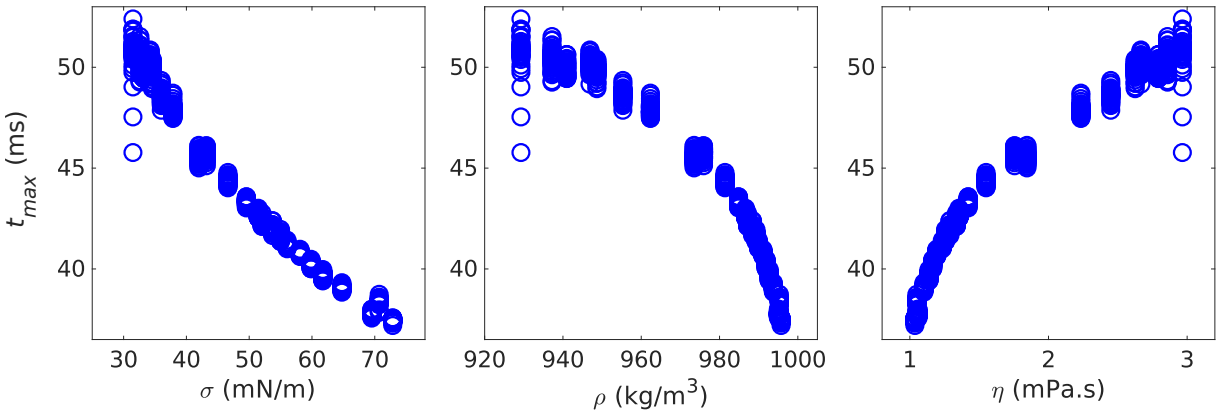

FIGURE 5.11 – Time of the hydrophonic overpressure maximum t_{max} as a function of surface tension σ (left), density ρ (middle) and viscosity η (right) of ethanol-based aqueous solutions.

5.2.4 Discussion

5.2.4.1 Crown dimensions

In order to account for the hydrodynamic behavior of the crown as a function of a minimal number of physicochemical parameters of the solutions, we expressed the dimensions of the crown as a function of two dimensionless numbers : the Bond number Bo and the capillary number Ca. We show in the following that H is dependent of ρ/σ and R of η/σ.

In a first approach, crown formation can be considered as a capillary problem where the gravitational forces are counterbalanced by the surface tension. This balance is represented by the Bond number Bo, proportional to the ratio ρ/σ [139]. The height of the crown is therefore plotted as a function of ρ/σ in Fig. 5.12 and compared to a linear regression represented by the solid line. The correspondence is quite acceptable despite the noise of the data. R_{rim} is also shown in Fig. 5.12. R_{rim} decreases as a function of Bo but clearly does not show a so strong linear trend with this parameter. The same analysis is conducted assuming viscous and interfacial effects. Under these conditions, the equilibrium of the crown is dependent on the capillary number Ca, proportional to σ/η. H is plotted as a function of σ/η in Fig. 5.12 which clearly shows that the data do not follow a straight line. However, R_{rim} increases linearly with Ca which is expected since the formation of the rim, considered as a driven capillary relaxation of the interface, is in competition with the viscosity of the liquid.

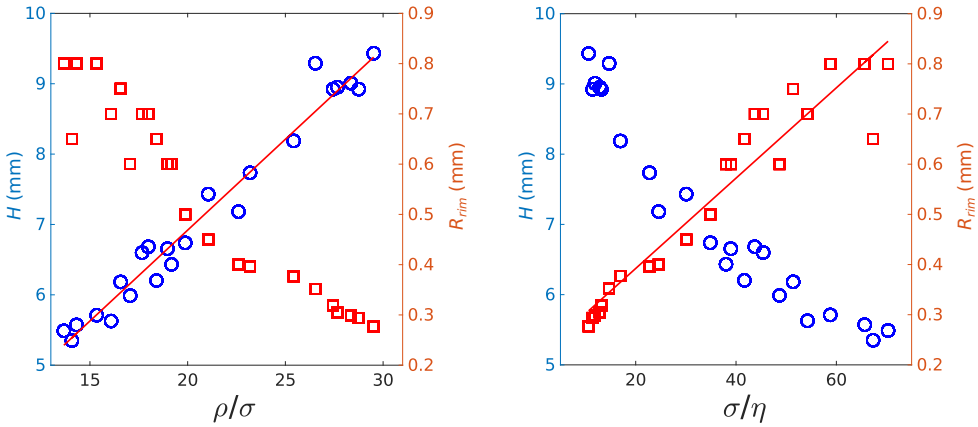

FIGURE 5.12 – H (blue circles) and R_{rim} (red squares) versus ρ/σ (left) and σ/η (right), which are proportional to Bo and Ca respectively, for aqueous solutions of ethanol. The red lines show a linear regression over the data for H (left) and R_{rim} (right).

It follows that the hydrodynamic behaviour of the crown is essentially governed by both the surface tension and the density of the liquid and attests to an essentially capillary flow. This behaviour can be understood by considering the energy conversion during the cavity and crown developments, and its distribution when both are at their maximum of development. Indeed, the cavity reaches its maximum depth at approximately the same time as the crown reaches its maximum height. For this time, the total energy E_{tot} can be written :

$$E_{tot} = E_s + E_p + E_k, \tag{5.1}$$

with E_s the surface energy, E_p the potential energy and E_k the kinetic energy. As both the crown and the cavity are considered to be at there maximum of development, they are motionless (before they start to collapse). Even if liquid transverse motion still exists in the liquid bulk, the kinetic energy can be considered negligible, i.e. $E_k \sim 0$.

Considering the cavity as an hemisphere and the crown as a hollow cylinder with an infinitely small thickness, E_s and E_p can be expressed as :

$$E_s = S\sigma, \tag{5.2}$$

$$E_p = \rho V g \frac{H}{2}, \tag{5.3}$$

with S the surface of the crown and the cavity, σ the surface tension, ρ the liquid density, V the crown volume, g the gravity constant and H the maximum height of the crown. E_s includes both the surface energy of the cavity E_{sCA} and the surface energy of the crown E_{sCR}, depending on the surface of the crown $S_{CR} \sim 2H2\pi R_{cav}$, and the cavity $S_{CA} \sim 2\pi R_{cav}^2$, respectively with R_{cav} the radius of the crown (which also corresponds to the cavity radius) and H its maximum height. Thus H can be written as :

$$H = \frac{E_{tot} - S_{CA}\sigma}{4\pi R_{cav}\sigma + \rho g \frac{V}{2}}. \tag{5.4}$$

As observed in the measurements, the cavity does not change when the surface tension changes and so does the total energy. Thus, S_{CA}, R_{cav}, V and E_{tot} can be kept constant.

Eq 5.4 shows that when the surface tension σ increases, H decreases and so does the density. The study of the derivatives of Eq. 5.4 shows that H is a lot more sensible to variations of σ than to variations of ρ. Therefore, this model is compared to experimental data plotted as a function of surface tension in Fig. 5.13. Unlike R_{cav} and V which can be deduced from the video footage, the value of E_{tot} is unknown, and considered as a fitting parameter of the model. The selected value is $E_{tot} = 9.10^{-5}$, which is coherent as it is equal to 60% of the kinetic energy of the initial impacting drop. The comparison between the model and the experimental data is quite satisfying.

5.2.4.2 Time of overpressure maximum

Given the previous conclusion on the rather capillary origin of the deployment of the crown, it is interesting to represent the time t_{max} as a function of H. The result is given in Fig. 5.14, which shows a linear dependence of t_{max} on H. From there, two hypotheses can be put forward.

The first hypothesis is that t_{max} directly depends on H (in the sense that H is the cause and t_{max} is the consequence). This relation can be understood by observing Fig 5.5 : it is visible that, the singular capillary wave starting from the crown rim, the higher the crown, the higher the traveling time of the singular capillary wave from the birth of the wave to its apex and the higher t_{max}.

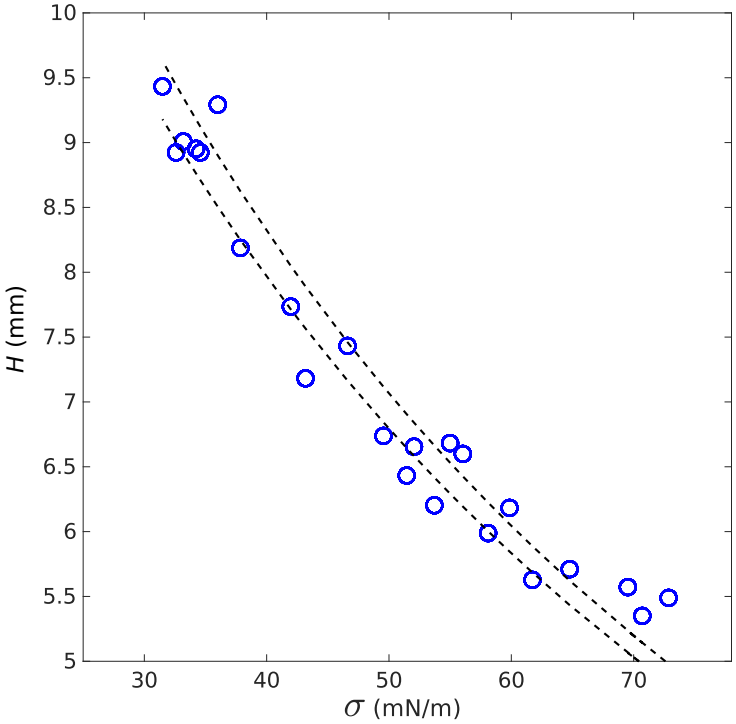

FIGURE 5.13 – Crown maximum height H as a function of surface tension σ, for aqueous solutions of ethanol. The dashed curves represent Eq. 5.4 for ρ =1000 kg/m^3 and ρ=925 kg/m^3.

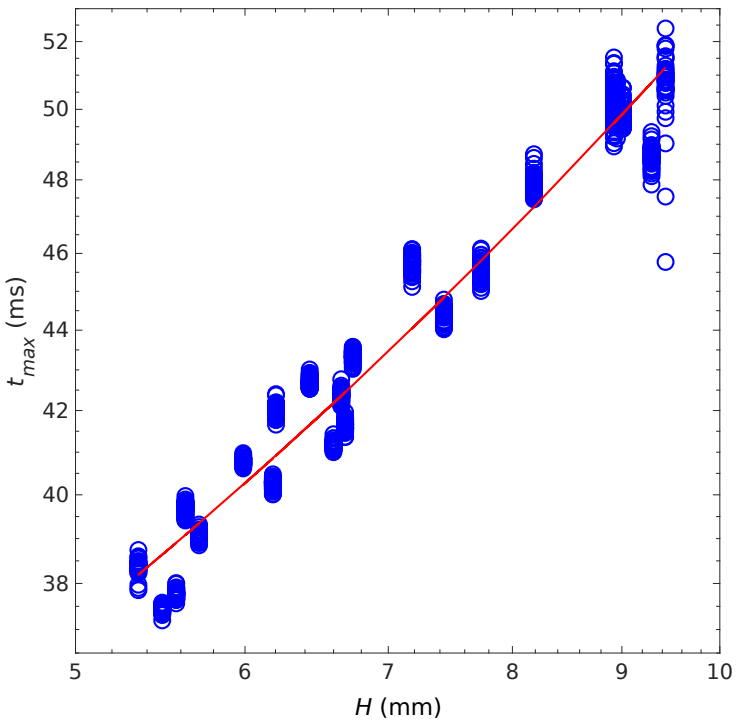

FIGURE 5.14 – Time t_{max} of the overpressure maximum as a function of the maximum height H of the crown for ethanol-based solutions. The red curve represent a linear regression over the data.

The second hypothesis is that t_{max} depends on ρ/σ, as it is the case for H (c.f. Fig. 5.12). Indeed, if we consider the singular capillary wave as a gravity wave propagating alongside the crown and the cavity, its celerity is proportional to $(\sigma/\rho)^{0.5}$ [140]. As t_{max} is inversely proportional to the wave celerity (the lower the wave celerity, the higher the delay), it is therefore linked to ρ/σ with a power law of order 0.5. As illustrated in Fig. 5.15, t_{max} shows indeed a strong correlation with ρ/σ in the form of a power law. However, the power law that fits the experimental data is of order 0.4, which is lower than expected for a gravity wave. The wave is therefore faster than expected.

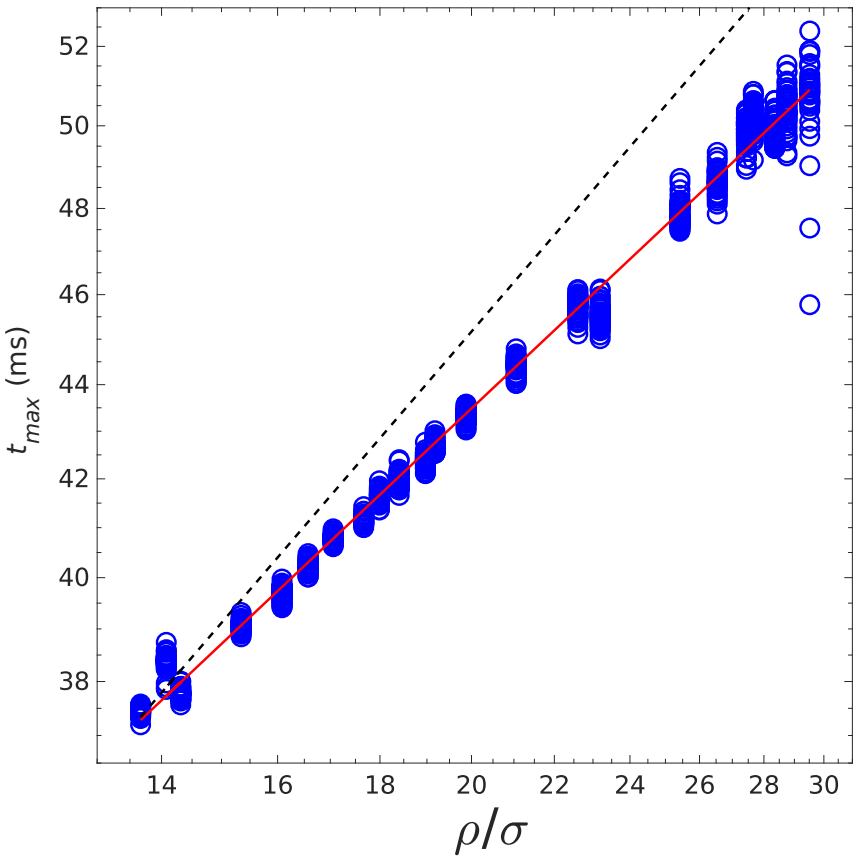

FIGURE 5.15 – Time t_{max} of the overpressure maximum as function of ρ/σ in Log/Log scale for ethanol-based aqueous solutions. The solid and dashed lines represent a power law of 0.4 and 0.5 respectively.

This difference can come from different aspects of the problem. First, the singular capillary wave is moving along a curved interface, when the theoretical celerity is given for flat interfaces. Moreover, the wave propagates alongside liquid layers with different depths (first the crown, with a thickness of the same order than the wave amplitude, and then

the cavity, with an infinitely deep liquid layer). Third, the wave is moving alongside the interface of a moving liquid. Indeed, as the singular capillary wave is propagating, the crown is collapsing and the cavity is retracting. So the wave celerity is added to the liquid velocity. The dynamics of the collapsing crown and cavity has therefore to be studied to estimate the corrected wave celerity. Lastly, as mentioned in the first hypothesis, the height at which the singular capillary wave starts to propagate depends on the crown height. Therefore, t_{max} does not depend only on the wave celerity but also the length of its path from the source to the apex. Moreover, for the configurations with the highest delay (for high ethanol concentrations), the cavity has already begun to retract when the singular capillary wave reaches the cavity, which shortens the path it has to travel.

The cause of the delay of the main capillary wave is therefore not completely understood yet. A detailed tracking of the wave during its propagation could bring complementary information. However, in our measurements, the singular capillary wave can be followed only when it propagates alongside the cavity, and not alongside the crown. Moreover, the amplitude of this wave decreases with decreasing surface tension, which makes it difficult to follow for low surface tensions. The study of the singular capillary wave propagation should be easier with numerical simulations, as it can be followed easily from the crown to the cavity thanks to a sectional view [25, 127].

Even if the evolution of t_{max} is not totally understood, the strong correlation with the liquid density and surface tension (Fig. 5.15) allows to consider a possible new method to measure these properties, with only the hydrophonic recording of a water drop impact. Measurements in the same conditions, but with other homogeneous liquid mixtures, will help to verify if this link between t_{max} and ρ/σ is universal or not.

5.2.5 Conclusion

A water drop impacting a liquid surface produces a cavity below and a crown above the surface, which develop then collapse to eject a Rayleigh jet. This dynamics induces specific variations of the hydrodynamic pressure into the liquid, which can be measured with an hydrophone. The modification of the liquid surface tension leads to a modification of the maximum height reached by the crown. The lower the surface tension, the higher the crown rises. During the collapse of the crown, a singular capillary wave propagates along the crown then the cavity, to focus at the apex of the cavity, which leads to an

overpressure on the hydrophonic signal. For various ethanol concentrations, the time at which the singular capillary wave reaches the cavity apex shows a delay which increases with increasing ethanol concentration, leading to a delay of the time when the overpressure maximum is observed. This delay can be due to the increase of the crown maximum height, or to the different celerity of the singular capillary wave, depending on the liquid surface tension and density. However, even if the origin of this delay is not completely understood yet, the strong relation between the time of the overpressure maximum and the liquid properties could be used to develop a new method to measure these properties.

5.3 Fast dynamics of surfactant probed by the acoustics of a drop impact

5.3.1 Introduction

Surfactants play a major role when they are involved in sub-second hydrodynamic events [141-143]. Their fast adsorption and the induced Marangoni flows can affect the behaviour of the interface during these events. Studying these changes can help better understanding the surfactants fast dynamics and even developing new techniques to measure the dynamic surface tension [144, 145].

A drop impact on a liquid surface leads to a succession of hydrodynamic events such as the formation of a cavity, which retracts to project a liquid jet, called Rayleigh or Worthington jet [20]. During these events, an air bubble can be entrapped in the liquid, generating a typical acoustic signal [39]. The time and the way the bubbles are entrapped in the liquid depend on the diameter and the velocity of the drop. Different bubble entrapment regimes are highlighted by Pumphrey *et al* [21]. Among them, the so-called "irregular entrainment" regime corresponds to high energy impact, and consists of bubble entrainment by secondary droplets during the Rayleigh jet collapse [37-39]. For this regime, a particular configuration, reported in [87], leads to a bubble entrainment by a highlighted new mechanism, called "liquid zip-like flow".

With non-pure water in the pool, the hydrodynamic events may change due to changes in liquid properties, such as surface tension or viscosity [47, 48, 50, 129, 133]. Likewise,

addition of polymers or fibers to the aqueous solution also modifies the jet dynamics [51], so does the use of non-newtonian fluids [146, 147].

As the sound produced by a drop impact depends on the post-impact dynamics, it is straightforward to deduce that modifying the liquid properties leads to modifications of the emitted sound. A well-known example concerns the "regular entrainment" regime, for which an addition of surfactant prevents the entrapment of a bubble, and therefore mutes the impact [5]. Concerning the higher energy impact regime studied in [87], the addition of surfactant leads to new mechanisms of bubble entrainment, with different acoustic signatures [98].

This paper presents a detailed study of the effect of adding surfactants on the acoustic signal as well as the related hydrodynamic events with a special focus on the Rayleigh jet features. Three surfactants with different dynamics at water/air interface are selected. The results highlight an universal effect of surfactant on the studied phenomena that is correlated to the critical micellar concentration (CMC) and Marangoni effect induced by the flow of the surfactant at the moving interface.

5.3.2 Material and Methods

A distilled water drop is generated by a Harvard Apparatus PhD Ultra syringe pump equipped with a 60 mL syringe connected to an Interchim Teflon cylindrical hose. The internal and external diameters of the hose are 1 mm and 1.5 mm respectively. The flow rate is set at 10 mL/h. So the drop diameter is 3.70 ± 0.05 mm. The height of the drop release is fixed to 74 cm from the liquid surface, so the measured speed of the impact, deduced by the footage, is about 3.32 ± 0.05 m/s.

The drop falls into a Plexiglas tank filled with an aqueous solution until its maximum height. The external dimensions of the tank are 160 × 160 × 110 mm^3, with 10 mm thick walls. The tank lays on four blocks of solid polymer foam in order to reduce vibrations transmission. The all set-up is fixed to a metallic structure to keep the same position between all the measurements. The experiments are performed in a semi-anechoic room with a cut-off frequency of 100 Hz. The temperature is quite constant at 19°C.

The tank is filled with different solutions of a given surfactant in distilled water at various concentrations. Three surfactant are used : 1) an anionic surfactant : sodium dodecyl sulfate (SDS) purchased from Fisher Scientific as an aqueous solution at 20 wt. % (Lot : 142978), 2) a nonionic surfactant : polyoxyéthylèneglycol dodécyl éther (Brij-35) purchased from Aldrich (Lot : S08035-503) and 3) a cationic surfactant : cetyltrimethylammonium bromide (CTAB) purchased from Acros Organics (Lot : A011462701). They all are used as received without any further purification.

The concentration is adjusted to cover a range from 0.02 to 12 times the surfactant CMC. After each concentration, the bath is left at least 20 min at rest before the measurements.

For each concentration, a sample of the bath is collected. Its equilibrium surface tension is measured with the bubble profile method using an automatic drop tensiometer (TRACKER, from Teclis Scientific, France). In addition, the dynamic surface tension is measured with the bubble pressure method (PocketDyne BP2100 from Krüss, Germany). The characteristic time of measurement is fixed at 90 ms with this last method.

For a given surfactant concentration, the acoustic signal in air is recorded for 50 impacts. At least 20 seconds separate two successive impacts to unsure a rest of the interface. A supplementary measurement is realized combining acoustic and video recordings.

The acoustic acquisitions are triggered by an infrared sensor module XCSource TE174, situated just underneath the hose and connected to an Arduino Mega card. The origin of time is set to be the instant of initial impact of the falling drop on the liquid surface. The acoustic signal is recorded in the air with a G.R.A.S microphone (Type 40 BP 1/4 in), connected to a G.R.A.S. preamplifier (Type 26AC 1/4 in), linked to a conditioning amplifier Brüel and Kjaer (Type 2690). The microphone is positioned 68 mm from the point of the impact. All signals are recorded with a Picoscope 4262 digital oscilloscope with a sampling rate of 500 kHz.

Each signal is denoised with a spectral subtraction algorithm to reduce the background noise [82, 84]. Then, the different acoustic events are detected by a home made Python algorithm, which uses a sliding window to calculate the local energy along the signal and

then detect the local maxima above a given threshold. These maxima correspond to the initial impact and the beginning of the different acoustic events afterwards.

5.3.3 Results

In the "irregular entrainment" regime, the airborne acoustic signal of a drop impact on a liquid surface shows two main parts : the initial impact and the bubble sound event [87]. The initial impact part shows only a sharp pressure impulse due to the drop impact on the liquid surface without any specific frequency. The bubble sound part shows one or several damped sines, characteristic of bubble free vibrations. These bubbles are entrained in the liquid during the Rayleigh jet collapse, mostly because of the impact of the secondary droplets detached from the jet.

Fifty drop impact sounds and one video are recorded for each concentration. An overlay of airborne signals for different concentrations of SDS is shown in Fig. 5.16. As the initial impact part shows no differences between signals, the bubble sound part shows a greater variability with SDS concentration. However, the acoustic events are gathered in several distinct groups for a given concentration bath. For example, Fig. 5.16-c shows three distinct signal clusters, around 0.15, 0.17 and 0.2 s. Indeed, at the same concentration, the bubble entrainment leading to the acoustic events happen globally at the same time for all measurements, but with slight variations due to little differences in the secondary droplets detachment.

Indeed, as reported in [98], the initial impact part of the signal does not show significant variation when surfactant is added to water. However, the bubble sound part displays important changes in presence of surfactant. The number and the starting time of the acoustic events evolve with the surfactant concentration. Thus, on Fig. 5.16, the number and starting time of the acoustic events evolve between the concentrations, from only one event around 0.125 s for a concentration of 0.02 x CMC to three events for higher concentrations, with an increasing starting time, and then back to only one event around 0.16 s for a concentration of 1.18 x CMC.

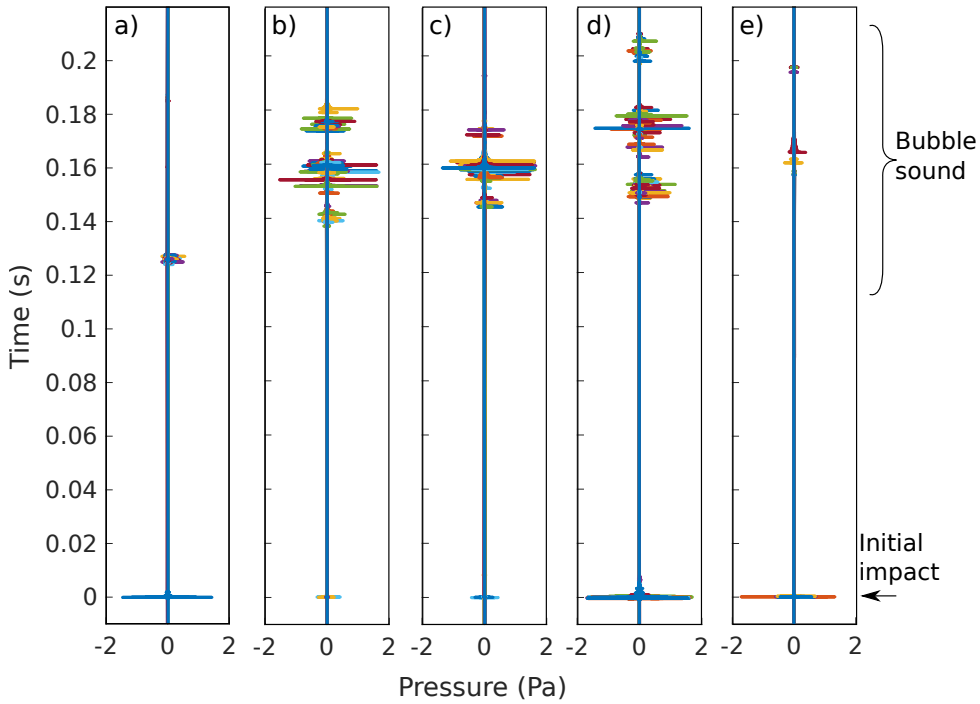

FIGURE 5.16 – Overlay of 50 microphone signals of a drop impact on aqueous solutions of SDS at a concentration of a) 0.02 x CMC, b) 0.12 x CMC, c) 0.24 x CMC, d) 0.59 x CMC, e) 1.18 x CMC. Each impact is represented in a different color.

As the starting time of the acoustic events forms distinct groups, they can be easily identified with a simple clustering algorithm. The different acoustic events for each concentrations are thus defined by a mean starting time with a standard deviation, indicating the low variability between measurements. Fig. 5.17 shows the starting times of the acoustic events as a function of concentrations for three different surfactants : SDS, CTAB and Brij35. As mentioned before, the three different surfactants display various acoustic events on the concentrations range. However, a common behaviour is observable in the three graphs : the event starting times increase globally and then decrease with the concentration, with an inflexion point at about CMC/3, independently of the chemistry of the surfactant.

The different acoustic events are generated during the Rayleigh jet collapse, and so depend on its dynamics [87, 98]. Five different families were identified in [98] and described regarding their hydrodynamic features and acoustic signature, in air and underwater.

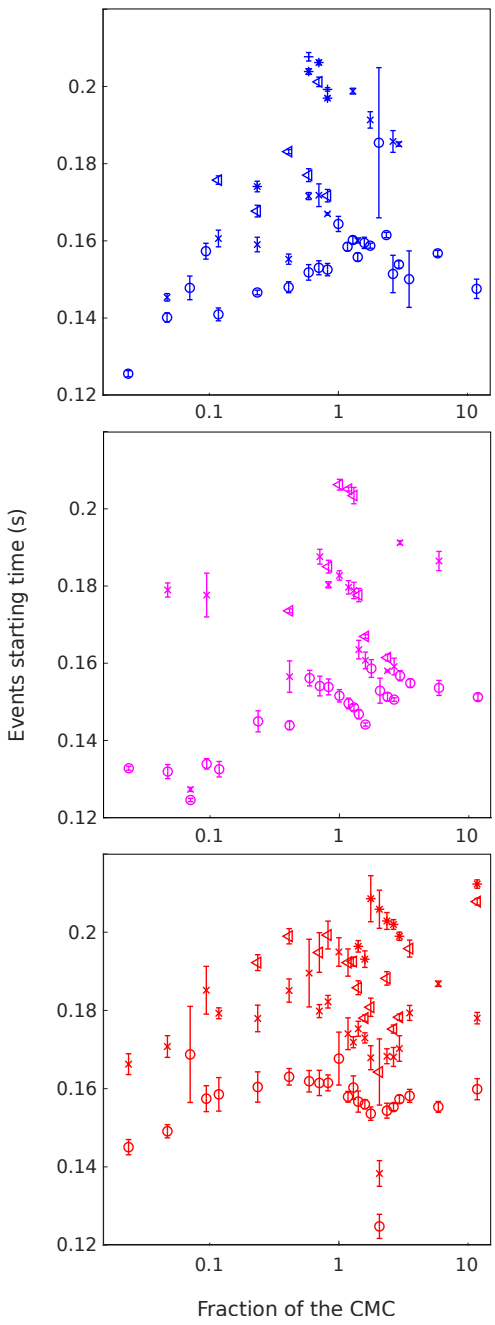

FIGURE 5.17 – Starting time of the microphone acoustic events as a function of the CMC fraction for SDS (blue, top), CTAB (magenta, middle) and Brij35 (red, bottom).

The video footage shows indeed different Rayleigh jet dynamics, especially its maximum height, depending on the surfactant concentration, as shown in Fig. 5.18 for SDS. It is noticeable that the height variation is not monotonous with the concentration.

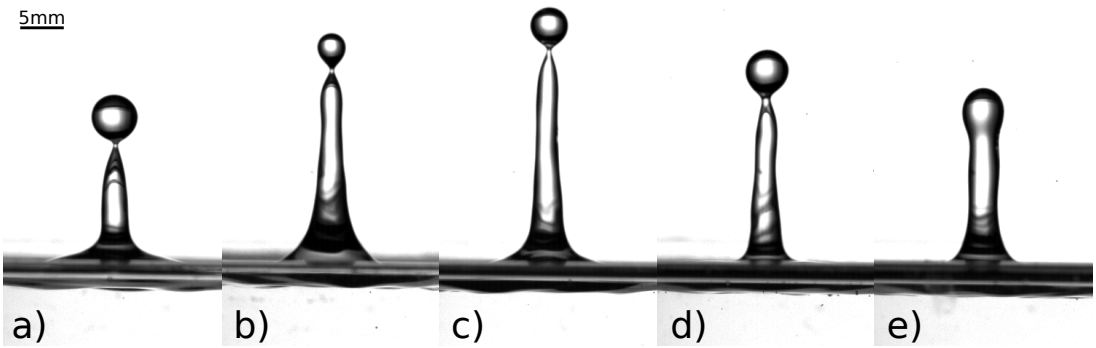

FIGURE 5.18 – Footage of the Rayleigh jet at its maximum height for water with SDS at concentrations of a) 0.02 x CMC at t =98 ms, b) 0.12 x CMC at t =83 ms, c) 0.24 x CMC at t =98 ms, d) 0.59 x CMC at t =111 ms, e) 1.18 x CMC at t =106 ms.

The maximum height of the Rayleigh jet, observed on the video associated to each concentration, is plotted versus the concentration for the three surfactants on Fig. 5.19. Similarly to the starting time of the acoustic events, the maximum height increases with the concentration until a maximum and then decreases toward a plateau for higher concentrations. This behaviour is similar for the three surfactants. Moreover, it is noticeable that the jets obtained with Brij-35 are globally higher than those obtained with SDS and CTAB for the same CMC ratio.

To go further in the analysis of the hydrodynamics of the Rayleigh jet, we have also determined its speed and acceleration at its emergence. The jet initial speed is measured on several frames when it appears above the surface on the video footage. The results are shown on Fig. 5.20. Again, the behaviour is similar for the three surfactants. The initial speed is quite constant below the CMC, with little variations mostly due to the jet tip dynamics. Above the CMC, the speed decreases with the concentration until a stabilization for high concentrations that is slightly higher for Brij35. The jet speed is about the same for SDS and CTAB.

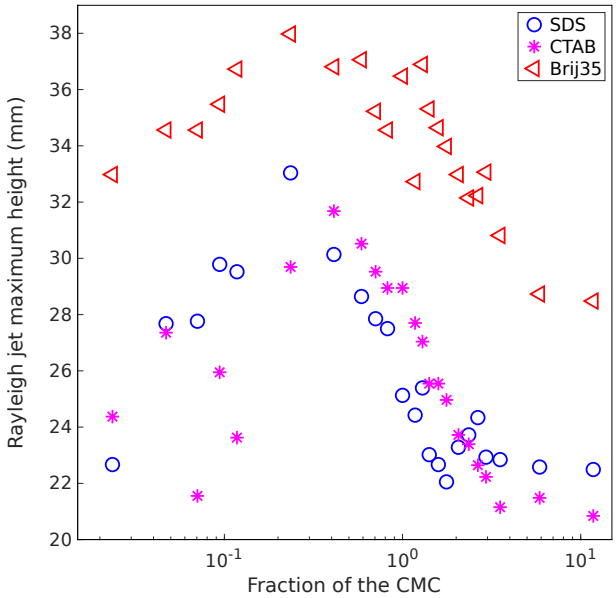

FIGURE 5.19 – The maximum height of the Rayleigh jet for SDS (circle, blue), CTAB (star, purple) and Brij35 (triangle, red).

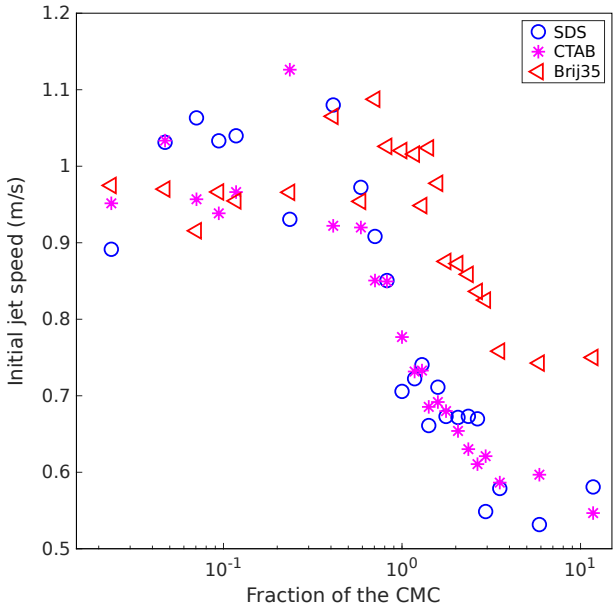

FIGURE 5.20 – Initial speed of the Rayleigh jet for SDS (circle, blue), CTAB (star, purple) and Brij35 (triangle, red).

The acceleration, which is considered positive in the downward direction, is measured during the jet rise. As shown by [148], the jet acceleration is high during the beginning of the jet rise, then decreases rapidly to stabilize for the rest of the rise. A similar behaviour is observed on our measurements, so we report only the steady value of the acceleration. The results, higher than 9.81 m/s^2, are plotted on Fig. 5.21. For the three surfactants, the acceleration decreases with the concentration and then increases around the CMC. However, the minimum value is quite different from one surfactant to another. The highest value is obtained for SDS and the lowest one with Brij35.

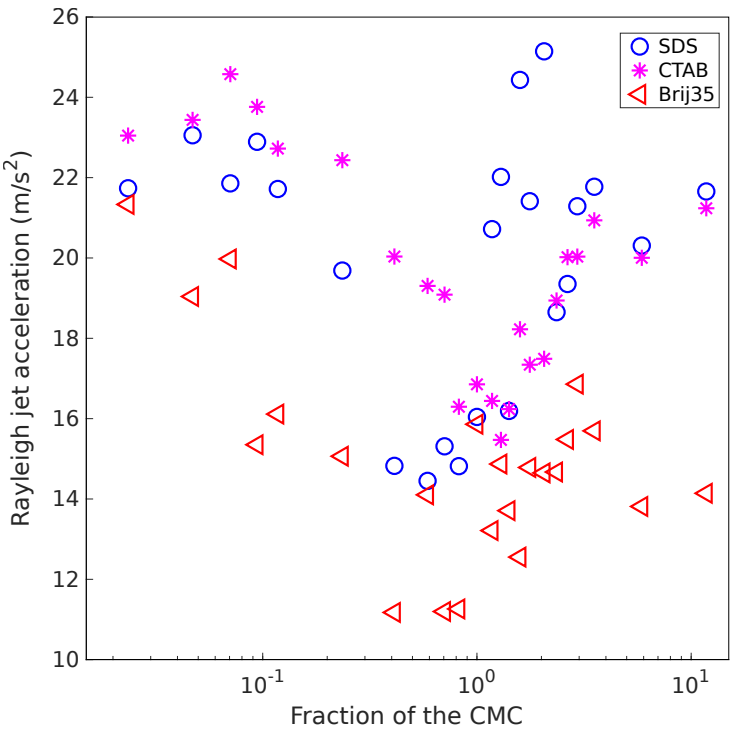

FIGURE 5.21 – Rayleigh jet acceleration during its rise for SDS (circle, blue), CTAB (star, purple) and Brij35 (triangle, red).

5.3.4 Discussion

The particular behaviour of the starting time of the acoustic events is, undoubtedly, linked to the variation of the maximum height of the Rayleigh jet. Indeed, the acoustic events are generated by the impact of the secondary droplets on the cavity resulting from

the disappearance of the jet [87]. The secondary droplet generally detaches when the jet is at its maximum height. The higher the jet, the higher the position of the detachment of the secondary droplet, the later the impact of this secondary droplet, the later the acoustic event. The measurements indeed show a later start time for the highest Rayleigh jets.

If we ignore the viscothermal losses during its development, the maximum height of the Rayleigh jet mostly depends on its initial velocity and on the forces acting on it (corresponding to its acceleration) [88]. However, as seen on Fig. 5.20 and 5.21, both the initial speed and the acceleration of the jet change according to the fraction of CMC. Moreover, neither the initial speed nor the acceleration follows the same trend as the maximum height. Indeed, as the jet maximum height shows an increase and a decrease with a maximum at about one third of the CMC, the initial velocity is quite constant until approximately the CMC, then decreases sharply. Concerning the acceleration, although it shows a decrease and an increase for the three surfactants, the position of the minimum does not fit completely with the position of the maximum h_{max}. Thus neither the initial velocity nor the acceleration can explain separately the behaviour of h_{max}.

However, by considering the jet simply as an object projected vertically upward with an initial velocity V_i and undergoing an acceleration a, the evolution of its height h_{jet} as a function of the time t follows a parabolic curve, expressed as :

$$h_{jet} = -\frac{at^2}{2} + V_i t + h_0, \tag{5.5}$$

with h_0 the height at $t = 0$, corresponding also to the time at which the initial velocity V_i is measured. In our configuration, h_0 is about 8 mm. Thus, the maximum height h_{max} is reached for a time $t = \frac{V_i}{a}$, which gives :

$$h_{max} = \frac{V_i^2}{a} + h_0. \tag{5.6}$$

Fig. 5.22 shows h_{max} as a function of V_i^2/a. The equation 5.6 is represented by a black line and shows a quite satisfying agreement with the experimental data. The points greyed out at the right of the graph, corresponding to heights lower than predicted by the model, are due to cases when a secondary droplet detaches from the jet during its rise, which leads

to energy losses and therefore to lower maximum height considering the initial speed and acceleration. The maximum height of the jet is therefore driven by a combination between its initial velocity and the acceleration it undergoes.

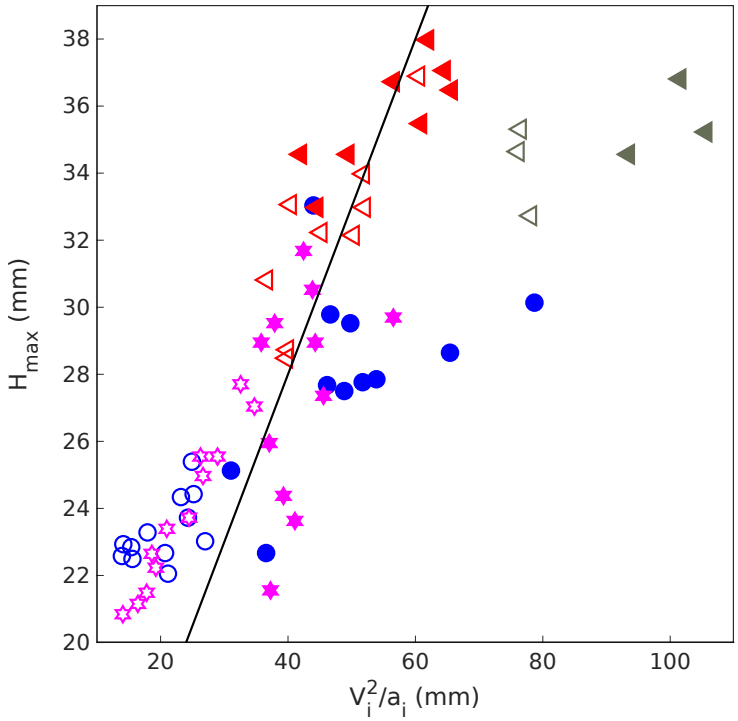

FIGURE 5.22 – Maximum height of the Rayleigh jet as a function of jet initial speed and acceleration for SDS (blue circle), CTAB (purple star) and Brij35 (red triangle). The filled and unfilled symbols correspond to concentrations below and above the CMC respectively. The black line represents equation 5.6. The greyed out points represent cases when a secondary droplet detaches during the jet rise.

As the behaviour of h_{max} is explained by the jet initial velocity and acceleration, the behaviour of these two parameters can be explained by considering the liquid properties, therefore linking them to h_{max}, and by extension to the acoustic events starting time.

First, the initial velocity displays a common behaviour for the three surfactants, i.e. no great changes before the CMC, and then a significant decrease with the concentration from the CMC. Since the flow velocity is directly involved in the viscous dissipation of the fluid, we are tempted to correlate its behaviour with that of the viscosity of surfactant solutions. Indeed, the viscosity is quite constant under the surfactant CMC, and then rises significantly above the CMC [149, 150]. This is due to the formation of micelles in the

liquid which increases the hydrodynamic radius of the suspended particle. As shown by [88], viscothermal losses are great during the jet ejection. These losses can be increased by the increase of viscosity, leading to a lower kinetic energy for the jet, and therefore a lower initial speed.

Concerning the acceleration, its value depends on all the forces acting on the jet. The forces which can be identified are gravity and surface tension forces. As the gravity forces do not change with the concentration, because the variations of the solutions density are quite negligible, a change of the surface tension forces is considered to explain the changes of the acceleration. However, surface tension is known to decrease with the surfactant concentration until the CMC, where it becomes constant for increasing concentration. The acceleration displays instead a decrease then an increase, with the minimum before the CMC. So the surface tension forces can not explain the particular behaviour of the acceleration. Moreover, studies report that the surface tension has no significant influence on the maximum height of the Rayleigh jet [51].

In order to verify the low influence of surface tension forces on the maximum height of the Rayleigh jet, similar measurements are performed for water drop impact on water/ethanol mixtures. The results are plotted in Fig. 5.23. No particular tendency of h_{max} is observed as a function of surface tension, which confirms that h_{max} is influenced by other surfactant features.

During the cavity and jet formations, a new surface is created. As the surfactant adsorption at the interface is not instantaneous, this new surface is necessarily poorer in surfactant. As a result, the surface tension is inevitably higher than the surface around and at rest. A gradient of surface tension is created at the air/water interface, which leads to the apparition of tangential flows along the interface, called Marangoni flows. These flows are directed from the point of lowest to the point of highest surface tension. In the case of the Rayleigh jet, its surface is newly created and thus has a higher surface tension than the rest of the surface, so the Marangoni flows are directed in the same way as the jet flows. A similar phenomenon involving Marangoni flows is reported for water drop impact on ethanol [128]. The Marangoni flow speed is proportional to the surface tension difference between the higher and the lower points. The surface tension of the liquid at rest corresponds to the equilibrium surface tension of the liquid. The dynamic

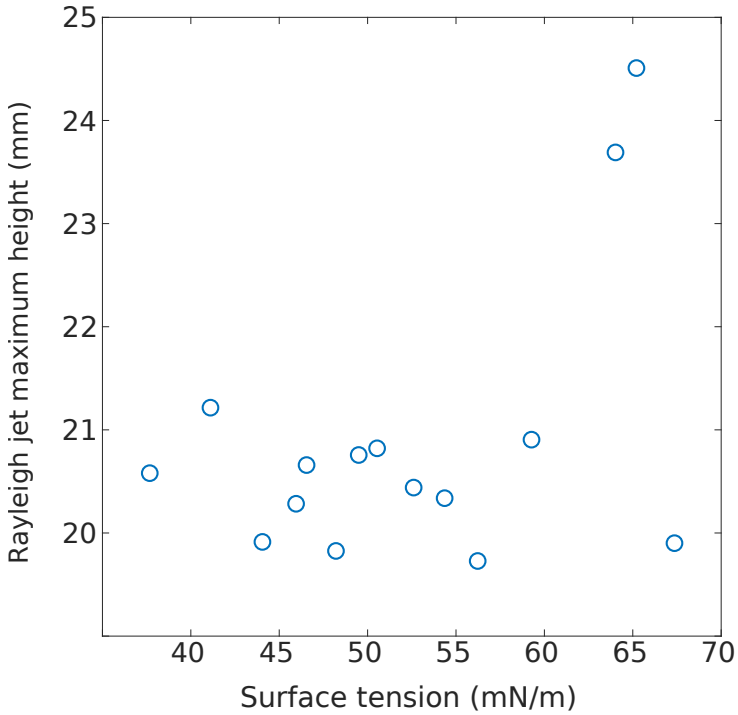

FIGURE 5.23 – Maximum height of the Rayleigh jet as a function of surface tension for aqueous solutions of ethanol, at various concentrations.

surface tension of the jet is estimated with dynamic surface tension measurements at a time of 90 ms, which is the characteristic time of the jet formation. Both surface tensions are plotted at different concentrations for the three surfactants tested on Fig. 5.24. The equilibrium surface tension displays the expected behaviour, i.e. a decrease with the concentration until a stabilization at the CMC. However, the dynamic surface tension displays a different behaviour, with almost no changes for low concentrations, then a decrease with the concentration. This offset between the two curves leads to a rise and a decrease of the surface tension difference, with a maximum at the same concentrations as the minimum of acceleration. Therefore, the higher the surface tension difference, the lower the acceleration. Indeed, the forces induced by the Marangoni flows act against the gravity and surface tension forces, lowering the acceleration undergone by the jet. Indeed, Fig. 5.25 shows the value of acceleration as a function of the surface tension difference for the three surfactants. A clear linear law is visible, showing that the Marangoni flows are mainly responsible for the acceleration behaviour.

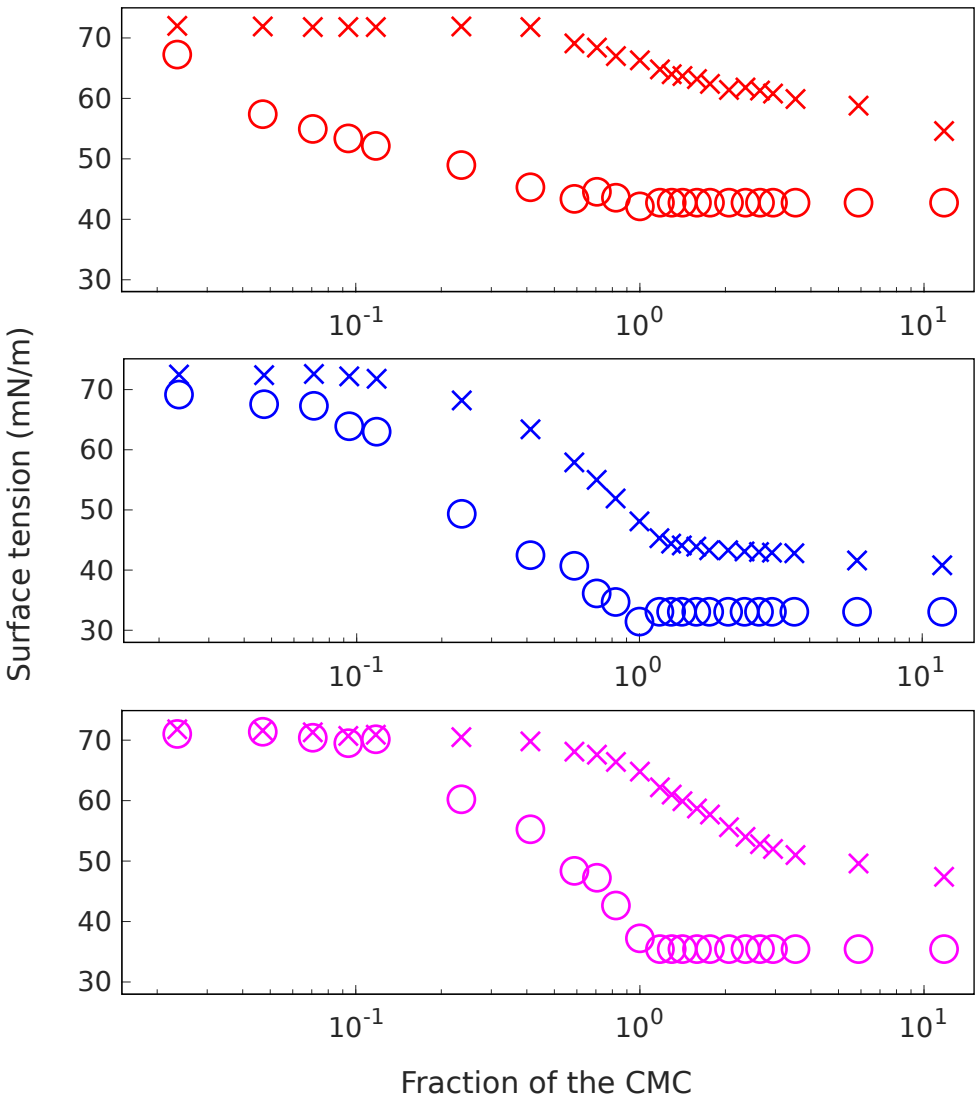

FIGURE 5.24 – Equilibrium (circle) and dynamic (cross) surface tensions of Brij-35 (top, red), SDS (middle, blue) and CTAB (bottom, purple) as a function of the fraction of the CMC.

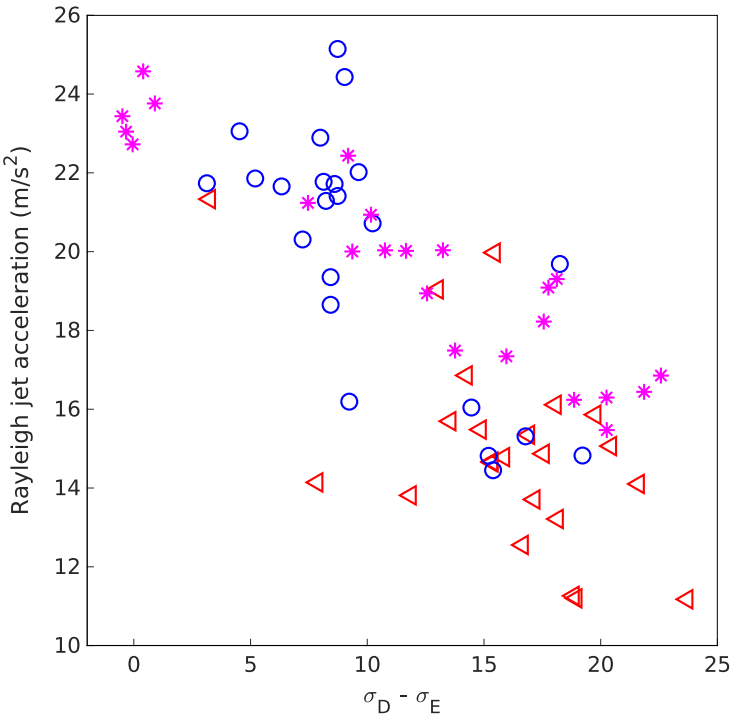

FIGURE 5.25 – Rayleigh jet acceleration as a function of the difference between dynamic and equilibrium surface tensions for SDS (circle, blue), CTAB (star, purple) and Brij35 (triangle, red).

5.3.5 Conclusion

The effect of surfactant on the dynamics and acoustics of a water drop impacting a pool of aqueous solution is studied. A common behaviour is observed concerning the evolution of the maximum height of the Rayleigh jet for three different surfactants, when the surfactant concentration is normalized by its CMC. In particular, the maximum height of the Rayleigh jet shows a maximum around the CMC/3. This feature is also observed on the starting time of the acoustic events where a maximum is also observed around CMC/3.

On one hand, the variation of the jet height is linked to the increase of viscosity above the CMC, and on the other hand, to the presence of Marangoni flows, which take place because of the surface tension gradient between the bath surface at rest and the newly created surface of the jet. This phenomenon is responsible of the acceleration of the jet

and allows to understand the subtile differences between the surfactants. Note that the presence of Marangoni flows has already been observed in the case of drop impact [128] but was not related to the acoustic of the impact nor to the features of surfactants. The acoustic signature of the drop impact is revealed to be an efficient tool to investigate the CMC of surfactant but also to distinguish them by their fast dynamic behaviour. In order to quantify more precisely these results, numerical simulations of drop could be made by taking into account the surfactant dynamics.

5.4 Impact d'une goutte d'eau sur une solution de protéines

5.4.1 Introduction

Dans l'étude de l'influence de la tension de surface sur l'impact d'une goutte, deux configurations ont été étudiées en détail : la modification de tension de surface d'une part par ajout de tensioactifs (section 5.3) et d'autre part par mélange avec d'autres liquides miscibles (section 5.2). La tension de surface peut cependant être modifiée d'autres manières. Ici, le choix est fait d'utiliser des protéines. En effet, les protéines ont des propriétés tensioactives, elles s'adsorbent naturellement à l'interface eau/air [151]. Les protéines utilisées dans cette étude sont la caséine et l'ovalbumine. Ces protéines, d'origine animale, sont largement utilisées dans l'industrie alimentaire, principalement pour leurs propriétés de surface, permettant de favoriser la formation d'émulsions et de mousses [152-154]. Cependant, le comportement des protéines adsorbées à l'interface est différent de celui des tensioactifs : elles sont beaucoup moins mobiles et peuvent même former une sorte de film viscoélastique [155]. Leur dynamique d'adsorption est également beaucoup plus lente que celle des tensioactifs utilisés [156]. L'objectif de cette étude est de comparer l'effet des protéines sur l'impact d'une goutte à l'effet des tensioactifs étudiés, et de mettre en évidence d'éventuels effets particuliers sur l'hydrodynamique et l'acoustique de l'impact. Cette partie regroupe les premiers résultats et observations concernant ces mesures.

5.4.2 Caséine

La caséine est une protéine issue du lait. C'est une macro-molécule amphiphile, c'est-à-dire constituée d'un groupe hydrophobe et d'un groupe hydrophile, comme les molécules de tensioactifs étudiées précédemment. Ainsi, les molécules de caséine colonisent l'interface eau/air quand elles sont mélangées avec de l'eau, modifiant donc la tension interfaciale. Cependant, la taille des molécules de caséine est beaucoup plus importante que celle des molécules de tensioactif étudiées jusque-là. Par conséquent, leur dynamique d'adsorption est beaucoup plus lente.

Dans cette étude, la caséine micellaire est utilisée. Il s'agit de molécules de caséine regroupées sous forme de micelles, d'une manière similaire aux tensioactifs mais sous la forme d'une structuration beaucoup plus complexe. Le temps d'apparition des événements acoustiques, ainsi que la dynamique du jet de Rayleigh sont observés, afin de mettre en lien leur évolution en fonction de la concentration de caséine micellaire.

5.4.2.1 Temps d'apparition des événements acoustiques

L'observation du temps d'apparition des événements acoustiques (Fig. 5.26) permet de noter une différence importante dès l'ajout de caséine au bain d'eau. En effet, alors qu'un seul événement est observé aux alentours de 125 ms pour le cas de l'eau pure (correspondant à l'emprisonnement d'une bulle par un mécanisme de "zip-like flow"), plusieurs événements sont observés pour des solutions de caséine, dont le premier apparaît après 140 ms. De la même manière que pour l'étude avec des tensioactifs, détaillée en section 5.3, une augmentation du temps d'apparition des événements acoustiques est probablement associée à une augmentation de la taille maximale du jet de Rayleigh. Ce paramètre est étudié dans la section 5.4.2.2.

5.4.2.2 Hauteur du jet de Rayleigh

De la même manière que dans le cas des tensioactifs (cf. section 5.3), le temps de démarrage des événements acoustiques est lié à la hauteur maximale du jet de Rayleigh. En effet, plus la hauteur maximale atteinte par le jet de Rayleigh est élevée, plus les gouttelettes secondaires détachées du jet impactent la surface tardivement.

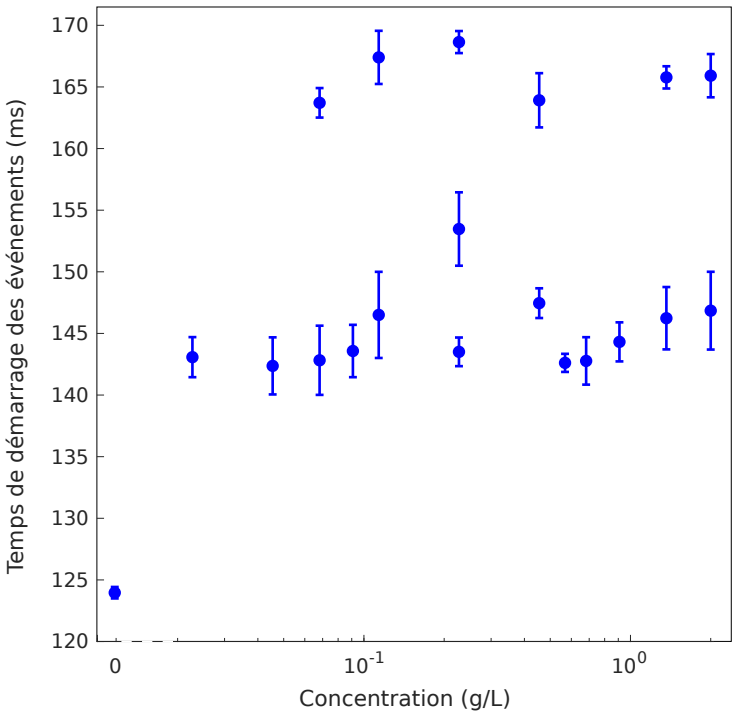

FIGURE 5.26 – Temps de démarrage des événements acoustiques pour différentes concentrations de caséine.

La Fig. 5.27 présente la hauteur maximale du jet de Rayleigh en fonction de la concentration en caséine. Cette hauteur maximale augmente rapidement avec la concentration, puis semble se stabiliser aux alentours d'environ 0.6 g/L. Ce comportement ressemble au comportement du jet pour des solutions de tensioactif, pour des concentrations inférieures à un tiers de la CMC.

5.4.2.3 Analyse à partir des paramètres de la solution de caséine

Dans le cas des solutions de tensioactif, l'augmentation de la hauteur maximale du jet de Rayleigh est expliquée par l'apparition de flux de Marangoni, qui compensent en partie les forces de gravité qui retiennent le jet. Ces flux de Marangoni sont dus au gradient de tension de surface entre le jet, qui a une surface "neuve" et donc peu peuplée en molécules de tensioactif, et le reste du bain, qui est plus peuplé en molécules de tensioactif, et donc de tension de surface plus faible. Ce phénomène est dû à la dynamique des molécules de tensioactif, qui s'adsorbent progressivement sur une interface nouvelle.

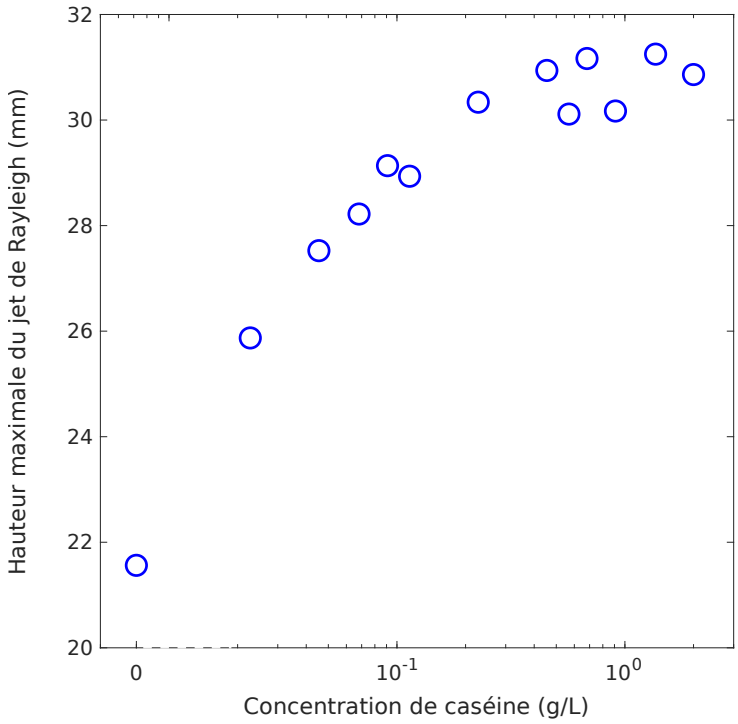

FIGURE 5.27 – Hauteur maximale du jet de Rayeigh en fonction de la concentration en caséine.

Le comportement des micelles de caséine est similaire à celui des tensioactifs, c'est-à-dire qu'elles s'adsorbent progressivement à l'interface. En effet, une mesure de l'évolution de la tension de surface dans le temps pour une solution aqueuse de micelles de caséine, présentée en Fig. 5.28, montre une diminution progressive de la tension de surface jusqu'à un plateau, correspondant à l'équilibre. Ainsi, il est possible que les phénomènes influençant la formation du jet de Rayleigh dans le cas des tensioactifs soient similaires dans le cas de la caséine. Pour le vérifier, la tension de surface dynamique des différentes solutions de caséine est mesurée, à un temps caractéristique de 90 ms (qui correspond au temps caractéristique de formation du jet). Le gradient de tension de surface présent entre le jet et le reste du bain est ainsi estimé en soustrayant la tension de surface dynamique à la tension de surface à l'équilibre. Les résultats sont présentés en Fig. 5.29. La différence de tension de surface augmente rapidement avec la concentration, et se stabilise au-dessus de 0.1 g/L. Ce comportement est similaire au comportement de la taille maximale du jet de Rayleigh (Fig. 5.27). Ainsi, l'apparition d'écoulements de Marangoni peut expliquer l'augmentation de la taille maximale du jet de Rayleigh, et donc le retard des événements acoustiques.

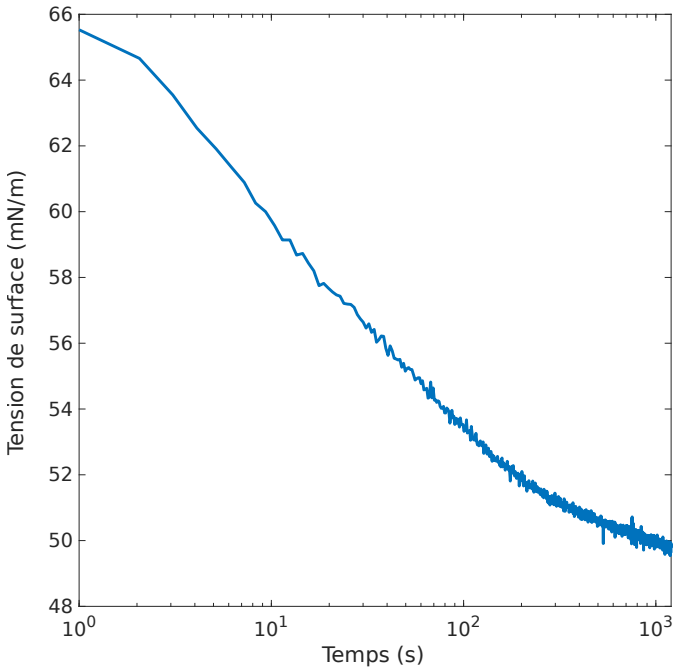

FIGURE 5.28 – Évolution de la tension de surface en fonction du temps pour une solution d'eau et de micelles de caséine à une concentration de 0.11 g/L.

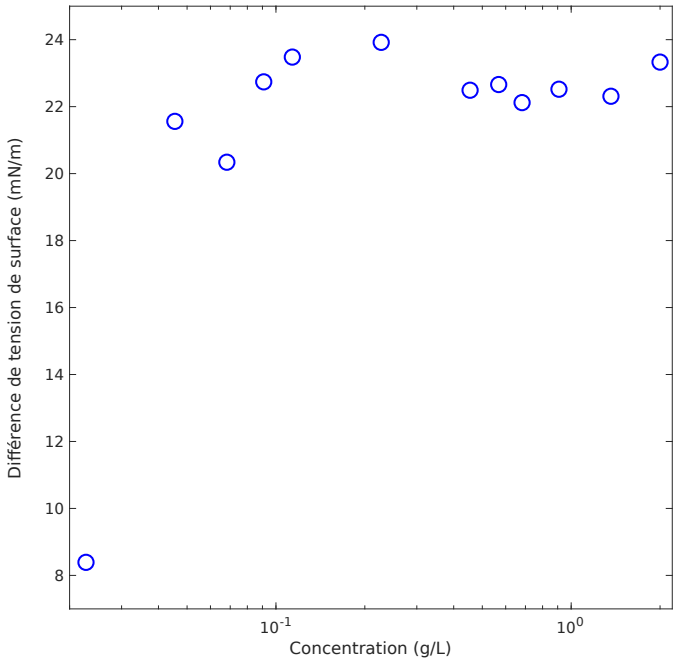

FIGURE 5.29 – Estimation de la différence entre la tension de surface dynamique et la tension de surface au repos pour plusieurs concentrations de caséine.

La caséine semble se comporter comme les tensioactifs en-dessous du tiers de la CMC, c'est-à-dire révélant une augmentation de la hauteur maximale du jet de Rayleigh (et donc du temps de démarrage des événements acoustiques) avec la concentration. Cependant, dans le cas des tensioactifs, la hauteur maximale du jet de Rayleigh en fonction de la concentration diminue après avoir atteint son maximum (Fig. 5.19), ce qui n'est pas observé sur les mesures avec la caséine. Une diminution du jet de Rayleigh pourrait pourtant être attendue pour des concentrations plus élevées. En effet, la tension de surface à l'équilibre, affichée en Fig. 5.30, ne diminue plus à partir de 0.1 g/L. Ceci est dû à la saturation de l'interface en protéines. Or, pour des concentrations plus élevées, l'adsorption des protéines à l'interface se fait plus rapidement. La Fig. 5.31 montre l'évolution de la tension de surface dynamique en fonction du temps pour des concentrations de 0.9 g/L et 1.4 g/L. Il est bien visible que la tension de surface diminue plus rapidement pour la concentration la plus élevée, alors que la tension de surface à l'équilibre est la même. Ainsi, l'augmentation de la vitesse d'adsorption avec la concentration, pour une tension de surface à l'équilibre constante, entraîne une diminution du gradient de tension de surface entre le jet de Rayleigh et le reste de la surface au repos avec la concentration, comme dans le cas des tensioactifs. Il est donc attendu que la caséine présente également un pic comme pour les tensioactifs, ce qui pourrait être confirmé par des mesures à des concentrations plus élevées.

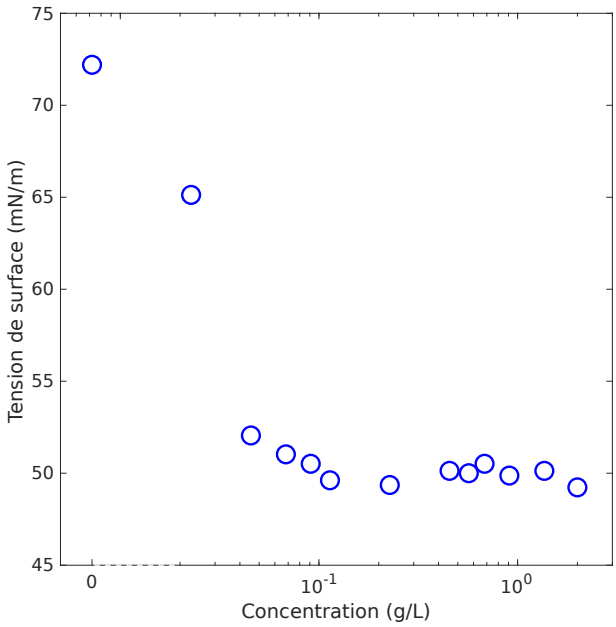

FIGURE 5.30 – Tension de surface en fonction de la concentration en caséine micellaire.

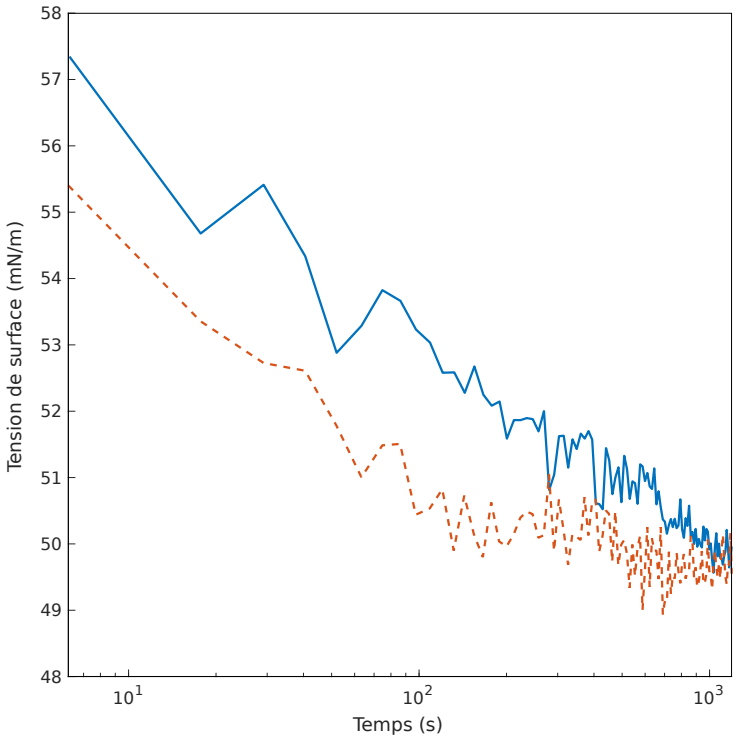

FIGURE 5.31 – Évolution de la tension de surface en fonction du temps pour une solution de caséine à une concentration de 0.9 g/L (ligne bleue) et de 1.4 g/L (tirets oranges).

5.4.2.4 Autres paramètres du jet

La hauteur maximale du jet de Rayleigh n'est pas le seul paramètre du jet à varier avec la concentration en caséines. En effet, la Fig. 5.32 montre le jet de Rayleigh à son maximum de hauteur pour quatre concentrations de caséine. En plus de la hauteur maximale d'autant plus élevée que la concentration est élevée, les diamètres du jet de Rayleigh et de la première gouttelette secondaire semblent diminuer avec la concentration. La Fig. 5.33, montrant l'évolution de ces deux diamètres avec la concentration en caséine, confirme cette observation. L'amincissement du jet quand sa hauteur maximale augmente est aussi observé dans le cas des tensioactifs. La diminution du diamètre de la première gouttelette secondaire quand le diamètre du jet diminue est attendue, car le diamètre des gouttelettes secondaires est généralement proche de celui du jet [47].

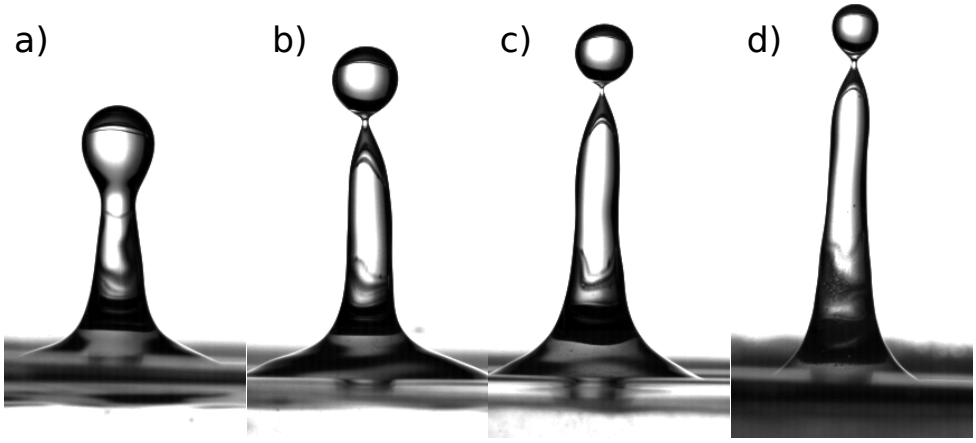

FIGURE 5.32 – Image du jet de Rayleigh à sa hauteur maximale pour quatre concentrations de caséine : a) 0 g/L, b) 0.02 g/L, c) 0.05 g/L d) 0.45 g/L.

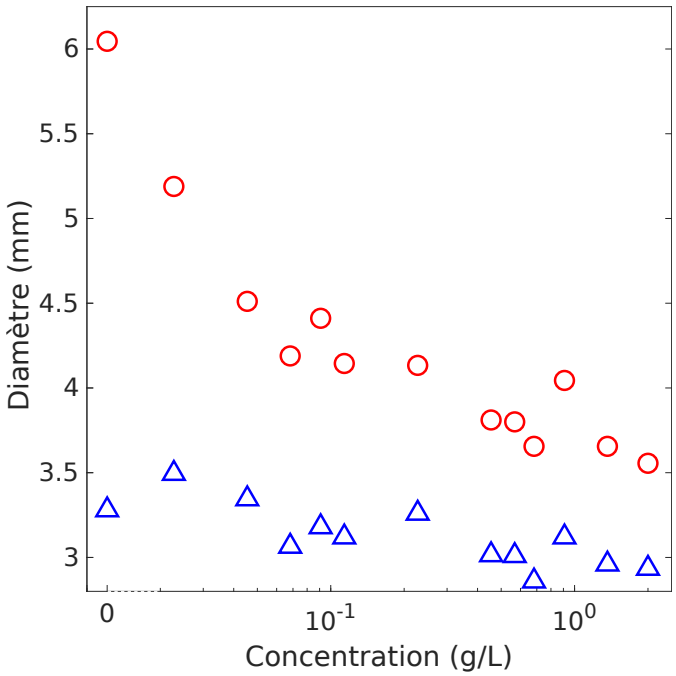

FIGURE 5.33 – Diamètre du jet de Rayleigh (triangle bleu) et de la première gouttelette secondaire (cercle rouge) en fonction de la concentration en caséine.

La première gouttelette secondaire se détache quand le jet a atteint sa hauteur maximale. La hauteur maximale du jet augmentant avec la concentration en caséine, il est attendu que cette gouttelette se détache de plus en plus tard avec la concentration, le jet montant de plus en plus haut. Cependant, la Fig. 5.34 montre le temps de détachement de la première gouttelette secondaire en fonction de la concentration en caséine. Ce temps de détachement est défini comme le temps entre le moment où le jet commence à émerger (le moment où il est visible sur la vidéo) et le moment où la première gouttelette secondaire se détache. Contrairement à ce qui est attendu, ce temps diminue avec la concentration. Ainsi, plus la gouttelette secondaire se détache à une hauteur importante, plus elle se détache tôt. En effet, la Fig. 5.35 montre la vitesse moyenne du jet durant son ascension en fonction de la concentration en caséine. Le jet monte d'autant plus vite que la concentration augmente. De plus, en reliant cela avec le diamètre du jet, en Fig. 5.33, il apparaît que plus le jet est rapide, plus son diamètre est faible. Cette observation est également reportée par d'autres études, dans des situations variées [30, 48].

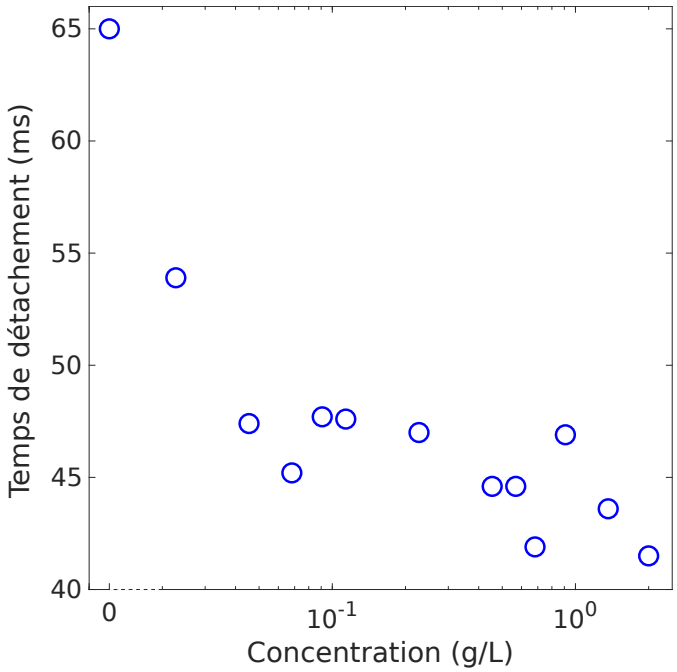

FIGURE 5.34 – Temps de détachement de la première gouttelette secondaire en fonction de la concentration en caséine.

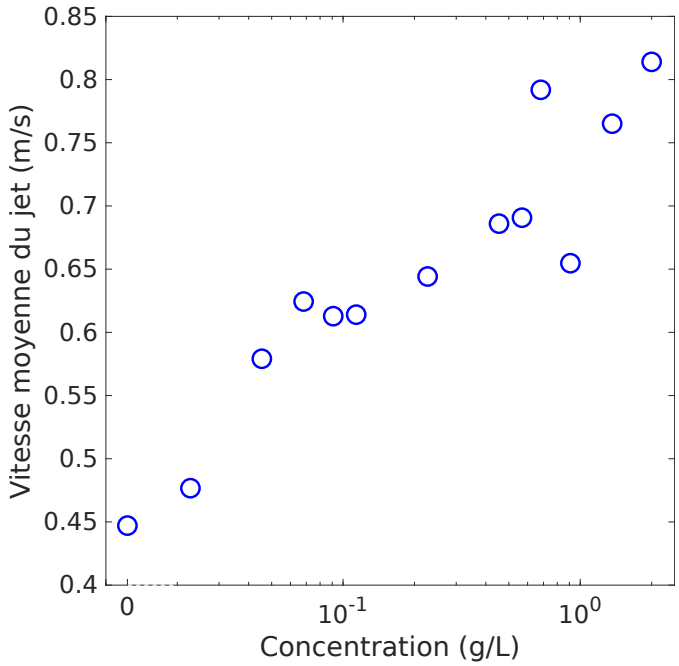

FIGURE 5.35 – Vitesse moyenne du jet de Rayleigh en fonction de la concentration en caséine.

5.4.2.5 Turbidité et utilisation du signal acoustique

L'ajout de micelles de caséine dans l'eau, en plus de modifier la tension de surface du liquide, modifie sa turbidité. En effet, la taille importante des micelles provoque une diffusion de la lumière [157]. Dans notre cas, les mesures vidéos, avec un éclairage en contre-jour, sont affectées et le liquide devient d'autant plus turbide que la concentration en caséine est importante. Ceci a pour effet de réduire la visibilité des événements se déroulant sous l'interface, jusqu'à les masquer complètement au-dessus d'une concentration de 0.5 g/L, comme illustré en Fig. 5.36.

L'absence de visibilité rend l'identification des différents mécanismes de formation de bulles impossible avec les vidéos. Cependant, le signal acoustique n'est pas affecté par cette turbidité. Ainsi, à l'aide de l'algorithme de classification des mécanismes de formation de bulles, développé dans le cadre de cette thèse et décrit dans la partie 4.3, il est possible d'identifier ces différents événements.

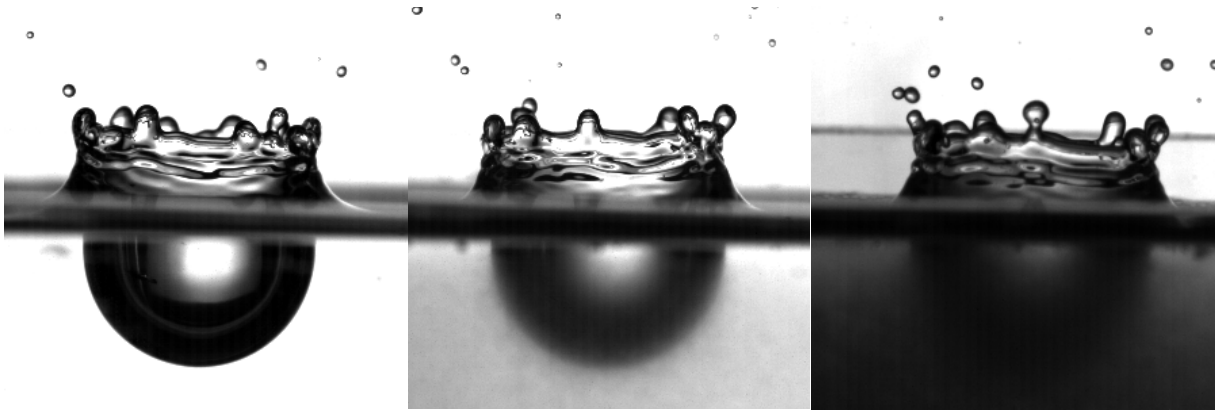

FIGURE 5.36 – Images de la cavité et de la couronne formées après l'impact d'une goutte d'eau sur une solution de caséine à une concentration de 0 g/L (gauche), 0.32 g/L (milieu) et 0.45 g/L (droite). La cavité en-dessous l'interface est d'autant moins visible que la concentration en caséine est élevée.

L'algorithme de classification est appliqué aux différents groupes d'événements présentés en Fig. 5.26. Pour chaque groupe, représentant des événements acoustiques issus d'un même mécanisme de formation de bulles, tous les motifs acoustiques sont classés par l'algorithme, puis la classe majoritaire est attribuée au groupe. Les résultats sont présentés en Fig. 5.37. Les événements acoustiques à gauche de l'axe pointillé vertical sont identifiés à l'aide de la vidéo, car la concentration en caséine est assez faible pour que la turbidité ne gêne pas la visibilité des événements. Les événements situés à droite de l'axe sont classés par l'algorithme car la turbidité est trop importante. Ainsi, la formation d'une bulle par mécanisme de "zip-like flow" arrive de plus en plus tard quand la concentration augmente, jusqu'à un maximum à 0.2 g/L, puis se déroule plus tôt. Ceci est en accord avec l'évolution de la hauteur maximale du jet de Rayleigh (Fig 5.27), qui présente une évolution similaire.

La turbidité induite par la caséine limite ainsi l'utilisation de mesures vidéos pour l'étude d'impact de gouttes. Ce problème se retrouve également dans le cas de liquides opaques, par exemple, ou bien des situations de mesure ne permettant pas l'utilisation d'une caméra rapide (comme les mesures en piscine présentées dans le chapitre 3). Ces différents exemples montrent l'utilité du programme de classification pour l'étude de la formation de bulles.

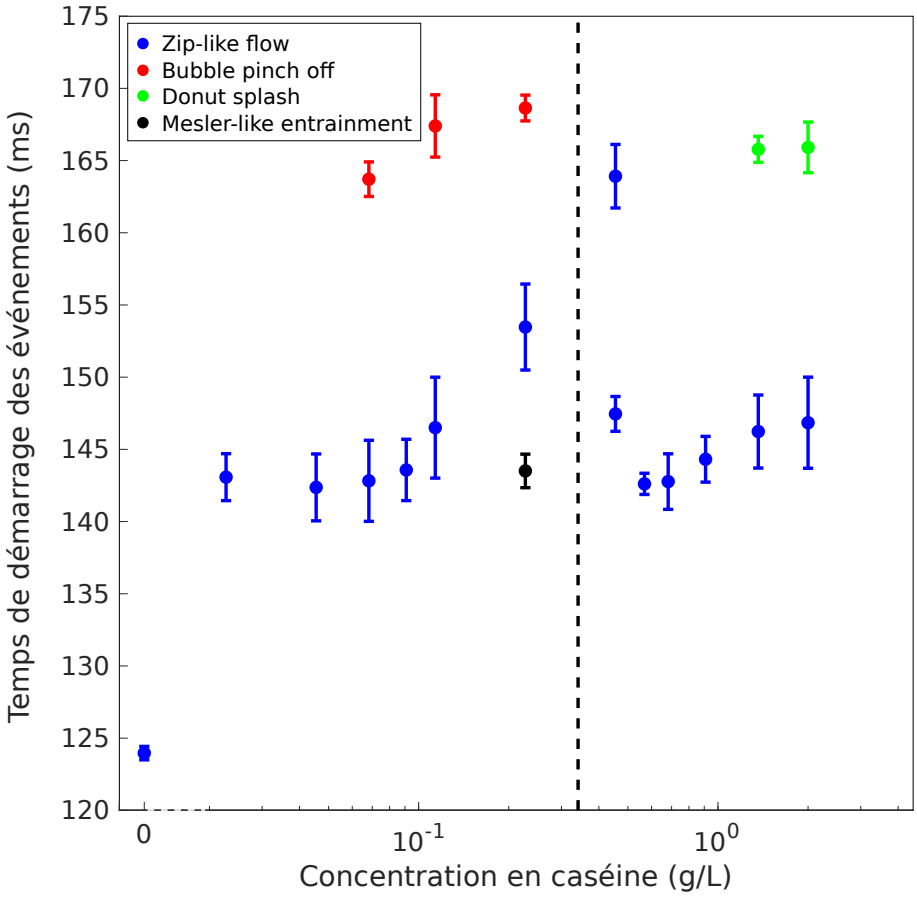

FIGURE 5.37 – Temps de démarrage des différents événements acoustiques, dont la classe est identifiée, en fonction de la concentration en caséine. Les événements à gauche de l'axe pointillé vertical sont identifiés à l'aide des mesures vidéos, tandis que les événements à la droite de l'axe sont classés par l'algorithme de classification.

5.4.3 Ovalbumine

L'ovalbumine, de la même manière que la caséine, est une protéine. Elle est trouvée principalement dans le blanc d'œuf. Ce sont ses propriétés tensioactives qui permettent le montage et la stabilité des blancs en neige par exemple [158].

5.4.3.1 Propriétés de surface

Les molécules d'ovalbumine, quand elles sont dissoutes dans l'eau, s'adsorbent à l'interface et diminuent ainsi la tension interfaciale. Les molécules d'ovalbumine étant très volumineuses (comparées aux molécules des tensioactifs utilisés), l'adsorption se fait lentement. En effet, la mesure de l'évolution de la tension de surface en fonction du temps,

présentée en Fig. 5.38, montre que la tension de surface diminue lentement dans le temps, et que l'équilibre n'est pas atteint avant la fin de la mesure, c'est-à-dire pas avant deux heures. Ainsi, la tension de surface évoluant de manière significative sur une durée grande devant la durée des mesures, il est nécessaire de prendre en compte ces changements dans l'analyse des résultats.

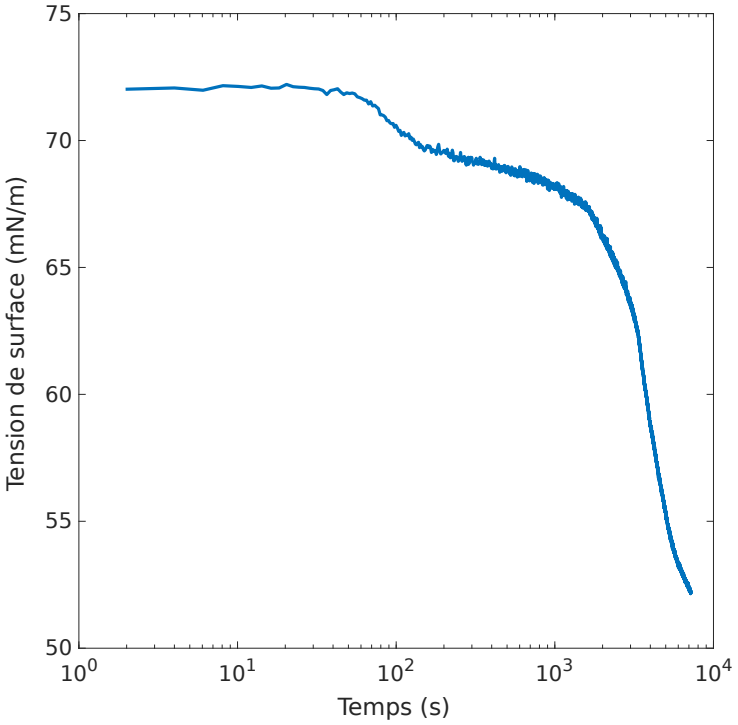

FIGURE 5.38 – Évolution de la tension de surface en fonction du temps pour une solution d'eau et d'ovalbumine à une concentration de 0.5 g/L.

5.4.3.2 Taille du jet

Une étude est menée de la même manière qu'avec la caséine, avec des mesures à la fois acoustiques et vidéo pour différentes concentrations. Cependant, l'intérêt ici est également porté sur l'évolution temporelle de la dynamique de l'impact. En effet, la dynamique de l'ovalbumine étant très lente, la tension de surface de la solution peut varier progressivement et significativement durant les mesures pour une même configuration. Ainsi, pour certaines concentrations, plusieurs séries de mesures sont réalisées juste après l'ajout d'ovalbumine, 30 min après et enfin 1h après.

La hauteur maximale atteinte par le jet de Rayleigh est présentée en Fig. 5.39. A première vue, l'évolution de la hauteur maximale est plus complexe que dans le cas de la caséine. De plus, de fortes différences sont observées pour une même concentration à des temps différents. Le plus gros écart est observé entre la mesure à 1 min et à 30 min pour une concentration d'environ 1.3 mg/L, où le jet présente une augmentation de 20 % de sa hauteur maximale pour la mesure à 30 min.

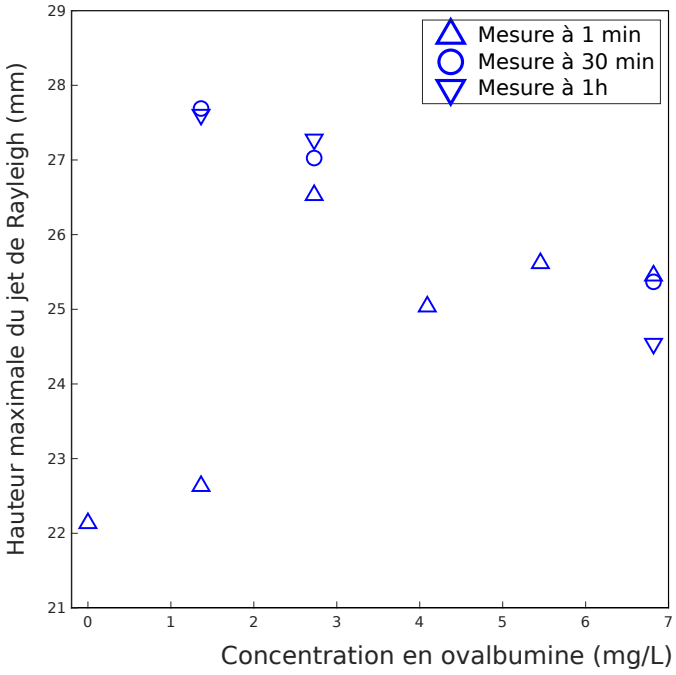

FIGURE 5.39 – Hauteur maximale du jet de Rayleigh pour différentes concentrations d'ovalbumine.

En observant l'ensemble des concentrations, il apparaît que la hauteur maximale du jet augmente jusqu'à environ 2.5 mg/L puis diminue. Ce comportement est similaire à celui observé avec les solutions de tensioactif. Le mécanisme en jeu est donc probablement le même, c'est-à-dire l'apparition d'écoulements de Marangoni favorisant le développement du jet. L'évolution de la hauteur du jet visible entre les deux premières mesures à 1.36 mg/L est en accord avec cette hypothèse. En effet, les écoulements de Marangoni se mettent en place à cause du gradient de tension de surface entre la nouvelle interface créée par le jet, pauvre en protéines, et le reste de la surface, plus riche en protéines. L'adsorption de l'ovalbumine étant lente, la surface au repos a une plus grande concentration en protéines au temps $t_2 = 30$ min qu'au temps $t_1 = 1$ min. Ainsi, le gradient de tension

de surface est plus important au temps t_2, donc les écoulements de Marangoni ont une vitesse plus importante, ce qui mène à un jet plus haut.

5.4.3.3 Évolution dans le temps

L'augmentation importante de la hauteur maximale du jet pour la concentration de 1.3 mg/L entre les mesures à 1 et 30 min montre que les propriétés du liquide évoluent dans le temps. Aucune autre mesure vidéo n'a été prise entre ces deux mesures, mais des mesures purement acoustiques ont été réalisées. Il a été observé durant les différentes études que le temps de démarrage des événements acoustiques est fortement lié à la taille maximale du jet de Rayleigh. Ainsi, l'évolution de ce temps de démarrage est suivie entre les mesures à 1 min et à 30 min. Les résultats sont affichés en Fig. 5.40. Les événements pour des temps négatifs correspondent aux mesures avec l'eau pure. Le temps d'apparition de ces événements reste à peu près constant. A partir de l'ajout d'ovalbumine, à $t = 0$, le temps d'apparition du premier événement varie beaucoup plus, et augmente rapidement en fonction du temps, jusqu'à se stabiliser à la fin de la première série ($\sim$ 1000 s). Les deux séries suivantes, à partir de 2000 s, ne montrent pas d'évolution importante du temps de démarrage, si ce n'est une légère diminution, qui est cohérente avec la légère diminution de la taille maximale du jet de Rayleigh entre 30 min et 1h.

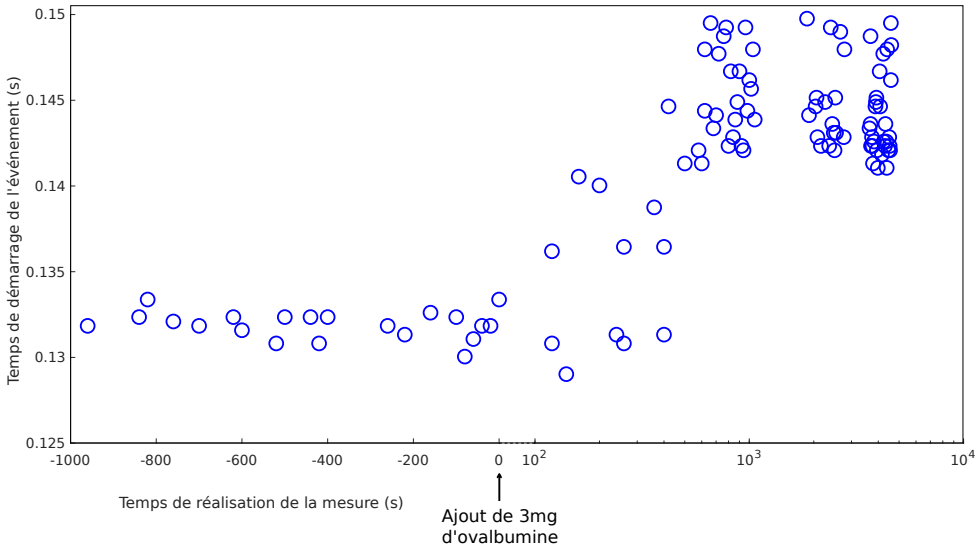

FIGURE 5.40 – Temps de démarrage du premier événement acoustique en fonction du temps avant ($t < 0$) et après ($t > 0$) l'ajout d'ovalbumine.

Ainsi, l'ovalbumine influence le jet de Rayleigh d'une mesure à l'autre. Cette influence peut être suivie à l'aide du signal acoustique de l'impact, en observant la variation du temps de démarrage des événements acoustiques. Une étude plus approfondie de l'évolution des événements acoustiques en lien avec l'adsorption progressive de l'ovalbumine pourrait permettre le développement d'une méthode de suivi d'adsorption pour les produits à dynamique lente.

5.4.4 Conclusion

Les protéines étudiées dans cette partie apportent des modifications à la fois à l'hydrodynamique et au signal acoustique de l'impact d'une goutte quand elles sont diluées dans de l'eau. Ces modifications sont complexes, mais le comportement global est similaire aux effets des molécules des tensioactifs étudiés dans la section 5.3. La différence principale qui semble affecter le plus le comportement du jet de Rayleigh entre protéines et tensioactifs se trouve dans la dynamique d'adsorption, qui est beaucoup plus lente pour les protéines. Ainsi, la caséine présente, comme pour les tensioactifs, un maximum de temps d'apparition des événements acoustiques. Il reste à vérifier si, pour des concentrations plus élevées, le temps d'apparition des évènements acoustiques diminue. Concernant l'ovalbumine, sa dynamique encore plus lente entraîne des modifications de l'impact d'une mesure à l'autre, sur des temps très grands comparés au temps de l'impact. Ainsi, des mesures supplémentaires et une étude plus approfondie de l'adsorption de l'ovalbumine pourraient potentiellement permettre le développement d'une méthode d'étude de l'adsorption de systèmes lents dans le temps.

5.5 Étude de l'impact d'une goutte de solution de tensioactif

5.5.1 Introduction

Dans le cadre des mesures avec les mélanges de solutions (éthanol, glycérol) ainsi qu'avec les tensioactifs (SDS, Brij35), deux configurations sont testées pour chaque concentration. Les mesures sont réalisées pour une goutte d'eau impactant la solution (configuration appelée ici C1) et pour une goutte de la solution impactant la même solution (configuration appelée ici C2), comme illustré en Fig. 5.41. Bien que les mesures de la

configuration C1 soient principalement exploitées dans ces travaux, les mesures issues de la configuration C2 ont également été analysées. Les différences observées entre les mesures des deux configurations montrent que le déroulement de l'impact peut varier suivant la nature de la goutte. Une brève comparaison des différences concernant le jet de Rayleigh et le signal acoustique de l'impact est reportée dans cette partie.

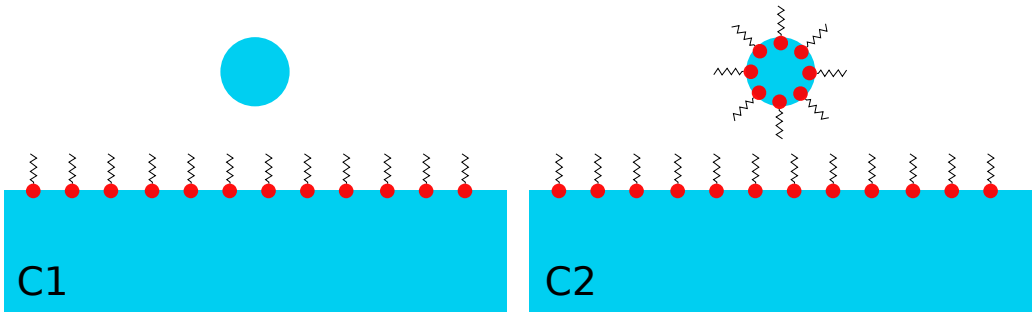

FIGURE 5.41 – Schéma des deux configurations d'impact étudiées : impact d'une goutte d'eau sur un bain de tensioactif (C1) et impact d'une goutte de solution de tensioactif sur la même solution (C2).

5.5.2 Le problème de la taille de la goutte

Dans la configuration C1, la modification des propriétés du bain ne modifie pas les propriétés de la goutte. Ainsi, l'énergie initiale de l'impact est la même entre les différentes configurations, ce qui facilite leur comparaison. Cependant, dans la configuration C2, la modification de la tension de surface du bain, et donc du liquide de la goutte, entraîne une modification de la taille de la goutte. En effet, la taille de la goutte au moment du détachement dépend principalement du rapport des forces de tension de surface et de gravité. En mettant en équation les conditions d'équilibre entre tension de surface et gravité dans le cas d'une goutte pendante, il est possible d'obtenir l'expression du diamètre d de la goutte au détachement [159] :

$$d = \left(\frac{\sigma k_d d_{cap}}{\rho g} \right)^{1/3}, \tag{5.7}$$

avec σ la tension de surface du liquide, d_{cap} le diamètre du capillaire, ρ la densité du liquide, g la constante gravitationnelle et k_d un facteur prenant en compte le rétrécissement du col de la goutte pendant sa formation. Ainsi, plus la tension de surface est faible, plus le diamètre de la goutte formée est petit.

Cependant, la prédiction du diamètre de la goutte formée dans le cas de solution de tensioactifs est complexe. En effet, les molécules de tensioactif sont adsorbées progressivement lors de la création d'une nouvelle interface, diminuant la tension interfaciale dans le temps. Ainsi, le volume pour lequel la goutte de solution se détache dépend de la vitesse d'adsorption, mais également de la vitesse de formation de la goutte.

Les différents diamètres de goutte mesurés pour les solutions de tensioactif sont présentés en Fig. 5.42. Pour les deux tensioactifs, le diamètre de la goutte formée diminue globalement avec la concentration. En effet, la tension de surface diminue d'autant plus vite que la concentration en tensioactif est élevée. Ainsi, le débit pour la formation de la goutte étant le même, elle se détache plus tôt (i.e. pour un volume plus faible) car sa tension de surface est plus faible. Le diamètre se stabilise ensuite au-dessus de la CMC. En effet, la tension de surface évolue dans le temps de manière similaire pour de fortes concentrations, au-dessus de la CMC.

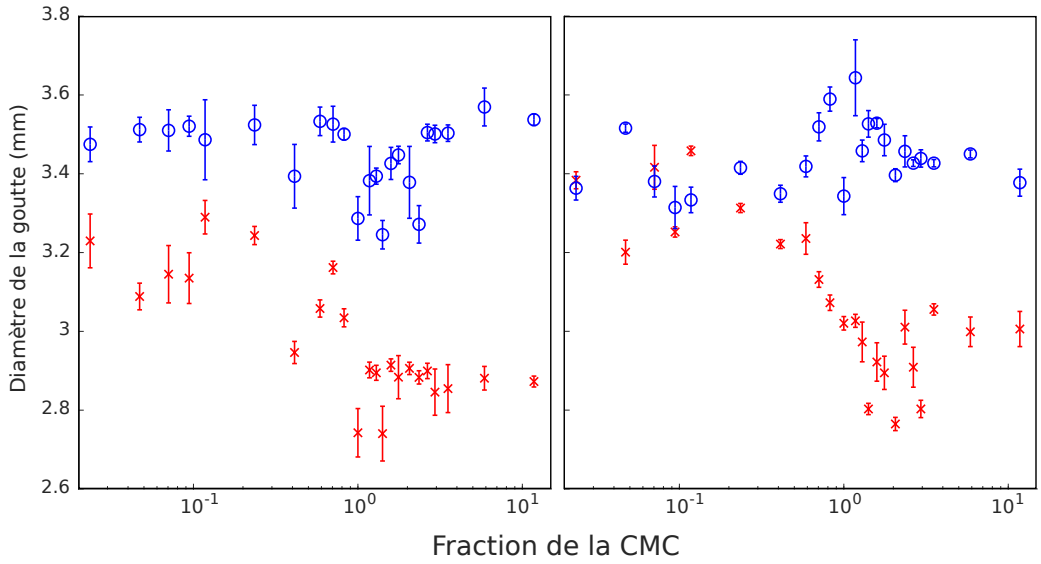

FIGURE 5.42 – Diamètre de la goutte en fonction de la concentration en tensioactif pour le SDS (gauche) et le Brij35 (droite), pour les configurations C1 (cercles bleus) et C2 (croix rouges).

Afin de résoudre le problème de la variation de la taille de la goutte, les paramètres de formation de la goutte peuvent être modifiés. En effet, l'équation 5.7 montre que la tension de surface peut être compensée par différents paramètres, comme le diamètre du

capillaire. La tension de surface pour une nouvelle interface évoluant dans le temps suivant une certaine dynamique pour les tensioactifs, le débit d'injection pourrait également être modifié afin que la goutte se forme avant que la tension de surface ait commencé à diminuer. Cependant, cette solution ne pourrait être appliquée que dans le cas de dynamiques lentes (tensioactif à dynamique lente ou faibles concentrations) et la modification du débit pourrait également affecter la formation de la goutte (en modifiant le facteur k_d dans l'équation 5.7).

5.5.3 Comparaison des deux configurations

Une observation rapide des vidéos et des signaux acoustiques issus de mesures pour une même concentration de tensioactif, mais pour une configuration de goutte différente, montre des comportements différents. En effet, la Fig. 5.43 montre les principales étapes de l'impact d'une goutte pour les deux configurations d'impact, sur un bain de SDS avec une concentration égale à 0.2xCMC. Les dimensions de la cavité, de la couronne et du jet montrent des différences importantes. Ici, l'attention est portée au jet de Rayleigh.

La hauteur maximale du jet de Rayleigh est comparée pour les deux configurations de goutte, pour le SDS et le Brij35. Les résultats sont affichés en Fig. 5.44. Pour les deux configurations, la hauteur maximale du jet suit globalement la même tendance avec la concentration : une augmentation puis une diminution. Cependant, deux différences principales peuvent être relevées :

— les valeurs du maximum sont beaucoup plus élevées pour la configuration C1 que pour la configuration C2,
— la diminution de la hauteur maximale, juste avant la CMC, est plus rapide pour la configuration C2. De plus, la hauteur maximale est plus faible au-dessus de la CMC pour la configuration C2.

La deuxième différence est facilement compréhensible. En effet, comme présenté dans la section 5.5.2, la taille de la goutte diminue avec la concentration. Ainsi, l'énergie cinétique à l'impact diminue avec la concentration, ce qui diminue l'énergie de la projection du jet. Sa hauteur maximale est donc moins élevée. Afin de vérifier cette hypothèse, la

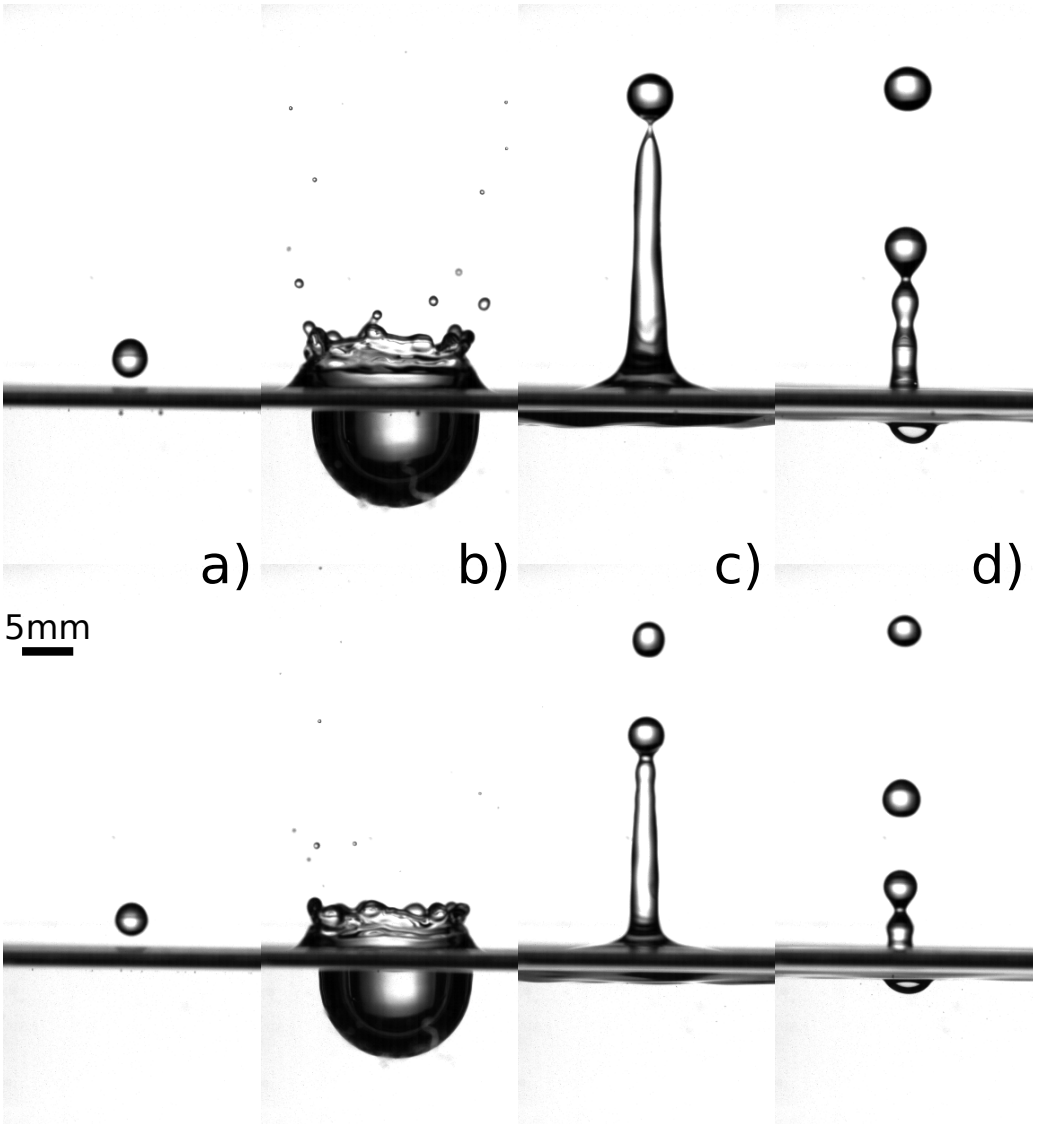

FIGURE 5.43 – Images de l'impact d'une goutte d'eau (haut) et de solution de SDS (bas) : a) 1 ms avant l'impact, b) 15 ms, c) 98 ms et d) 134 ms après l'impact, sur une solution de SDS. La concentration de SDS est égale à 0.2xCMC.

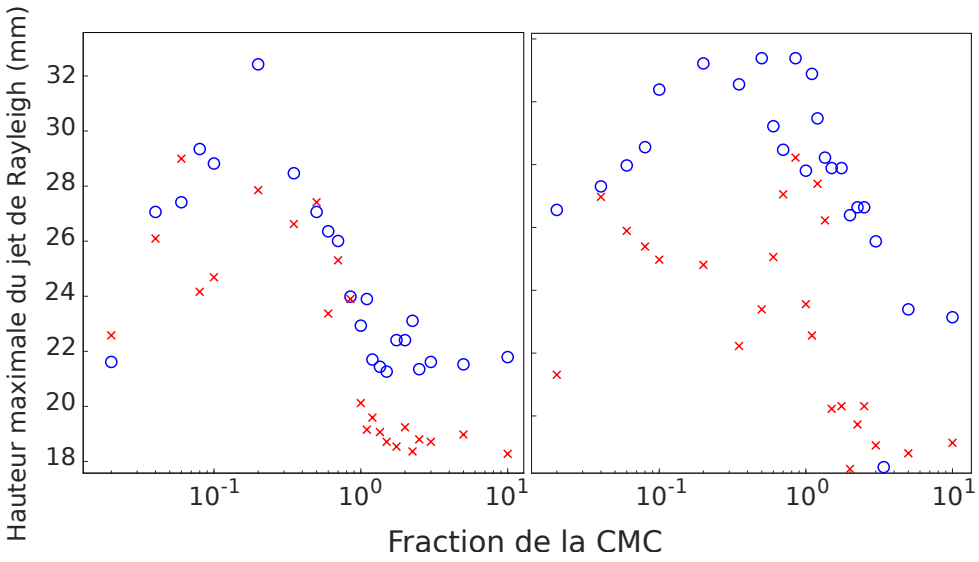

FIGURE 5.44 – Hauteur maximale du jet de Rayleigh en fonction de la concentration en tensioactif, normalisée par la CMC, pour les configurations C1 (cercles bleus) et C2 (croix rouges) : cas du SDS (gauche) et du Brij35 (droite).

hauteur maximale du jet h_{max} est normalisée par le diamètre d de la goutte. Les résultats, présentés en Fig. 5.45, montrent en effet que la hauteur maximale du jet par rapport au diamètre de la goutte est quasiment identique au-dessus de la CMC.

Malgré la normalisation par le diamètre de la goutte, une différence existe toujours en-dessous de la CMC, principalement au niveau du maximum, aux alentours du tiers de la CMC. Une hypothèse émise pour expliquer cette différence est la présence d'écoulements de Marangoni moins importants. En effet, il est proposé dans la section 5.3 que des écoulement de Marangoni, présents durant l'élévation du jet, sont en partie responsables du maximum de hauteur du jet. Lors de l'impact d'une goutte chargée en tensioactifs, il est envisageable que le gradient de tension de surface entre le jet et le reste du bain soit moins important que dans le cas d'une goutte d'eau pure. Cette hypothèse pourrait expliquer pourquoi les jets observés sont moins hauts dans la configuration C2. Une étude de l'évolution de la hauteur du jet pour une concentration fixe de tensioactif dans le bain, aux alentours du tiers de la CMC, en faisant varier la concentration de tensioactif dans la goutte, permettrait de tester cette hypothèse.

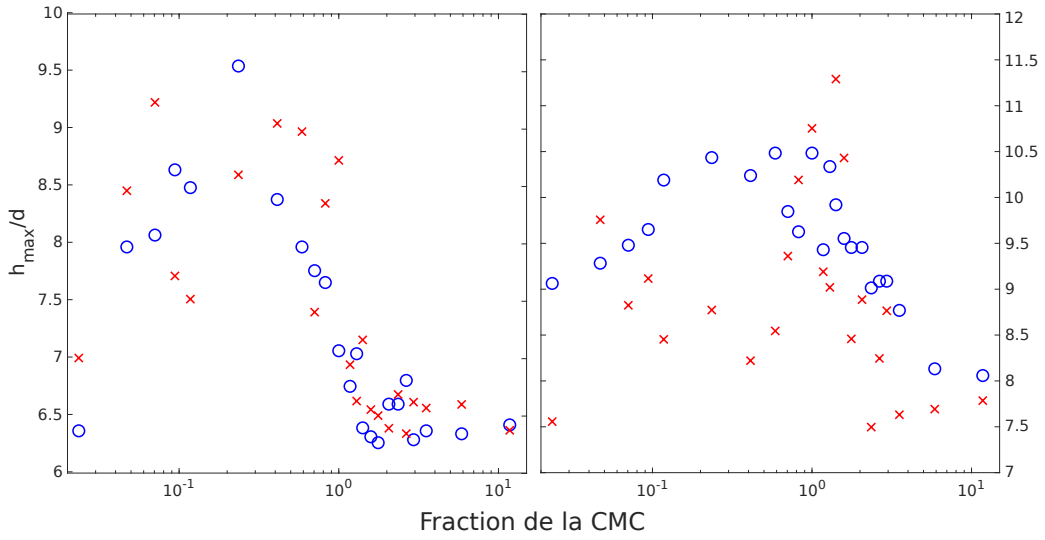

FIGURE 5.45 – Hauteur maximale du jet de Rayleigh h_{max} normalisée par le diamètre de la goutte à l'impact d en fonction de la concentration en tensioactif, normalisée par la CMC, pour les configurations C1 (cercles bleus) et C2 (croix rouges) : cas du SDS (gauche) et du Brij35 (droite).

La différence observée entre les deux configurations, malgré la normalisation par le diamètre de la goutte, peut venir également de la plus petite taille de la goutte. L'énergie cinétique à l'impact dépend de la vitesse d'impact et du diamètre de la goutte. Cependant, ces deux paramètres ne se valent pas. En effet, le diagramme de Pumphrey et Elmore [21], présenté en Fig. 5.46, montre que, pour une même énergie cinétique, le régime de formation de bulle n'est pas le même suivant le diamètre de la goutte. Ainsi, une variation de la taille de la goutte ne modifie pas simplement l'énergie cinétique d'impact, mais peut influer sur les événements hydrodynamiques engendrés par l'impact. Ainsi, afin de réellement comparer l'influence du liquide formant la goutte sur le déroulement de l'impact, il est nécessaire d'effectuer des mesures pour une même taille de goutte, avec une même vitesse d'impact.

5.5.4 Modification du signal acoustique

La présence de différences sur la hauteur maximale du jet de Rayleigh pour les configurations C1 et C2 laisse envisager des différences au niveau du signal acoustique. En effet, il a été observé que le temps d'apparition des événements acoustiques dépend fortement de

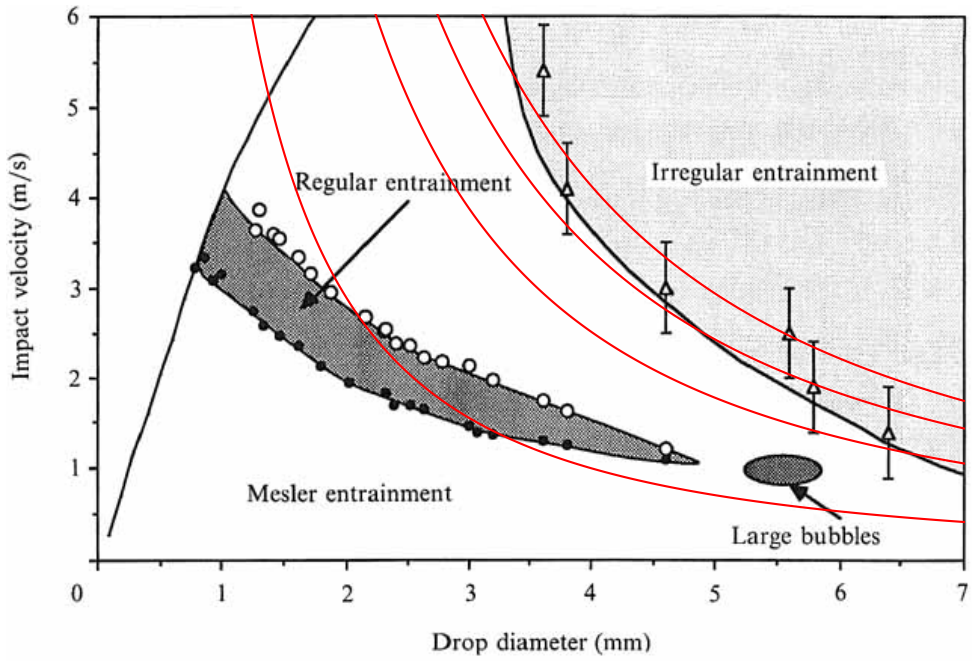

FIGURE 5.46 – Diagramme, issu de [21], présentant les limites des différents régimes d'emprisonnement de bulle en fonction du diamètre de la goutte et de la vitesse d'impact. Les courbes en rouge représentent des lignes pour lesquelles l'énergie cinétique est la même.

la taille maximale du jet. Le temps d'apparition des événements acoustiques est présenté en Fig. 5.47 pour le SDS et le Brij35. Le temps d'apparition des événements acoustiques est bien différent entre les deux configurations, pour les deux tensioactifs. En effet, les événements apparaissent globalement plus tôt pour la configuration C2. Cette observation est cohérente avec le fait que la taille maximale du jet de Rayleigh est globalement plus faible pour la configuration C2.

5.5.5 Conclusion

Les événements hydrodynamiques engendrés par l'impact d'une goutte sur un liquide varient suivant la nature du liquide qui compose la goutte. Ces variations sont visibles à la fois sur les vidéos de l'impact et sur les signaux acoustiques associés. La principale cause de ces changements semble être la taille de la goutte, qui diffère suivant la tension de surface du liquide. Cependant, il est envisageable que la nature du liquide influe également sur les différents événements hydrodynamiques, que ce soit au moment de l'impact initial

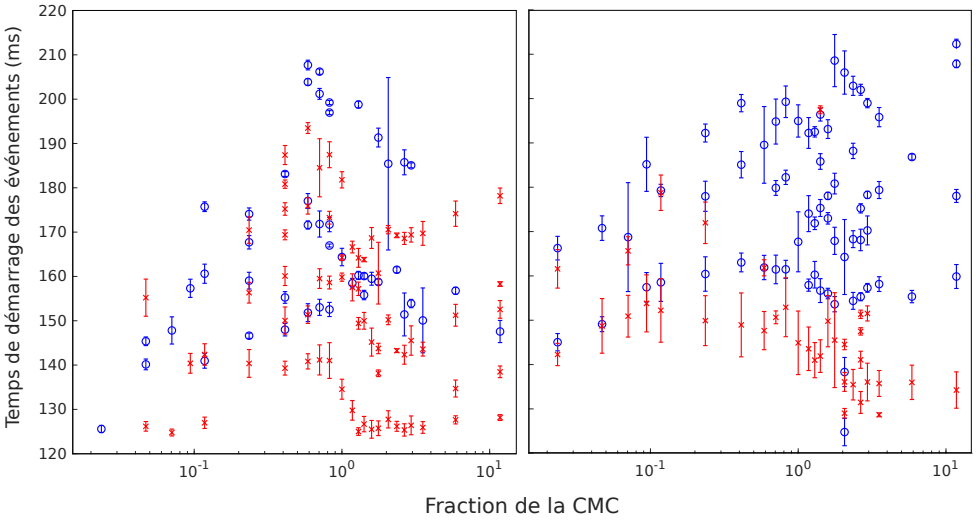

FIGURE 5.47 – Temps d'apparition des événements acoustiques de l'hydrophone pour les configurations C1 (cercles bleus) et C2 (croix rouges), pour le SDS (gauche) et le Brij35 (droite).

(interactions moléculaires entre deux surfaces de nature similaire ou différente, comme illustré en Fig. 5.41) ou bien par la suite (dilution locale pour une goutte d'eau sur une solution de tensioactif, écoulements de Marangoni, etc...). Des études plus approfondies sont encore nécessaires pour comprendre les changements induits par la nature du liquide qui compose la goutte.

5.6 Conclusion du chapitre

La variation de la tension de surface du liquide modifie les événements hydrodynamiques générés par l'impact d'une goutte d'eau sur ce liquide. Ces modifications des différents événements hydrodynamiques dépendent de la nature du produit ajouté à l'eau pour modifier sa tension de surface.

Dans le cas d'un mélange de liquides miscibles, l'effet le plus intéressant est celui concernant la couronne formée lors de l'impact. La hauteur maximale de celle-ci est logiquement d'autant plus importante que la tension de surface est faible. Cette augmentation de hauteur maximale est associée à un retard de la rétraction de la cavité, qui est visible sur le signal de l'hydrophone par un retard de la surpression engendrée par cette rétraction. Le modèle simple reliant la tension de surface et la densité du liquide au temps d'apparition

de cette surpression montre que c'est principalement la tension de surface qui pilote la hauteur maximale de la couronne. Le temps d'apparition de la surpression, lui, varie en fonction du rapport de la densité et de la tension de surface, avec une loi de puissance. Des mesures complémentaires sur d'autres solutions permettraient de confirmer l'universalité de ce modèle, qui pourrait alors servir de base à une méthode inédite de mesure de la tension de surface à l'aide d'un hydrophone et d'une goutte d'eau.

Les mesures avec tensioactif montrent également un lien entre le signal acoustique et les propriétés du liquide. Dans ce cas, l'évolution du temps de démarrage des événements acoustiques est liée à la concentration en tensioactifs dans le bain, quand celle-ci est normalisée par la CMC du tensioactif. Cette variation du temps de démarrage est due à une variation de la hauteur maximale du jet de Rayleigh, qui dépend de la viscosité du milieu et d'écoulements de Marangoni générés par les molécules de tensioactif. Ce comportement commun pour les trois tensioactifs testés, malgré leurs différences en termes de dynamique et de propriétés, laisse penser que les mêmes résultats sont observables pour tout tensioactif. Dans ce cas, la mesure du temps de démarrage des événements acoustiques dans le cas d'un impact de goutte et la détection d'un maximum global permettraient de disposer d'une nouvelle méthode de détermination de la CMC d'un tensioactif. Cette méthode pourrait également servir pour l'étude de la dynamique d'adsorption de tensioactifs sur des temps très courts, correspondant au temps de déroulement de l'impact.

Les premiers résultats obtenus avec les solutions de protéines montrent que leur influence sur la dynamique du jet de Rayleigh est également visible, et que cette influence s'observe en particulier sur les événements acoustiques. Les comportements observés semblent similaires à ceux mis en évidence dans le cas des tensioactifs, avec néanmoins des dynamiques plus lentes. Ainsi, les études d'impacts de gouttes pourraient permettre d'obtenir des informations sur les propriétés de surface de certaines protéines et de comparer leur dynamique. Pour les dynamiques très lentes, comme pour l'ovalbumine, l'adsorption progressive des protéines à l'interface pourrait même être suivie dans le temps. De plus, dans le cas de la caséine, la turbidité importante du liquide pour des concentrations élevées de caséine rend impossible l'observation des événements sous la surface à la caméra rapide. L'utilisation du signal acoustique pour l'étude d'impact permet de ne pas être gêné par cette turbidité.

Enfin, bien que les études d'impacts de gouttes d'eau sur différents bains apportent de nombreux résultats intéressants, l'étude plus détaillée du cas de l'impact d'une goutte de solution sur la même solution permet de mieux comprendre l'interaction entre la goutte et le bain au moment de l'impact et lors de la suite des événements hydrodynamiques. Les différences subtiles observées, tant du point de vue hydrodynamique qu'acoustique, viennent probablement des interactions différentes entre la goutte et le bain, qui dépendent du liquide qui les compose. Cependant, la taille de la goutte dépend de la solution, change les conditions initiales de l'impact, et influence donc le déroulement de l'impact de manière non triviale. Une adaptation du système de mesure, permettant d'imposer une même taille de goutte malgré des changements de tension de surface, permettrait d'étudier réellement l'influence du liquide de la goutte sur l'impact.

Conclusion

Conclusion générale

L'impact d'une goutte d'eau sur un bain d'eau a été dans un premier temps étudié, dans le cas d'un régime particulier. Ce régime, proche du régime d'*irregular entrainment* reporté dans la littérature, se trouve être assez répétable dans le fait d'emprisonner une bulle d'air. De plus, cette bulle d'air est emprisonnée par un mécanisme particulier n'ayant pas encore fait l'objet d'études approfondies. C'est une gouttelette détachée du jet qui, en retombant, vient clore une cavité créée dans le liquide par l'effondrement de la base du jet. La fermeture de la cavité se fait par un mécanisme de "fermeture éclair liquide". Une étude approfondie du son produit par cette bulle a permis de mettre en évidence trois différences majeures entre les mesures et les modèles classiques utilisés dans les études acoustiques d'impacts de gouttes. Tout d'abord, la fréquence des oscillations générées par la bulle s'avère variable avec le temps et globalement plus haute que prévu par le modèle de Minnaert. La prise en compte de la proximité de l'interface et des variations de distance bulle-interface durant les oscillations a permis de retrouver une fréquence théorique proche de la fréquence expérimentale. Ensuite, le niveau de pression mesuré au microphone est beaucoup plus élevé que prévu en considérant la bulle comme source et la faible transmission acoustique à travers l'interface eau/air. De nouveau, la prise en compte de la proximité de l'interface par rapport à la longueur d'onde du signal a permis d'obtenir des valeurs théoriques plus proches des résultats expérimentaux. Enfin, le temps caractéristique d'amortissement des oscillations dans l'eau s'avère être plus élevé que ce que prévoit la théorie d'amortissement de bulle. La prise en compte de la réponse acoustique de l'aquarium utilisé a permis d'expliquer cette observation, et des mesures en piscine ont permis d'observer le signal de la bulle sans l'influence du récipient.

Par la suite, la tension de surface du liquide a été modifiée. Cette modification a amené l'observation de différents phénomènes hydrodynamiques, ayant lieu après l'impact d'une goutte d'eau sur la solution, identifiés comme responsables d'émissions acoustiques. Ces phénomènes consistent en quatre mécanismes de formation de bulle et un mécanisme d'ex-

citation de bulle, et sont responsables de tous les événements acoustiques observés pour ce régime. En plus d'un mécanisme hydrodynamique propre à chacun, ces différents phénomènes présentent des signatures acoustiques propres et reconnaissables. L'extraction de descripteurs adaptés et l'utilisation d'une méthode de classification de signaux a permis le développement d'un algorithme d'identification de ces phénomènes hydrodynamiques à partir de leur seule signature acoustique. Cet algorithme permet l'étude d'impacts de gouttes et l'identification des mécanismes de formation de bulle sans l'utilisation de caméra rapide.

L'effet particulier de la tension de surface sur les événements hydrodynamiques engendrés par l'impact a ensuite été étudié. La tension de surface a été modifiée de trois manières différentes : par mélange de l'eau avec des solutions miscibles de tension de surface plus basse, par ajout de tensioactifs à l'eau et par ajout de protéines à l'eau. Toujours en restant dans le même régime d'impact, la modification de la tension de surface du liquide a permis d'observer différentes dynamiques de jet de Rayleigh, entraînant des phénomènes hydrodynamiques variés responsables d'émissions acoustiques. Plus particulièrement, l'ajout de tensioactif entraîne une variation du temps de démarrage général des événements acoustiques. Cette variation est faite d'une augmentation, d'une diminution puis d'une stabilisation quand la concentration augmente, passant ainsi par un maximum. Cette variation du temps de démarrage est liée principalement à la variation de la hauteur du jet de Rayleigh, qui mène à un retard de la retombée des gouttelettes secondaires d'autant plus grand que sa hauteur maximale est importante. Ce comportement est observé de manière similaire pour différents tensioactifs avec des dynamiques pourtant très différentes, quand ils sont comparés en fonction de leur concentration normalisée par leur CMC. L'hypothèse d'un mécanisme particulier, lié aux écoulements de Marangoni se mettant en place lors de l'éjection du jet, est proposée pour expliquer ce comportement commun. La confirmation que ce phénomène est universel pour tout type de tensioactif permettrait d'envisager un processus de détermination de la CMC à l'aide du seul signal acoustique d'un impact de goutte d'eau.

Le mélange de différentes solutions pour l'obtention de tensions de surface différentes mène à des résultats différents de ceux obtenus dans le cas des tensioactifs. En effet, aucun lien particulier n'a été mis en évidence entre la tension de surface et les différents événements acoustiques dus à la formation de bulle. Cependant, l'observation des varia-

tions de pression hydrodynamique durant la rétraction de la cavité permet de mettre en évidence un lien entre le temps d'apparition d'un maximum de pression et la tension de surface du liquide. Ce maximum de pression, qui correspond à la fin de rétraction de la cavité et à l'éjection du jet de Rayleigh, apparaît d'autant plus tard que la tension de surface est faible. Alors que l'apparition de ce maximum de pression est reliée à la convergence d'une onde capillaire singulière au fond de la cavité, le retard observé peut être relié à la hauteur maximale variable de la couronne ou à la variation de la célérité de l'onde due aux variations de tension de surface et de densité. Le lien entre le retard de la surpression et le rapport entre densité et tension de surface permettrait d'envisager un système de mesure simple de ces propriétés à l'aide d'une goutte et d'un hydrophone.

Les premières analyses des résultats d'impacts de gouttes sur des solutions de protéines montrent un comportement similaire à celui des tensioactifs. La hauteur maximale atteinte par le jet de Rayleigh est modifiée, probablement par le même phénomène que pour les tensioactifs, i.e. la mise en place d'écoulements de Marangoni dus au gradient de tension de surface. Ainsi, l'étude d'impacts de gouttes met en évidence la dynamique plus lente des protéines par rapport aux tensioactifs. La dynamique de certaines protéines est d'ailleurs tellement lente qu'elle peut être suivie dans le temps avec des mesures successives d'impacts de gouttes, utilisant le temps de démarrage des événements acoustiques comme indicateur. Des analyses plus approfondies de ces résultats ainsi que des mesures supplémentaires permettraient de confirmer ces observations.

Enfin, les principaux résultats exposés dans ce manuscrit s'intéressent à l'impact d'une goutte d'eau sur une solution. Cependant, en parallèle, des mesures d'impacts de gouttes d'une solution sur cette même solution ont été effectuées. La comparaison des résultats entre les deux configurations montre des différences non négligeables. Bien que la plupart de ces différences soient dues à la différence de la taille de la goutte générée, il est envisageable que les interactions entre la goutte et le bain soient différentes s'ils sont constitués du même liquide, ce qui peut modifier le déroulement des événements hydrodynamiques engendrés par l'impact.

Perspectives

Les différents résultats exposés dans ce manuscrit sont essentiellement expérimentaux. Les différentes explications et hypothèses proposées nécessiteraient d'être testées via des simulations numériques. En effet, de nombreuses études sur l'impact de goutte se basent sur des simulations numériques [30, 47, 88, 127, 160] utilisant principalement la méthode Volume of Fluid (VoF) [94]. Ainsi, il serait possible de vérifier le rôle de la tension de surface dans la formation de la couronne (partie 5.2), et également de vérifier le lien entre la tension de surface et le temps d'apparition de la surpression lors de la rétraction de la cavité, et de mieux comprendre l'origine de ce retard. De plus, un modèle numérique de l'impact d'une goutte permettrait d'étudier en plus l'éventuelle influence de la densité et de la viscosité sur ce phénomène. Concernant les études avec tensioactifs, un modèle numérique plus complexe serait nécessaire, afin de prendre en compte la dynamique des tensioactifs. Cependant, des méthodes numériques existent pour prendre en compte la présence de tensioactifs, et sont déjà appliquées dans des cas similaires à l'impact de goutte [161-163]. L'adaptation de ces méthodes au cas d'impact d'une goutte sur un liquide permettrait de confronter les explications proposées dans la partie 5.3 et ainsi de mieux comprendre le rôle des tensioactifs dans l'impact de goutte.

Les résultats exposés sur les mesures d'impacts de gouttes sur des solutions de tensioactif (partie 5.3) et des mélanges de liquides miscibles (partie 5.2) montrent des liens entre le signal acoustique et des propriétés de la solution, comme la concentration en tensioactif par rapport à sa CMC ou directement avec la tension de surface. Il serait intéressant de vérifier l'universalité de ces liens, en effectuant des mesures sur d'autres produits du même type. Concernant les tensioactifs, des mesures avec des produits présentant des dynamiques et des propriétés variées permettraient de vérifier si le maximum observé sur le temps d'apparition des événements acoustiques est toujours présent d'une part, et s'il est toujours situé à environ un tiers de la CMC d'autre part. Ainsi, si ce phénomène est toujours observé, une méthode de détermination de la CMC d'un tensioactif à l'aide du signal acoustique de l'impact d'une goutte d'eau sur une solution de ce tensioactif pourrait être envisagée. Dans ce cas, une méthode d'extraction automatique du maximum de temps de démarrage des événements acoustique devrait être développée. Concernant les mélanges de solutions miscibles, d'autres solutions ou mélanges de solutions pourraient être testées afin de vérifier que les temps d'apparition de la surpression

lors de la rétraction de la cavité suivent bien le même modèle. L'utilisation de méthodes numériques pourraient également apporter un appui à cette étude. La confirmation de l'universalité du modèle mis en évidence permettrait d'envisager une méthode de mesure de tension de surface à l'aide d'un impact de goutte et d'un hydrophone.

Dans le cas du régime étudié, la formation de bulles dépend essentiellement de la formation et de l'effondrement du jet de Rayleigh. Le temps d'apparition des événements acoustiques, liés à la formation de bulles, a été relié à la hauteur maximale du jet. Cependant, d'autres éléments de la forme du jet sont modifiés quand les propriétés du liquide sont modifiées, comme son diamètre et celui des gouttelettes secondaires qui s'en détachent. Une étude plus détaillée de la dynamique du jet et de sa forme permettrait de mieux comprendre le rôle des propriétés du liquide dans sa formation et son effondrement. De plus, il a été montré que les bulles formées suite à l'effondrement du jet le sont suivant des mécanismes différents. L'étude détaillée de la dynamique du jet et sa mise en lien avec les mécanismes de formation de bulle qu'elle engendre permettraient de mieux comprendre l'apparition de tel ou tel mécanisme. Ces mécanismes étant identifiables à partir de leurs seuls signaux acoustiques, grâce à la méthode présentée dans la partie 4.3, il serait ainsi possible d'obtenir des informations sur le jet de Rayleigh via des mesures acoustiques.

Annexes

Annexe A

Variabilité du phénomène d'impact d'une goutte

A.1 Introduction

Le régime d'impact étudié est qualifié dans la littérature de "irregular entrainment". En effet, pour de mêmes conditions initiales, il y a ou non une ou des bulles emprisonnées dans le liquide, et la taille de ces bulles est variable. Ceci est dû à des petites variations, principalement dans la dynamique du jet de Rayleigh. Cependant, même si ce régime d'impact n'est pas parfaitement répétable, si on considère la formation de bulles, la succession des événements hydrodynamiques est répétable. Ainsi, en considérant un grand nombre de mesures, il est possible de décrire le déroulement d'un impact pour des conditions données, en prenant en compte sa variabilité.

A.2 Variabilité dans le cas de l'eau

La variabilité du régime d'impact est tout d'abord étudiée dans le cas de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau. En effet, lors de l'étude détaillée du régime d'impact, exposée au chapitre 3, de nombreuses mesures vidéos et acoustiques ont été effectuées, pour des conditions initiales identiques.

A.2.1 Répétabilité de la formation de la cavité

La formation de la cavité est le premier événement hydrodynamique après l'impact de la goutte. Ainsi, une variabilité dans sa dynamique peut se répercuter sur la formation du jet de Rayleigh et la formation de bulles. A l'aide de l'algorithme de tracking vidéo, développé dans le cadre de cette thèse, l'évolution de la profondeur de la cavité dans le temps est mesurée pour cinq différentes mesures d'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau,

avec les mêmes conditions initiales. Le résultat est affiché en Fig. A.1. Les différentes courbes sont quasiment confondues, montrant ainsi que le développement de la cavité est un phénomène répétable. De petites différences sont cependant observables de manière aléatoire sur la profondeur maximale et sur la fin de la rétraction de la cavité.

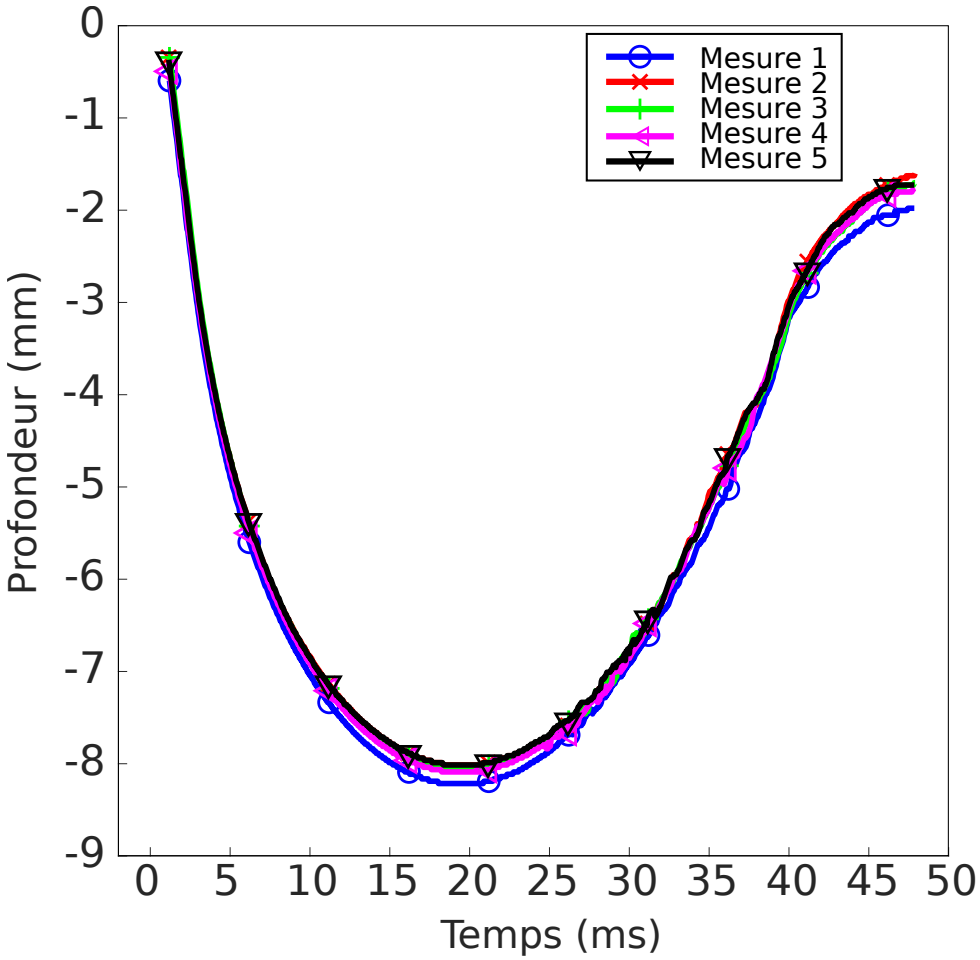

FIGURE A.1 – Superposition de cinq mesures de la profondeur de la cavité en fonction du temps dans le cas de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau.

Afin de vérifier de manière plus approfondie la répétabilité de la dynamique de la cavité, les signaux hydrophoniques sont comparés sur les 50 premières millisecondes. En effet, comme évoqué dans les chapitres 3 et 5, l'hydrophone enregistre des variations de pression moyenne qui sont dues à la dynamique de la cavité. Ainsi, des changements dans

la dynamique de la cavité sont visibles sur le signal de l'hydrophone. Les résultats, pour les mêmes cinq mesures présentées en Fig. A.1, sont présentés en Fig. A.2. Les signaux se superposent quasiment parfaitement, ce qui confirme la grande répétabilité de la dynamique de la cavité. Ainsi, les variations menant à des variations de formation de bulle apparaissent probablement plus tard, dans la dynamique du jet de Rayleigh.

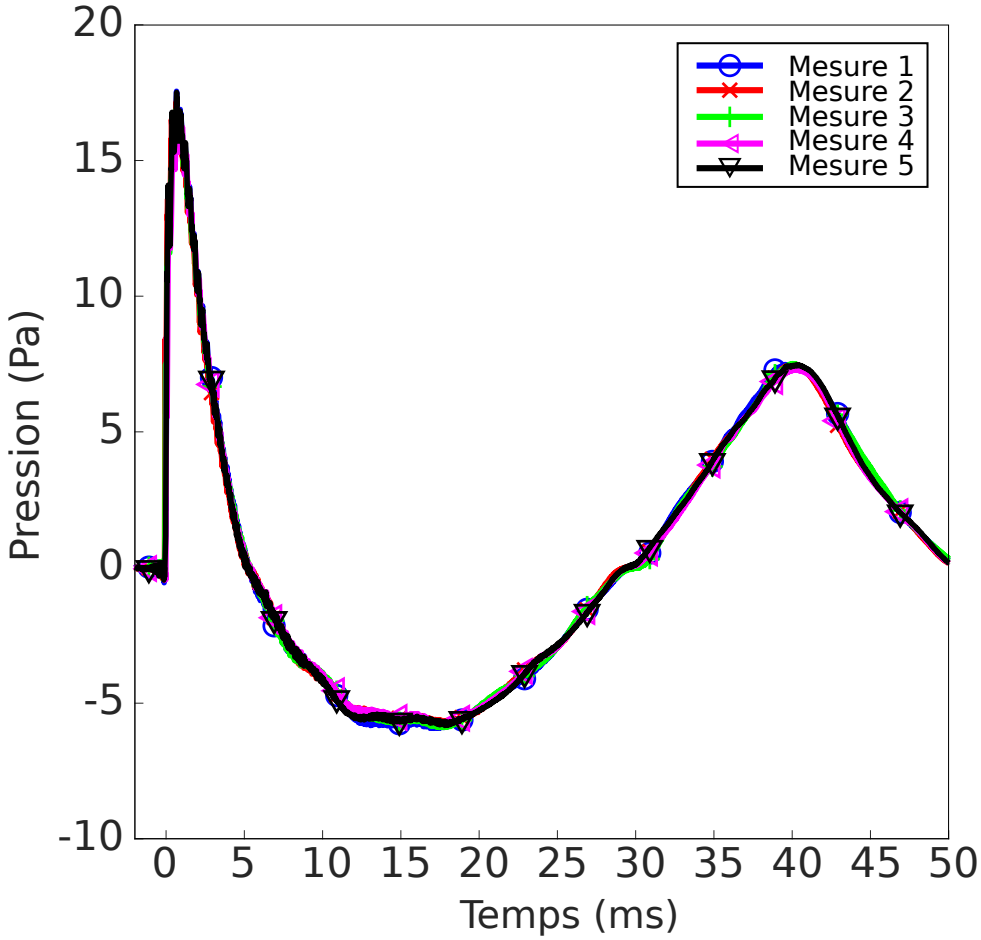

FIGURE A.2 – Superposition de cinq signaux hydrophoniques correspondant à la dynamique de la cavité dans le cas de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau.

Les petites variations de la dynamique de la cavité et du signal acoustique associé peuvent être dues aux petites variations des conditions de l'impact. En effet, la taille de la goutte peut varier d'une mesure à l'autre. De plus, durant sa chute, la goutte subit des déforma-

tions jusqu'au moment de l'impact. Ainsi, la forme de la goutte au moment de l'impact peut également varier. Généralement, la goutte a une forme ellipsoïdale. L'angle de l'axe majeur de cette ellipsoïdale avec l'interface varie de manière aléatoire. En effet, la Fig. A.3 montre l'image de la goutte 0.6 ms avant l'impact pour quatre mesures d'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau. L'ellipse la plus proche de la forme de la goutte sur l'image est déterminée à l'aide de l'algorithme présenté dans la partie 2.5. L'axe majeur de chacune des ellipses, représenté par l'axe noir, a un angle différent pour chacune des mesures. Plusieurs études montrent que, pour des régimes d'impact différents, le déroulement des événements hydrodynamiques après l'impact dépend de la déformation de la goutte au moment de l'impact [39, 100, 164-168]. La variation de ce paramètre pourrait peut-être permettre d'expliquer le manque de répétabilité de ce régime d'impact.

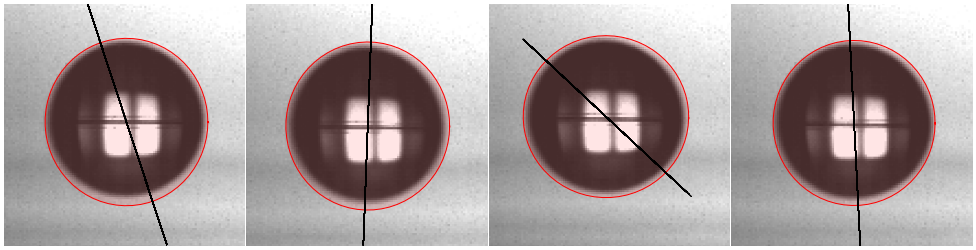

FIGURE A.3 – Image de la goutte 0.6 ms avant l'impact pour quatre mesures d'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau. L'ellipse en rouge montre l'ellipse la plus proche de la forme de la goutte. Le segment noir montre la direction de l'axe majeur de cette ellipse.

A.2.2 Variabilité du jet de Rayleigh

Le jet de Rayleigh, projeté suite à la rétraction de la cavité, est susceptible de montrer une certaine variabilité dans sa dynamique pour des conditions initiales identiques. En effet, les instabilités qui se développent à sa surface, responsables du détachement des gouttelettes secondaires, sont sensibles aux petites variations. Ainsi, de petites variations de la température, de la composition de l'eau ou des petites pollutions de surface, qui ne sont pas maîtrisables lors des mesures, peuvent engendrer des changements. Un exemple d'images du jet de Rayleigh, prises à des temps identiques pour des conditions d'impact identiques, est montré en Fig. A.4. Pour la première série à $t = 96$ ms après l'impact, les jets se ressemblent beaucoup. Deux principales différences sont cependant observables :

— la hauteur maximale du jet (prise au niveau du sommet de la goutte qui se détache) est légèrement différente,
— alors que sur les images A1 et B1, un lien est encore visible entre la gouttelette et le reste du jet, la gouttelette semble complètement détachée sur les images C1 et D1.

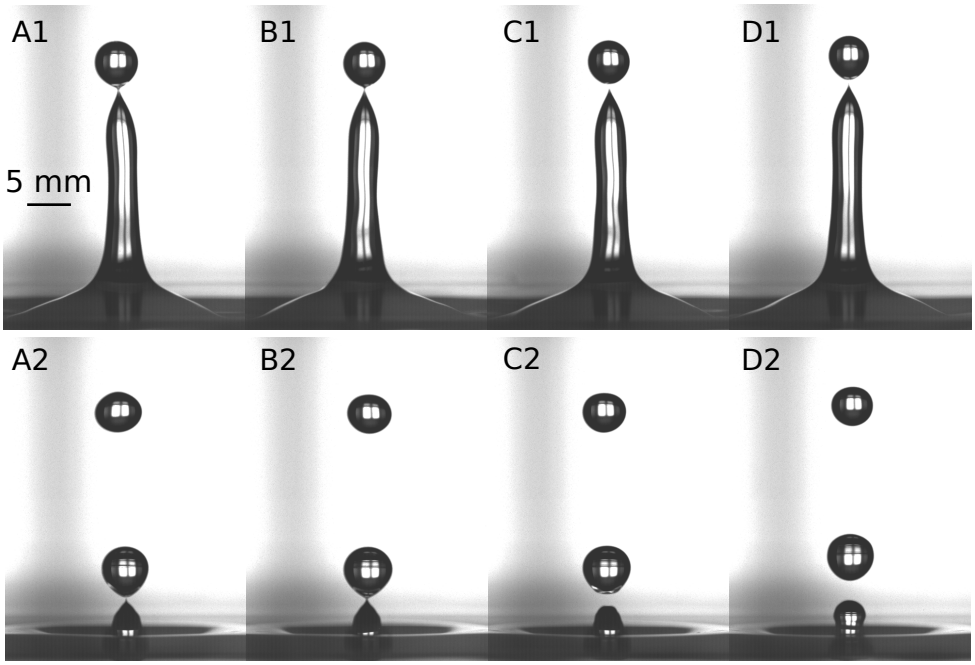

FIGURE A.4 – Images du jet de Rayleigh à $t = 96$ ms (haut) et $t = 138.5$ ms (bas) issues de différentes mesures d'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau.

Ainsi, la hauteur maximale atteinte par le jet et le temps auquel se détache la première gouttelette secondaire semblent varier légèrement pour de mêmes conditions initiales. Les images de la seconde série, prises à $t = 138.5$ ms, montrent comment ces légères différences se sont accentuées durant l'effondrement du jet. En effet, pour les images A1 et B1 où la première gouttelette secondaire n'est pas encore détachée, les images A2 et B2 montrent la seconde gouttelette secondaire en train de se détacher, mais avec toujours un lien avec la base du jet. Cependant, pour les images C1 et D1 qui montrent une première goutte secondaire déjà détachée du reste du jet, les images C2 et D2 montrent une seconde gouttelette secondaire déjà détachée et éloignée de la base du jet. De plus, les différences de hauteur sont nettement plus visibles sur la deuxième série. Ainsi, il est clair qu'une petite différence à un moment du développement du jet engendre des différences plus conséquentes dans la suite des événements hydrodynamiques.

Afin de comprendre l'effet des petites variations de la dynamique du jet sur l'emprisonnement de bulle, les signaux des bulles formées par les jets montrés en Fig. A.4 sont comparés en Fig. A.5. Les oscillations des signaux A, B et C commencent à un temps similaire ($\sim$ 154 ms), alors que le signal D démarre plus tard ($\sim$ 158 ms). Cette différence peut se comprendre à l'aide des images de la Fig. A.4. En effet, la seconde gouttelette secondaire en train de se détacher sur la seconde série d'images est à peu près à la même hauteur pour les images A à C, alors que l'image D montre une gouttelette à une hauteur plus élevée. Ainsi, dans le cas de D, la gouttelette impacte la surface plus tard que les autres, ce qui explique le démarrage des oscillations (qui correspond au détachement de la bulle) plus tardif. Les petites variations de la dynamique du jet provoquent ainsi des variations dans le temps de détachement des bulles, et donc dans le temps de démarrage des événements.

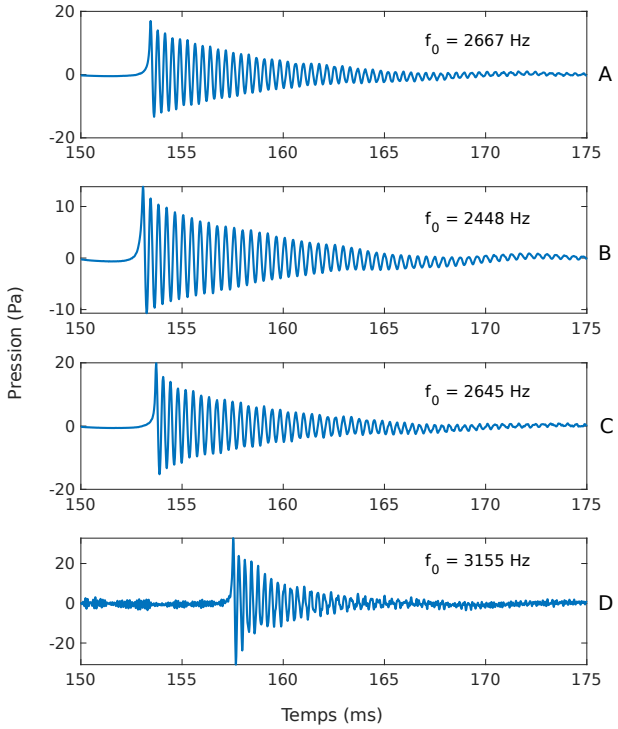

FIGURE A.5 – Signaux acoustiques émis par l'emprisonnement d'une bulle lors de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau.

Les signaux de la Fig. A.5, en plus d'une différence de temps de démarrage, présentent une différence de leur fréquence d'oscillation. En effet, alors que les signaux de A à C ont une fréquence proche, autour de 2500 Hz, la fréquence du signal D est plus élevée, estimée

à 3155 Hz. Cette différence peut s'expliquer par le retard de la retombée de la gouttelette sur la surface. En effet, sur la seconde série d'images de la Fig. A.4, alors que les secondes gouttelettes secondaires sont en train de se détacher, une légère différence de hauteur est visible entre les cas A à C et le cas D, la hauteur de la base du jet, juste en-dessous de cette gouttelette, étant la même. La bulle formée juste après l'est par un mécanisme de "zip-like flow", présenté dans le chapitre 3. Ce mécanisme consiste en la formation d'une cavité dans le liquide, par l'effondrement de la base du jet, qui est fermée par la gouttelette juste au-dessus. Ainsi, suivant le temps entre l'effondrement de la base du jet et la retombée de la gouttelette, le volume d'air emprisonné est plus ou moins important. En effet, comme illustré en Fig. A.6, suivant le temps mis par la gouttelette pour impacter la cavité, celle-ci est plus ou moins développée. Si la gouttelette impacte la cavité durant le début de son développement, le volume d'air emprisonné est faible et la bulle est de faible taille. Plus la gouttelette impacte la cavité tard dans son développement, plus la taille de la bulle est importante, jusqu'au maximum de développement de la cavité. Par la suite, si la gouttelette impacte la cavité durant sa rétraction, la taille de bulle formée est d'autant plus faible que l'impact est tardif. Si la goutte impacte la cavité à la fin de sa rétraction, alors qu'un jet commence à être éjecté, le mécanisme de formation de bulle est alors différent (cela correspond au mécanisme "donut splash", décrit au chapitre 4).

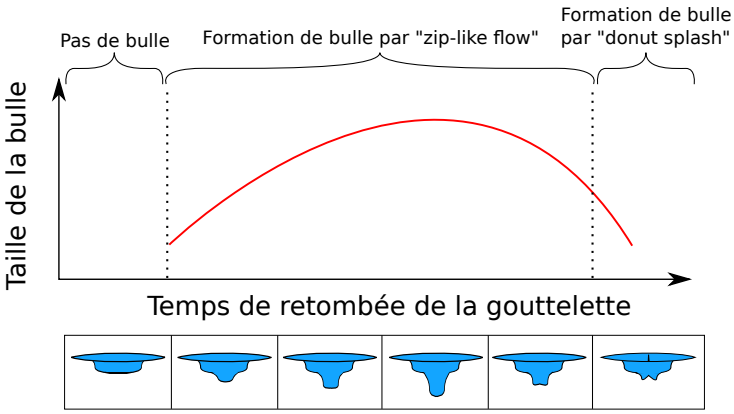

FIGURE A.6 – Schéma explicatif de l'évolution de la taille de la bulle emprisonnée en fonction de la forme de la cavité lors de l'impact de la gouttelette secondaire : si la gouttelette impacte la cavité au début de son développement, le volume d'air emprisonné est faible. Il augmente ensuite si la gouttelette impacte plus tard, lorsque la cavité est plus développée. Si la gouttelette impacte encore plus tard, lorsque la cavité est en train de se rétracter, le volume d'air emprisonné diminue à nouveau, jusqu'à la formation de bulle par "donut splash", qui arrive quand la gouttelette impacte la cavité alors qu'elle se rétracte et qu'un jet est projeté.

Dans le cas de la Fig. A.5, le signal acoustique le plus tardif D a donc une fréquence plus élevée car la gouttelette secondaire impacte la cavité au moment où celle-ci est en train de se rétracter. Ceci est bien corrélé à l'image D de la Fig. A.4, qui montre une distance plus élevée entre la gouttelette et la base du jet.

La fréquence des oscillations du signal de bulle est affichée en fonction du temps de démarrage du signal en Fig. A.7, pour différents impacts de gouttes d'eau sur de l'eau, avec des conditions initiales identiques. La tendance observée est similaire à celle illustrée dans la Fig. A.6 : quand la bulle est formée lorsque la cavité est à son maximum de développement ($\sim$ 155 ms), la taille de bulle est maximale, donc la fréquence des oscillations est minimale. Pour des temps moins élevés ou plus élevés que ce temps de développement maximal, la taille de la bulle formée est plus faible, donc la fréquence des oscillations est plus élevée.

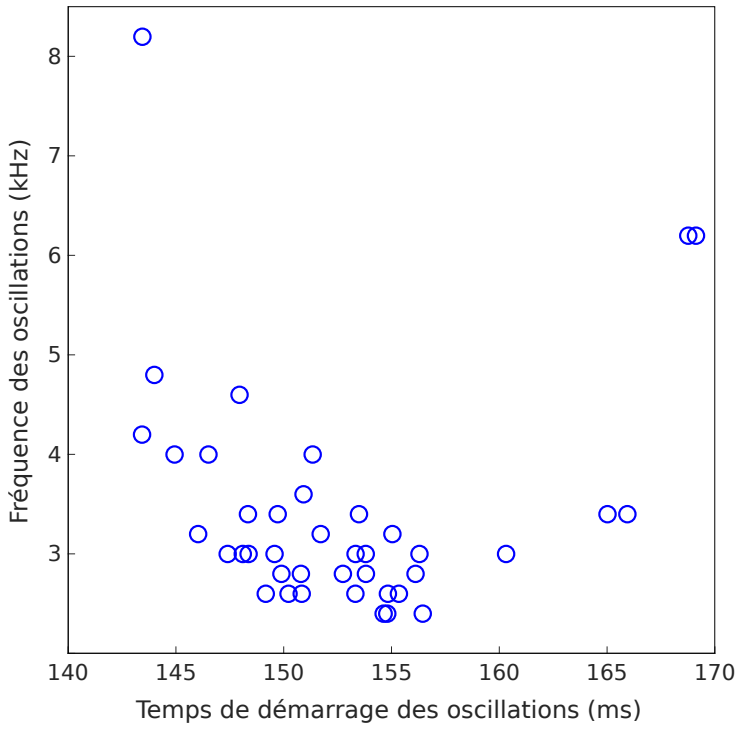

FIGURE A.7 – Fréquence des oscillations de pression émises par la vibration de bulle en fonction du temps de démarrage des oscillations.

A.3 Étude des variabilités à l'aide du signal acoustique

Le signal acoustique émis par les bulles emprisonnées présente des variabilités, liées aux variabilités des événements hydrodynamiques provoqués par l'impact. La variabilité des événements hydrodynamiques peut ainsi être étudiée avec le seul signal acoustique.

A.3.1 Critères de variabilité

Les petites variations observées entre différentes mesures avec les mêmes conditions initiales sont multiples : les dimensions (de la cavité, du jet de Rayleigh par exemple) ou le temps d'apparition (temps auquel une gouttelette secondaire se détache par exemple) sont des paramètres dont la variabilité peut être suivie à l'aide des mesures vidéos. Cependant, le choix est fait d'étudier principalement la variabilité de la formation de bulles. En effet, c'est pour la formation de bulles que ce régime a été qualifié d'"irregular entrainment". De plus, la variation des principaux événements hydrodynamiques observables est subtile, alors que les variations dans la formation de bulle sont clairement visibles. Enfin, les bulles formées émettant un signal acoustique, la variabilité de leur formation peut être suivie à l'aide du signal acoustique seul, sans l'aide de la vidéo. Ainsi, il est possible de réaliser un grand nombre de mesures rapidement et avec un coût de stockage de données moindre.

Lors des mesures avec différentes configurations et différents produits, décrites dans le chapitre 5, 50 mesures purement acoustiques de l'impact sont réalisées en plus des mesures de vidéo synchronisées avec l'acoustique. Ces mesures permettent ainsi d'étudier la variabilité de l'impact et d'en avoir une vision générale. Ces mesures présentent des événements acoustiques à des temps similaires, correspondant à l'emprisonnement d'une bulle à ce moment du déroulement des événements hydrodynamiques. L'utilisation d'un algorithme de clustering, présenté dans la section 2.2, permet de repérer les événements acoustiques arrivant aux mêmes temps et ainsi de définir des groupes de signaux correspondant à un même type d'événement.

Une fois les groupes de signaux définis, il est possible d'évaluer la variabilité des signaux dans chaque groupe, ce qui permet d'évaluer la variabilité de chaque mécanisme de for-

mation de bulle ayant lieu pour cette configuration d'impact. Cette variabilité est évaluée en étudiant trois critères liés à la formation de bulles :

— la variabilité d'apparition : le nombre de fois où un signal apparaît dans ce groupe par rapport au nombre total de mesures,
— la variabilité de temps d'apparition : l'écart-type des temps d'apparition des signaux dans ce groupe,
— la variabilité de taille de bulle : l'écart-type de la fréquence d'oscillation des signaux de ce groupe.

A.3.2 Étude de la variabilité par l'acoustique dans le cas de l'eau

Les études présentées dans la section A.2 montrent une certaine variabilité du jet de Rayleigh dans le cas d'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau. Cette variabilité se répercute directement sur l'emprisonnement de bulles, et donc sur le signal acoustique. Cette variabilité est ici étudiée à l'aide du signal acoustique et des trois critères définis précédemment. Les valeurs obtenues sont présentées dans le tableau A.1.

Taux d'apparition (%)	Écart-type de la fréquence (kHz)	Dispersion du temps d'apparition (ms)
84	3.672	0.761

Table A.1 – Valeur des critères de variabilité dans le cas de l'eau sur de l'eau.

Les valeurs obtenues pour ces paramètres servent par la suite de référence pour l'étude de la répétabilité avec d'autres configurations. En effet, le cas de l'eau sur de l'eau ne présente qu'un événement (le "zip-like flow").

A.3.3 Variabilité pour d'autres configurations

La variabilité de la formation de bulle est étudiée pour les différentes configurations testées.

Pour le cas des mesures avec l'éthanol, présentées en Fig. A.8, la variabilité semble augmenter avec la concentration d'éthanol. En effet, le taux d'apparition est globalement

plus faible pour les fortes concentrations. De plus, la dispersion de la fréquence et du temps d'apparition est plus élevée pour les fortes concentrations. Plus particulièrement, la dispersion du temps d'apparition augmente avec la concentration. La variabilité plus importante pour de fortes concentrations peut s'expliquer en observant le profil du jet de Rayleigh. En effet, alors que pour le cas de l'eau et pour de faibles concentrations en éthanol, le jet de Rayleigh est bien axisymétrique avec un profil régulier (Fig. A.4), ce n'est pas le cas pour des concentrations plus élevées en éthanol. La Fig. A.9 montre le jet de Rayleigh au maximum de sa hauteur pour une concentration de 70 % d'éthanol. Il est bien visible que le jet n'est pas axisymétrique et que son profil est irrégulier (amincissement à la base et élargissement plus haut). Ce profil irrégulier est dû à la faible tension de surface du liquide pour des fortes concentrations d'éthanol.

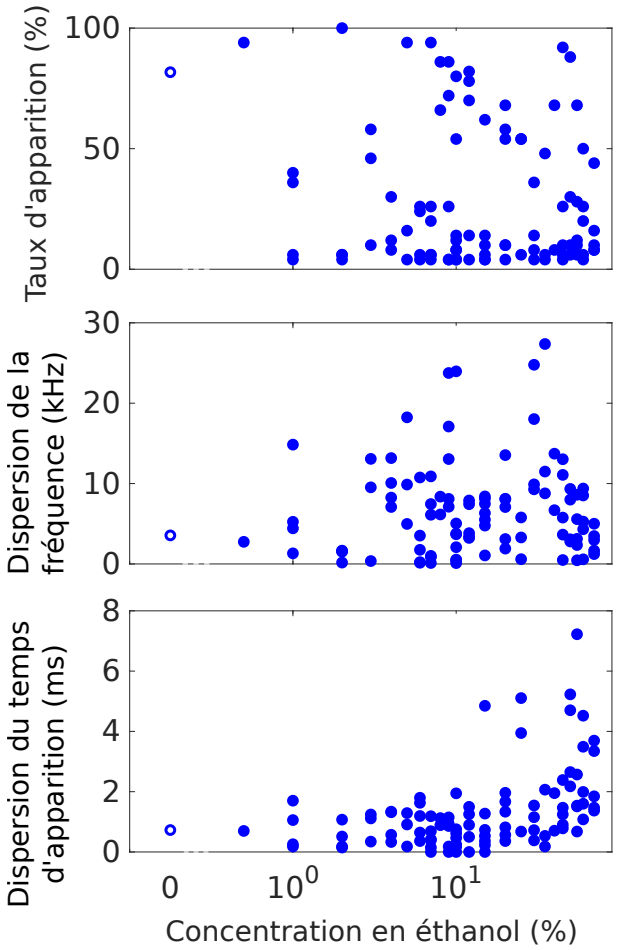

FIGURE A.8 – Valeur des différents critères de variabilité en fonction de la concentration d'éthanol, pour les différents événements acoustiques détectés.

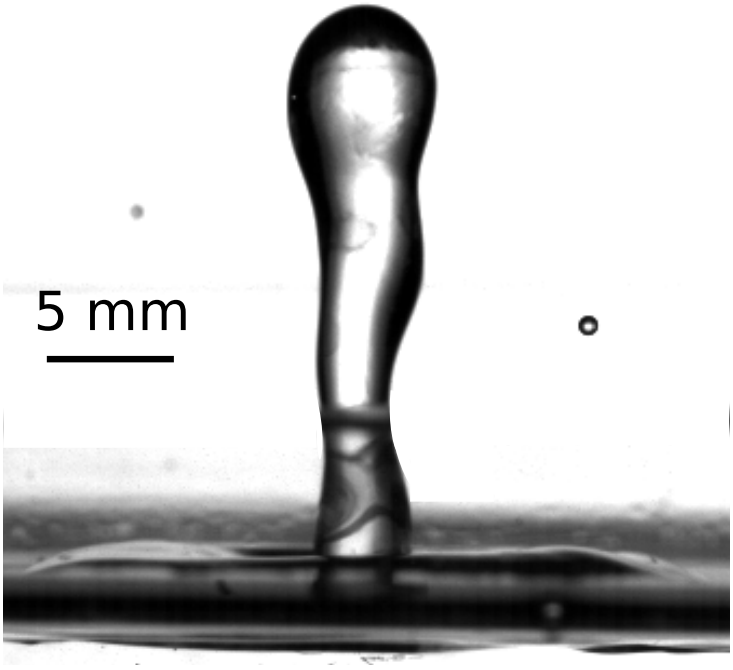

FIGURE A.9 – Jet de Rayleigh pour l'impact d'une goutte d'eau sur une solution aqueuse avec une concentration de 70 % d'éthanol.

La valeur des critères de variabilité est également calculée pour les mesures d'impact d'une goutte d'eau sur un bain de tensioactif. Les trois tensioactifs testés (SDS, CTAB et Brij35) sont observés. Les résultats, affichés en Fig. A.10, ne montrent pas de tendance particulière en fonction de la concentration en tensioactif. La plupart des événements affichent une variabilité plus importante que dans le cas de l'eau.

A.3.4 Variabilité des familles d'événements

L'utilisation de l'algorithme de clustering avec l'algorithme de classification permet d'étudier la variabilité des différentes familles de mécanismes de formation de bulle. Pour chaque cluster, les motifs acoustiques qu'il contient sont classifiés par l'algorithme de classification. La classe attribuée majoritairement aux signaux est ainsi attribuée au cluster. Les critères de variabilité sont alors calculés pour les signaux du cluster.

Les résultats pour les mesures d'impact d'une goutte d'eau sur un bain d'éthanol, de SDS, de CTAB et de Brij35 sont affichés en Fig. A.11. Aucune tendance particulière de la variabilité n'est visible suivant le liquide utilisé. La famille qui semble la moins variable

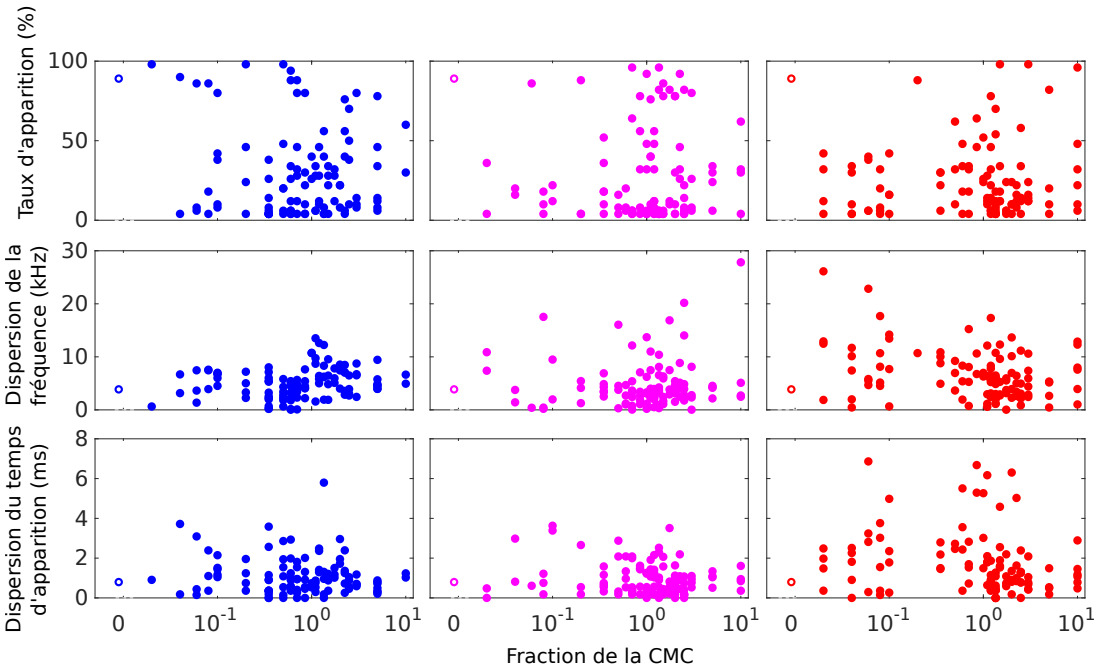

FIGURE A.10 – Valeur des critères de variabilité en fonction de la fraction de la CMC pour les mesures d'impact d'une goutte d'eau sur un bain de SDS (gauche), de CTAB (milieu) et de Brij35 (droite).

est la famille "zip-like flow" (ZLF). En effet, même si elle montre un taux d'apparition varié, la dispersion en fréquence et en temps d'apparition est globalement plus faible que les autres classes. La famille "Melser-like entrainment" (MLE) montre au contraire une variabilité plus forte, avec un taux d'apparition globalement faible et une dispersion en fréquence étalée.

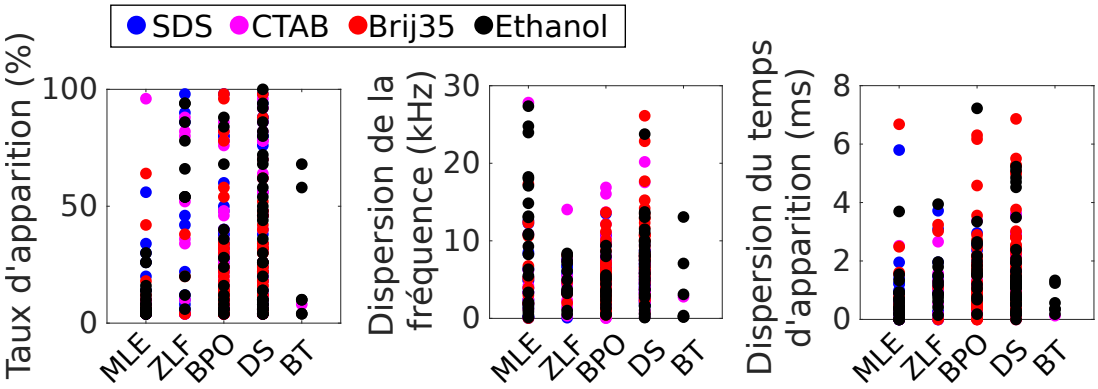

FIGURE A.11 – Valeur des critères de variabilité pour les différentes familles d'emprisonnement de bulle.

En conclusion, le mécanisme de "zip-like flow" semble être le plus répétable pour la formation de bulles.

A.3.5 Variabilité et qualité de l'eau

Les différentes études réalisées montrent que le déroulement d'un impact de goutte d'eau sur de l'eau pure est très sensible au moindre changement, que ce soit dans les conditions d'impact ou dans la composition du liquide. Alors que les modifications apportées au liquide lors des mesures sont maîtrisées (ajout de tensioactif à des concentrations précises par exemple), des modifications non maîtrisées peuvent intervenir. En effet, des impuretés présentes dans l'air peuvent contaminer la surface du liquide. Cette pollution affecte la tension de surface dans le temps [169], et peut ainsi influencer les événements hydrodynamiques de l'impact.

L'eau pure est particulièrement sensible à ce genre de pollution. Afin de vérifier son effet sur le déroulement de l'impact, des mesures acoustiques d'impacts de gouttes d'eau sur une surface d'eau sont effectuées en continu durant 3h30. Ces mesures sont ensuite traitées afin de suivre la répétabilité de la formation de bulle. La Fig. A.12 montre ainsi le pourcentage de bulles formées en fonction du temps. Ce pourcentage est calculé sur une fenêtre d'environ 8 minutes, en comptant le nombre de signaux présentant un son de bulle. Il est clairement visible que le pourcentage d'apparition de bulle diminue dans le temps, passant de presque 100 % à 0 %. Ainsi, la pollution progressive de la surface affecte probablement la dynamique du jet de Rayleigh, ce qui rend la formation de bulle de moins en moins répétable. Des études supplémentaires, avec des vidéos de l'impact ainsi que des analyses du liquide, permettraient de valider ces hypothèses.

La pollution de la surface du liquide est donc également un paramètre susceptible de modifier la répétabilité de l'impact et de la formation de bulle. Bien que cela affecte les mesures, en introduisant un élément aléatoire difficilement maîtrisable, la sensibilité du phénomène à cette pollution pourrait permettre d'utiliser le son de l'impact d'une goutte pour l'analyse de la pureté d'une surface d'eau.

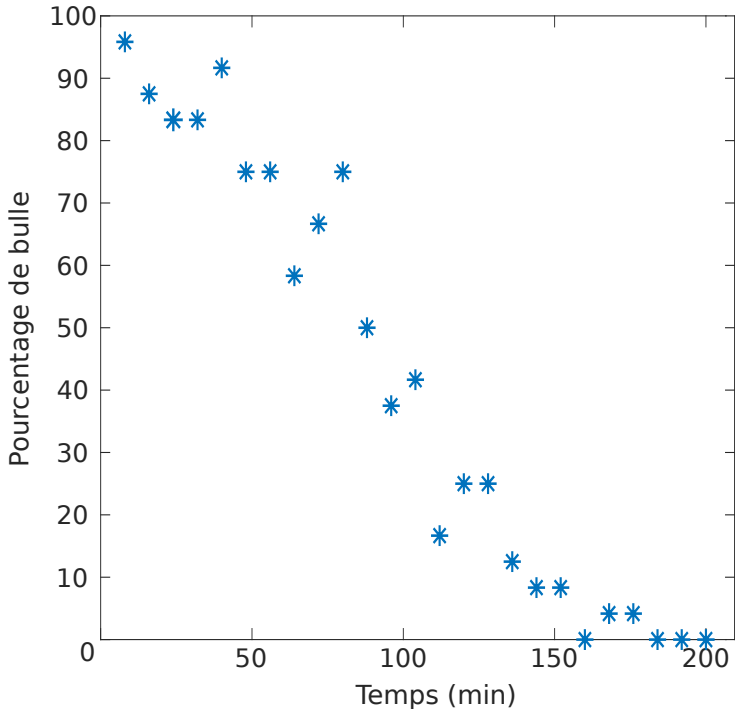

FIGURE A.12 – Pourcentage de bulles formées lors de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau en fonction du temps.

A.4 Conclusion

La variabilité du déroulement des événements hydrodynamiques engendrés par l'impact d'une goutte dans le cas du régime "irregular entrainment" est caractéristique de ce régime. Cependant, en prenant en compte un grand nombre de mesures pour une même configuration, il est possible d'avoir une vision précise du déroulement des événements en prenant en compte la variabilité de différents paramètres.

L'utilisation du signal acoustique facilite l'étude de la variabilité de la formation de bulles. En effet, les mesures sont plus facilement réalisables, moins coûteuses en terme d'espace de stockage et plus faciles à traiter. La définition de trois critères de variabilité, concernant la présence, la fréquence et le temps d'apparition du signal, permet d'étudier les événements pouvant avoir lieu pour une configuration d'impact, et si ces événements sont systématiques ou exceptionnels.

Dans ce régime, la variabilité de la formation de bulle dépend fortement de la variabilité de la dynamique du jet. Ainsi, la variabilité du signal acoustique peut apporter des informations sur la dynamique du jet. Une étude plus approfondie de cette dynamique et de l'influence des propriétés du liquide sur sa variabilité pourrait permettre d'utiliser la variabilité du signal acoustique comme indicateur de la nature du liquide.

Bibliographie

[1] G. F. Oweis, J. Choi et S. L. Ceccio, « Dynamics and noise emission of laser induced cavitation bubbles in a vortical flow field », *The Journal of the Acoustical Society of America*, **115**, p. 1049-1058, 2004.

[2] A. Bussonnière, A. Antkowiak, F. Ollivier, M. Baudoin et R. Wunenburger, « Sound of Interfacial Flows : Unraveling the Forces Shaping Fast Capillary Flows using their Acoustic Signature », *arXiv :1810.05599 [cond-mat, physics :physics]*, 2018.

[3] K. v. d. Doel, « Physically Based Models for Liquid Sounds », *ACM Trans. Appl. Percept.*, **2**, p. 534-546, 2005.

[4] S. Liu, H. Cheng et Y. Tong, « Physically-based statistical simulation of rain sound », *ACM Transactions on Graphics*, **38**, p. 1-14, 2019.

[5] H. C. Pumphrey, L. A. Crum et L. Bjorno, « Underwater sound produced by individual drop impacts and rainfall », *The Journal of the Acoustical Society of America*, **85**, p. 1518-1526, 1989.

[6] H. Medwin, J. A. Nystuen, P. W. Jacobus, L. H. Ostwald et D. E. Snyder, « The anatomy of underwater rain noise », *The Journal of the Acoustical Society of America*, **92**, p. 1613-1623, 1992.

[7] J. A. Nystuen, S. E. Moore et P. J. Stabeno, « A sound budget for the southeastern Bering Sea : Measuring wind, rainfall, shipping, and other sources of underwater sound », *The Journal of the Acoustical Society of America*, **128**, p. 58-65, 2010.

[8] J. Testud, S. Oury, R. A. Black, P. Amayenc et X. Dou, « The Concept of "Normalized" Distribution to Describe Raindrop Spectra : A Tool for Cloud Physics and Cloud Remote Sensing », *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, **40**, p. 1118-1140, 2001.

[9] W. F. Krajewski, G. J. Ciach et E. Habib, « An analysis of small-scale rainfall variability in different climatic regimes », *Hydrological Sciences Journal*, **48**, p. 151-162, 2003.

[10] K. Walters et W. M. Jones, *Measurement of viscosity (Instrumentation Reference Book)*. 2003.

[11] S. Ebnesajjad, *Surface Tension and Its Measurement (Handbook of Adhesives and Surface Preparation)*. 2011.

[12] M. K. C. Sridhar et C. Rami Reddy, « Surface tension of polluted waters and treated wastewater », *Environmental Pollution Series B, Chemical and Physical*, **7**, p. 49-69, 1984.

[13] C. J. Diskin, T. J. Stokes, L. M. Dansby, T. B. Carter et L. Radcliff, « Surface tension, proteinuria, and the urine bubbles of Hippocrates », *The Lancet*, **355**, p. 901-902, 2000.

[14] P. Jk et al., « Correlation of Urinary Foam with Proteinuria in Patients with Chronic Kidney Disease », *Translational Biomedicine*, **8**, p. 2, 2017.

[15] G. Vazquez, E. Alvarez et J. M. Navaza, « Surface Tension of Alcohol Water + Water from 20 to 50 .degree.C », *Journal of Chemical & Engineering Data*, **40**, p. 611-614, 1995.

[16] R. A. Awad, Z. M. R. Hassan et W. M. Salama, « Surface tension and foaming properties as a simple index in relation to buffalo milk adulteration », *International Journal of Dairy Science*, **9**, p. 106-115, 2014.

[17] S. N. Sahasrabudhe, J. A. Staton et B. E. Farkas, « Effect of frying oil degradation on surface tension and wettability », *LWT*, **99**, p. 519-524, 2019.

[18] A. M. Worthington, *A study of splashes*. 1908.

[19] H. R. A. Mallock, « Sounds produced by drops falling on water », *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, **95**, p. 138-143, 1918.

[20] G. J. Franz, « Splashes as Sources of Sound in Liquids », *The Journal of the Acoustical Society of America*, **31**, p. 1080-1096, 1959.

[21] H. C. Pumphrey et P. A. Elmore, « The entrainment of bubbles by drop impacts », *Journal of Fluid Mechanics*, **220**, p. 539-567, 1990.

[22] H. C. Pumphrey et A. J. Walton, « Experimental study of the sound emitted by water drops impacting on a water surface », *European Journal of Physics*, **9**, p. 225-231, 1988.

[23] A. Prosperetti et H. N. Oguz, « The Impact of Drops on Liquid Surfaces and the Underwater Noise of Rain », *Annual Review of Fluid Mechanics*, **25**, p. 577-602, 1993.

[24] M. Rein, « The transitional regime between coalescing and splashing drops », *Journal of Fluid Mechanics*, **306**, p. 145-165, 1996.

[25] D. Morton, M. Rudman et L. Jong-Leng, « An investigation of the flow regimes resulting from splashing drops », *Physics of Fluids*, **12**, p. 747-763, 2000.

[26] L. J. L. Liow, « Splash formation by spherical drops », *Journal of Fluid Mechanics*, **427**, p. 73-105, 2001.

[27] Q. Deng, A. V. Anilkumar et T. G. Wang, « The role of viscosity and surface tension in bubble entrapment during drop impact onto a deep liquid pool », *Journal of Fluid Mechanics*, **578**, p. 119-138, 2007.

[28] S. T. Thoroddsen, K. Takehara, H. D. Nguyen et T. G. Etoh, « Singular jets during the collapse of drop-impact craters », *Journal of Fluid Mechanics*, **848**, 2018.

[29] B. Ray, G. Biswas et A. Sharma, « Bubble pinch-off and scaling during liquid drop impact on liquid pool », *Physics of Fluids*, **24**, p. 082 108, 2012.

[30] ——, « Regimes during liquid drop impact on a liquid pool », *Journal of Fluid Mechanics*, **768**, p. 492-523, 2015.

[31] K. Carroll et R. Mesler, « Part II : Bubble entrainment by drop-formed vortex rings », *AIChE Journal*, **27**, p. 853-856, 1981.

[32] L. Esmailizadeh et R. Mesler, « Bubble entrainment with drops », *Journal of Colloid and Interface Science*, **110**, p. 561-574, 1986.

[33] T. Bergman et R. Mesler, « Bubble nucleation studies. Part I : Formation of bubble nuclei in superheated water by bursting bubbles », *AIChE Journal*, **27**, p. 851-853, 1981.

[34] J. Sigler et R. Mesler, « The behavior of the gas film formed upon drop impact with a liquid surface », *Journal of Colloid and Interface Science*, **134**, p. 459-474, 1990.

[35] M.-J. Thoraval, Y. Li et S. T. Thoroddsen, « Vortex-ring-induced large bubble entrainment during drop impact », *Physical Review E*, **93**, p. 033 128, 2016.

[36] H. Deka, B. Ray, G. Biswas, A. Dalal, P.-H. Tsai et A.-B. Wang, « The regime of large bubble entrapment during a single drop impact on a liquid pool », *Physics of Fluids*, **29**, p. 092 101, 2017.

[37] Y. Tomita, T. Saito et S. Ganbara, « Surface breakup and air bubble formation by drop impact in the irregular entrainment region », *Journal of Fluid Mechanics*, **588**, p. 131-152, 2007.

[38] R. Chicharro, R. Manasseh et A. Vazquez, « The heart signal : An acoustic signature observed during a second-bubble entrainment », *Chemical Engineering Science*, **219**, p. 115 597, 2020.

[39] Y. D. Chashechkin et V. E. Prokhorov, « Acoustics and hydrodynamics of a drop impact on a water surface », *Acoustical Physics*, **63**, p. 33-44, 2017.

[40] Y. Chashechkin et V. Prokhorov, « Hydrodynamics, Energetics and Acoustics of Free Falling Drop Impact at a Motionless Fluid », 2020.

[41] F. Rodriguez et R. Mesler, « Some drops don't splash », *Journal of Colloid and Interface Science*, **106**, p. 347-352, 1985.

[42] M. Rein, « Phenomena of liquid drop impact on solid and liquid surfaces », *Fluid Dynamics Research*, **12**, p. 61, 1993.

[43] F. Blanchette et T. P. Bigioni, « Partial coalescence of drops at liquid interfaces », *Nature Physics*, **2**, p. 254-257, 2006.

[44] T. Dong, W. H. Weheliye, P. Chausset et P. Angeli, « An experimental study on the drop/interface partial coalescence with surfactants », *Physics of Fluids*, **29**, p. 102 101, 2017.

[45] O. G. Engel, « Crater Depth in Fluid Impacts », *Journal of Applied Physics*, **37**, p. 1798-1808, 1966.

[46] ——, « Initial Pressure, Initial Flow Velocity, and the Time Dependence of Crater Depth in Fluid Impacts », *Journal of Applied Physics*, **38**, p. 3935-3940, 1967.

[47] E. Castillo-Orozco, A. Davanlou, P. K. Choudhury et R. Kumar, « Droplet impact on deep liquid pools : Rayleigh jet to formation of secondary droplets », *Physical Review E*, **92**, p. 053 022, 2015.

[48] G.-J. Michon, C. Josserand et T. Séon, « Jet dynamics post drop impact on a deep pool », *Physical Review Fluids*, **2**, p. 023 601, 2017.

[49] J. Shin et T. A. McMahon, « The tuning of a splash », *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics*, **2**, p. 1312-1317, 1990.

[50] F. Marcotte, G.-J. Michon, T. Séon et C. Josserand, « Ejecta, Corolla, and Splashes from Drop Impacts on Viscous Fluids », *Physical Review Letters*, **122**, p. 014 501, 2019.

[51] J.-M. Cheny et K. Walters, « Rheological influences on the splashing experiment », *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, **86**, p. 185-210, 1999.

[52] X.-S. Wang, X.-D. Zhao, Y. Zhang, X. Cai, R. Gu et H.-L. Xu, « Experimental Study on the Interaction of a Water Drop Impacting on Hot Liquid Surfaces », *Journal of Fire Sciences*, **27**, p. 545-559, 2009.

[53] S. E. Yakush, Y. D. Chashechkin, A. Y. Ilinykh et V. A. Usanov, « The Splashing of Melt upon the Impact of Water Droplets and Jets », *Applied Sciences*, **11**, p. 909, 2021.

[54] K. Dhuper, S. Deep Guleria et P. Kumar, « Interface dynamics at the impact of a drop onto a deep pool of immiscible liquid », *Chemical Engineering Science*, p. 116 541, 2021.

[55] T.-Q. Nguyen-Pham, L. Benyahia, G. Bastiat, J. Riou et M.-C. Venier-Julienne, « Behavior of poly(d,l-lactic-co-glycolic acid) (PLGA)-based droplets falling into a complex extraction medium simulating the prilling process », *Journal of Colloid and Interface Science*, **561**, p. 838-848, 2020.

[56] Y. P. Guo et J. E. F. Williams, « A theoretical study on drop impact sound and rain noise », *Journal of Fluid Mechanics*, **227**, p. 345-355, 1991.

[57] M. S. Howe et N. A. A. Hagen, « On the impact noise of a drop falling on water », *Journal of Sound and Vibration*, **330**, p. 625-635, 2011.

[58] W. Bragg, « The world of sound ; six lectures delivered before a juvenile auditory at the Royal institution, Christmas, 1919, by Sir William Bragg. », 1920.

[59] M. Minnaert, « On musical air-bubbles and the sounds of running water », *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, **16**, p. 235-248, 1933.

[60] H. C. Pumphrey et L. A. Crum, « Acoustic Emissions Associated with Drop Impacts », p. 463-483, 1988.

[61] S. T. Beacham, C. F. Tilger et M. A. Oehlschlaeger, « Sound generation by water drop impact on surfaces », *Experimental Thermal and Fluid Science*, **117**, p. 110 138, 2020.

[62] S. Phillips, A. Agarwal et P. Jordan, « The Sound Produced by a Dripping Tap is Driven by Resonant Oscillations of an Entrapped Air Bubble », *Scientific Reports*, **8**, p. 9515, 2018.

[63] J. Friedrich et M. Schäfer, « Towards an Acoustic Simulation of a Water Drop Impacting in a Water Pool », *Flow, Turbulence and Combustion*, 2020.

[64] Y. D. Chashechkin et V. E. Prokhorov, « Primary acoustic signal structure during free falling drop collision with a water surface », *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, **122**, p. 748-758, 2016.

[65] ——, « Aero- and hydroacoustics of the impact for a droplet freely falling onto the water surface », *Doklady Physics*, **55**, p. 460-464, 2010.

[66] B. Lautrup, *Physics of Continuous Matter : Exotic and Everyday Phenomena in the Macroscopic World*. 2011.

[67] M. V. Berry, « The molecular mechanism of surface tension », *Physics Education*, **6**, p. 79-84, 1971.

[68] D. Gennes et F. Brochard-Wyart, *Gouttes, Bulles, Perles Et Ondes*. 2005.

[69] J. Escobedo et G. A. Mansoori, « Surface-tension prediction for liquid mixtures », *AIChE Journal*, **44**, p. 2324-2332, 1998.

[70] E. A. Guggenheim, « The Principle of Corresponding States », *The Journal of Chemical Physics*, **13**, p. 253-261, 1945.

[71] K. Holmberg, B. Jönsson, B. Kronberg et B. Lindman, *Surfactants and Polymers in Aqueous Solution*. 2003.

[72] I. Langmuir, « The constitution and fundamental properties of solids and liquids. II. Liquids. », *Journal of the American Chemical Society*, **39**, p. 1848-1906, 1917.

[73] A. Frumkin, « Die Kapillarkurve der höheren Fettsäuren und die Zustandsgleichung der Oberflächenschicht », *Zeitschrift für Physikalische Chemie*, **116U**, p. 466-484, 1925.

[74] S. S. Dukhin, G. Kretzschmar et R. Miller, *Dynamics of Adsorption at Liquid Interfaces : Theory, Experiment, Application.* 1995.

[75] A. F. H. Ward et L. Tordai, « Time-Dependence of Boundary Tensions of Solutions I. The Role of Diffusion in Time-Effects », *The Journal of Chemical Physics*, **14**, p. 453-461, 1946.

[76] C.-H. Chang et E. I. Franses, « Adsorption dynamics of surfactants at the air/water interface : a critical review of mathematical models, data, and mechanisms », *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, **100**, p. 1-45, 1995.

[77] M. Roché et al., « Marangoni Flow of Soluble Amphiphiles », *Physical Review Letters*, **112**, p. 208 302, 2014.

[78] A. Novak, M. Bruneau et P. Lotton, *Small-Sized Rectangular Liquid-Filled Acoustical Tank Excitation : A Modal Approach Including Leakage Through the Walls*, 2018.

[79] J. M. Cheny et K. Walters, « Extravagant viscoelastic effects in the Worthington jet experiment », *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, **67**, p. 125-135, 1996.

[80] V. B. Fainerman, R. Miller et P. Joos, « The measurement of dynamic surface tension by the maximum bubble pressure method », *Colloid and Polymer Science*, **272**, p. 731-739, 1994.

[81] A. I. Rusanov et V. A. Prokhorov, *Interfacial Tensiometry.* 1996.

[82] V. Hella, « Digital Audio Restoration », 2013.

[83] P. Welch, « The use of fast Fourier transform for the estimation of power spectra : A method based on time averaging over short, modified periodograms », *IEEE Transactions on Audio and Electroacoustics*, **15**, p. 70-73, 1967.

[84] Y. Ephraim et D. Malah, « Speech enhancement using a minimum-mean square error short-time spectral amplitude estimator », *IEEE Transactions on Acoustics, Speech, and Signal Processing*, **32**, p. 1109-1121, 1984.

[85] T. Leighton, *The Acoustic Bubble*. 2012.

[86] M. Strasberg, « Gas Bubbles as Sources of Sound in Liquids », *The Journal of the Acoustical Society of America*, **28**, p. 20-26, 1956.

[87] G. Gillot, C. Derec, J.-M. Génevaux, L. Simon et L. Benyahia, « A new insight on a mechanism of airborne and underwater sound of a drop impacting a liquid surface », *Physics of Fluids*, **32**, p. 062 004, 2020.

[88] H. Ma, C. Liu, X. Li, H. Huang et J. Dong, « Deformation characteristics and energy conversion during droplet impact on a water surface », *Physics of Fluids*, **31**, p. 062 108, 2019.

[89] G. Kathiravelu, T. Lucke et P. Nichols, « Rain Drop Measurement Techniques : A Review », *Water*, **8**, p. 29, 2016.

[90] H. N. Oguz et A. Prosperetti, « Bubble entrainment by the impact of drops on liquid surfaces », *Journal of Fluid Mechanics*, **219**, p. 143-179, 1990.

[91] M. S. Longuet-Higgins, « An analytic model of sound production by raindrops », *Journal of Fluid Mechanics*, **214**, p. 395-410, 1990.

[92] G. B. Deane, « Determining the bubble cap film thickness of bursting bubbles from their acoustic emissions », *The Journal of the Acoustical Society of America*, **133**, p. 69-75, 2013.

[93] V. E. Prokhorov et Y. D. Chashechkin, « Sound generation as a drop falls on a water surface », *Acoustical Physics*, **57**, p. 807-818, 2011.

[94] C. W. Hirt et B. D. Nichols, « Volume of fluid (VOF) method for the dynamics of free boundaries », *Journal of Computational Physics*, **39**, p. 201-225, 1981.

[95] O. A. Godin, « Sound transmission through water–air interfaces : new insights into an old problem », *Contemporary Physics*, **49**, p. 105-123, 2008.

[96] E. V. Glushkov, N. V. Glushkova et O. A. Godin, « The effect of anomalous transparency of the water-air interface for a volumetric sound source », *Acoustical Physics*, **59**, p. 6-15, 2013.

[97] A. P. Voloshchenko et S. P. Tarasov, « Effect of anomalous transparency of a liquid-gas interface for sound waves », *Acoustical Physics*, **59**, p. 163-169, 2013.

[98] G. Gillot, L. Simon, J.-M. Génevaux et L. Benyahia, « Acoustic signatures and bubble entrainment mechanisms of a drop impacting a water surface with surfactant », *Physics of Fluids*, **33**, p. 077 114, 2021.

[99] B. W. Zeff, B. Kleber, J. Fineberg et D. P. Lathrop, « Singularity dynamics in curvature collapse and jet eruption on a fluid surface », *Nature*, **403**, p. 401-404, 2000.

[100] B. H. Mills, J. R. Saylor et F. Y. Testik, « An experimental study of Mesler entrainment on a surfactant-covered interface : The effect of drop shape and Weber number », *AIChE Journal*, **58**, p. 46-58, 2012.

[101] R. K. Sundberg-Anderson et J. R. Saylor, « Mesler entrainment in alcohols », *Experiments in Fluids*, **55**, p. 1653, 2014.

[102] Y. Lee, S. Shin, G. Choi, H. Jeon, Y. Kim et H. Kim, « Symmetry breaking of Worthington jets by gradients in liquid pool depth », *Physics of Fluids*, **32**, p. 112 104, 2020.

[103] M. Aytouna, D. Bartolo, G. Wegdam, D. Bonn et S. Rafaï, « Impact dynamics of surfactant laden drops : dynamic surface tension effects », *Experiments in Fluids*, **48**, p. 49-57, 2010.

[104] J. J. Cooper-White, R. C. Crooks et D. V. Boger, « A drop impact study of worm-like viscoelastic surfactant solutions », *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, **210**, p. 105-123, 2002.

[105] K. P. Gatne, M. A. Jog et R. M. Manglik, « Surfactant-Induced Modification of Low Weber Number Droplet Impact Dynamics », *Langmuir*, **25**, p. 8122-8130, 2009.

[106] X. Zhang et O. A. Basaran, « Dynamic Surface Tension Effects in Impact of a Drop with a Solid Surface », *Journal of Colloid and Interface Science*, **187**, p. 166-178, 1997.

[107] Z. Che et O. K. Matar, « Impact of Droplets on Liquid Films in the Presence of Surfactant », *Langmuir*, **33**, p. 12 140-12 148, 2017.

[108] D. Fell et al., « Drop impact on surfactant films and solutions », *Colloid and Polymer Science*, **291**, p. 1963-1976, 2013.

[109] O. Cappe, « Elimination of the musical noise phenomenon with the Ephraim and Malah noise suppressor », *IEEE Transactions on Speech and Audio Processing*, **2**, p. 345-349, 1994.

[110] Y. Song, L. Zhang et E. N. Wang, « Criteria for antibubble formation from drop pairs impinging on a free surface », *Physical Review Fluids*, **5**, p. 123 601, 2020.

[111] W. Wang, F. Lin, X. Wei et J. Zou, « Antibubble formation by a single drop impact on a free surface », *Physics of Fluids*, **33**, p. 042 107, 2021.

[112] F. Pedregosa et al., « Scikit-learn : Machine Learning in Python », *Journal of Machine Learning Research*, **12**, p. 2825-2830, 2011.

[113] T. Divoux, V. Vidal, F. Melo et J.-C. Géminard, « Acoustic emission associated with the bursting of a gas bubble at the free surface of a non-Newtonian fluid », *Physical Review E*, **77**, p. 056 310, 2008.

[114] T. Alhashan, A. Addali, J. Amaral Teixeira et S. Elhashan, « Identifying bubble occurrence during pool boiling employing acoustic emission technique », *Applied Acoustics*, **132**, p. 191-201, 2018.

[115] D. I. Hefft et F. Alberini, « A step towards the live identification of pipe obstructions with the use of passive acoustic emission and supervised machine learning », **191**, p. 48-59, 2020.

[116] M. Zhong et al., « Detecting, classifying, and counting blue whale calls with Siamese neural networks », **149**, p. 3086-3094, 2021.

[117] C. Bedoya, C. Isaza, J. M. Daza et J. D. López, « Automatic identification of rainfall in acoustic recordings », *Ecological Indicators*, **75**, p. 95-100, 2017.

[118] O. Glowacki et G. B. Deane, « Quantifying iceberg calving fluxes with underwater noise », *The Cryosphere*, **14**, p. 1025-1042, 2020.

[119] A. Ferrari, « Fluid dynamics of acoustic and hydrodynamic cavitation in hydraulic power systems », *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, **473**, p. 20 160 345, 2017.

[120] S. Singh et A. Mohanty, « Measurement of boiling liquid levels by decomposition of sound waves in a waveguide », *Applied Acoustics*, **129**, p. 248-257, 2018.

[121] M. Rivera, E. López et S. Cancelos, « A non-invasive, low frequency resonant method to detect bubbles in liquid media », *Applied Acoustics*, **179**, p. 108 044, 2021.

[122] C. R. Harris et al., « Array programming with NumPy », *Nature*, **585**, p. 357-362, 2020.

[123] H. I. Abelson, « Pressure measurements in the water-entry cavity », *Journal of Fluid Mechanics*, **44**, p. 129-144, 1970.

[124] A. I. Fedorchenko et A.-B. Wang, « On some common features of drop impact on liquid surfaces », *Physics of Fluids*, **16**, p. 1349-1365, 2004.

[125] I. V. Roisman, N. P. van Hinsberg et C. Tropea, « Propagation of a kinematic instability in a liquid layer : Capillary and gravity effects », *Physical Review E*, **77**, p. 046 305, 2008.

[126] A. Bisighini, G. E. Cossali, C. Tropea et I. V. Roisman, « Crater evolution after the impact of a drop onto a semi-infinite liquid target », *Physical Review E*, **82**, p. 036 319, 2010.

[127] E. Berberović, N. P. van Hinsberg, S. Jakirlić, I. V. Roisman et C. Tropea, « Drop impact onto a liquid layer of finite thickness : Dynamics of the cavity evolution », *Physical Review E*, **79**, p. 036 306, 2009.

[128] F. Jia, K. Sun, P. Zhang, C. Yin et T. Wang, « Marangoni effect on the impact of droplets onto a liquid-gas interface », *Physical Review Fluids*, **5**, p. 073 605, 2020.

[129] A. Ogawa, K. Utsuno, M. Mutou, S. Kouzen, Y. Shimotake et Y. Satou, « Morphological Study of Cavity and Worthington Jet Formations for Newtonian and Non-Newtonian Liquids », *Particulate Science and Technology*, **24**, p. 181-225, 2006.

[130] L. V. Zhang, J. Toole, K. Fezzaa et R. D. Deegan, « Splashing from drop impact into a deep pool : multiplicity of jets and the failure of conventional scaling », *Journal of Fluid Mechanics*, **703**, p. 402-413, 2012.

[131] S. L. Manzello et J. C. Yang, « The influence of liquid pool temperature on the critical impact Weber number for splashing », *Physics of Fluids*, **15**, p. 257-260, 2002.

[132] R. H. Chen et C.-M. Lai, « Collision outcome of a water drop on the surface of a deep diesel fuel pool », *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part C : Journal of Mechanical Engineering Science*, **225**, p. 1638-1648, 2011.

[133] C. Tang, « An Experimental Study on Droplet Impact on a Deep Liquid Pool : Impact Outcomes and Their Transition Boundaries », *Journal of Water Science and Engineering*, **1**, p. 1-9, 2020.

[134] S. L. Manzello et J. C. Yang, « An experimental study of a water droplet impinging on a liquid surface », *Experiments in Fluids*, **32**, p. 580-589, 2002.

[135] M. Mohasan, A. B. Aqeel, P. Lv, Y. Yang et H. Duan, « Cavity dynamics of water drop impact onto immiscible oil pool with different viscosity », *Acta Mechanica Sinica*, 2021.

[136] J. W. Jennings et N. R. Pallas, « An efficient method for the determination of interfacial tensions from drop profiles », *Langmuir*, **4**, p. 959-967, 1988.

[137] I. S. Khattab, F. Bandarkar, M. A. A. Fakhree et A. Jouyban, « Density, viscosity, and surface tension of water+ethanol mixtures from 293 to 323K », **29**, p. 812-817, 2012.

[138] X. Liu, A. Wang, S. Wang et D. Dai, « Effects of wind on the dynamics of the central jet during drop impact onto a deep-water surface », *Physical Review Fluids*, **3**, p. 053 602, 2018.

[139] W. H. Hager, « Wilfrid Noel Bond and the Bond number », **50**, p. 3-9, 2012.

[140] P. K. Kundu, I. M. Cohen et D. R. Dowling, *Gravity Waves (Fluid Mechanics)*. 2012.

[141] N. M. Kovalchuk, H. Jenkinson, R. Miller et M. J. H. Simmons, « Effect of soluble surfactants on pinch-off of moderately viscous drops and satellite size », **516**, p. 182-191, 2018.

[142] N. M. Kovalchuk et M. J. H. Simmons, « Surfactant-mediated wetting and spreading : Recent advances and applications », **51**, p. 101 375, 2021.

[143] M. Kalli, L. Chagot et P. Angeli, « Comparison of surfactant mass transfer with drop formation times from dynamic interfacial tension measurements in microchannels », **605**, p. 204-213, 2022.

[144] K. Kinoshita, E. Parra et D. Needham, « New sensitive micro-measurements of dynamic surface tension and diffusion coefficients : Validated and tested for the adsorption of 1-Octanol at a microscopic air-water interface and its dissolution into water », **488**, p. 166-179, 2017.

[145] ——, « Adsorption of ionic surfactants at microscopic air-water interfaces using the micropipette interfacial area-expansion method : Measurement of the diffusion coefficient and renormalization of the mean ionic activity for SDS », *Journal of Colloid and Interface Science*, **504**, p. 765-779, 2017.

[146] A. Mohammad Karim, « Experimental dynamics of Newtonian non-elastic and viscoelastic droplets impacting immiscible liquid surface », *AIP Advances*, **9**, p. 125 141, 2019.

[147] ——, « Experimental dynamics of Newtonian and non-Newtonian droplets impacting liquid surface with different rheology », *Physics of Fluids*, **32**, p. 043 102, 2020.

[148] C. J. M. van Rijn, W. G. N. van Heugten et E. Boeker, « A universal shape function for rising jets », *Langmuir*, **34**, p. 13 837-13 844, 2018.

[149] M. Khademi, W. Wang, W. Reitinger et D. P. J. Barz, « Zeta Potential of Poly(methyl methacrylate) (PMMA) in Contact with Aqueous Electrolyte–Surfactant Solutions », *Langmuir*, **33**, p. 10 473-10 482, 2017.

[150] H. Hakbas, T. Sidim et M. Iscan, « Effect of Polyoxyethylene Chain Length and Electrolyte on the Viscosity of Mixed Micelles », *Turkish Journal of Chemistry*, **27**, p. 357-364, 2003.

[151] P. Walstra et A. L. De Roos, « Proteins at air-water and oil-water interfaces : Static and dynamic aspects », *Food Reviews International*, **9**, p. 503-525, 1993.

[152] S. Damodaran, « Protein Stabilization of Emulsions and Foams », *Journal of Food Science*, **70**, R54-R66, 2005.

[153] B. S. Murray, K. Durga, A. Yusoff et S. D. Stoyanov, « Stabilization of foams and emulsions by mixtures of surface active food-grade particles and proteins », *Food Hydrocolloids*, **25**, p. 627-638, 2011.

[154] A. Sarkar et H. Singh, *Emulsions and Foams Stabilised by Milk Proteins (Advanced Dairy Chemistry)*. 2016.

[155] A. R. Mackie, A. P. Gunning, P. J. Wilde et V. J. Morris, « Orogenic Displacement of Protein from the Air/Water Interface by Competitive Adsorption », *Journal of Colloid and Interface Science*, **210**, p. 157-166, 1999.

[156] A. V. Makievski, G. Loglio, J. Krägel, R. Miller, V. B. Fainerman et A. W. Neumann, « Adsorption of Protein Layers at the Water/Air Interface As Studied by Axisymmetric Drop and Bubble Shape Analysis », *The Journal of Physical Chemistry B*, **103**, p. 9557-9561, 1999.

[157] C. M. Beliciu et C. I. Moraru, « Effect of solvent and temperature on the size distribution of casein micelles measured by dynamic light scattering », *Journal of Dairy Science*, **92**, p. 1829-1839, 2009.

[158] R. D. Waniska et J. E. Kinsella, « Foaming Properties of Proteins : Evaluation of a Column Aeration Apparatus Using Ovalbumin », **44**, p. 1398-1402, 1979.

[159] V. A. Arkhipov et V. F. Trofimov, « Formation of secondary drops during impact interaction of a drop with a liquid surface », *Journal of Applied Mechanics and Technical Physics*, **46**, p. 42-48, 2005.

[160] B. Ray, G. Biswas, A. Sharma et S. W. Welch, « CLSVOF method to study consecutive drop impact on liquid pool », **23**, p. 143-158, 2013.

[161] M. Muradoglu et G. Tryggvason, « A front-tracking method for computation of interfacial flows with soluble surfactants », **227**, p. 2238-2262, 2008.

[162] D. W. Martin et F. Blanchette, « Simulations of surfactant effects on the dynamics of coalescing drops and bubbles », **27**, p. 012 103, 2015.

[163] K.-L. Pan, Y.-H. Tseng, J.-C. Chen, K.-L. Huang, C.-H. Wang et M.-C. Lai, « Controlling droplet bouncing and coalescence with surfactant », **799**, p. 603-636, 2016.

[164] F. Rodriguez et R. Mesler, « The penetration of drop-formed vortex rings into pools of liquid », *Journal of Colloid and Interface Science*, **121**, p. 121-129, 1988.

[165] F. Durst, « Penetration length and diameter development of vortex rings generated by impacting water drops », *Experiments in Fluids*, **21**, p. 110-117, 1996.

[166] J. R. Saylor et N. K. Grizzard, « The optimal drop shape for vortices generated by drop impacts : the effect of surfactants on the drop surface », *Experiments in Fluids*, **36**, p. 783-790, 2004.

[167] K. V. Beard et C. Chuang, « A New Model for the Equilibrium Shape of Raindrops », *Journal of the Atmospheric Sciences*, **44**, p. 1509-1524, 1987.

[168] K. V. Beard, H. T. Ochs et R. J. Kubesh, « Natural oscillations of small raindrops », *Nature*, **342**, p. 408-410, 1989.

[169] A. Ponce-Torres et E. J. Vega, « The effects of ambient impurities on the surface tension », **114**, p. 02 098, 2016.

Table des figures

1.1 Photographies montrant le déroulement de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau, issues de l'une des premières études sur le sujet 20
1.2 Succession typique d'événements hydrodynamiques suite à l'impact d'une goutte sur une surface liquide 20
1.3 Diagramme présentant les limites des différents régimes d'emprisonnement de bulle en fonction du diamètre de la goutte et de la vitesse d'impact . . . 21
1.4 Succession typique d'événements hydrodynamiques dans le cas du régime *regular entrainment* 22
1.5 Succession typique d'événements hydrodynamiques dans le cas du régime *Mesler entrainment* 22
1.6 Succession typique d'événements hydrodynamiques dans le cas du régime *irregular entrainment* 23
1.7 Signal acoustique typique d'un impact de goutte d'eau sur de l'eau dans l'air et dans l'eau 26
1.8 Différents mécanismes envisagés pour expliquer la source du signal acoustique émis lors de l'impact d'une goutte 27
1.9 Représentation temps-fréquence d'un enregistrement hydrophonique d'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau 29
1.10 Illustration du phénomène de tension de surface pour un liquide en contact avec l'air 31
1.11 Illustration de l'interface entre un mélange de deux liquides de natures différentes et l'air 32
1.12 Illustration de l'interface entre un liquide avec tensioactif et l'air 33
1.13 Évolution de la tension de surface en fonction de la concentration de tensioactif 35
1.14 Tension de surface dynamique en fonction du temps pour une solution d'eau et de SDS à la CMC 37
1.15 Illustration de l'effet Marangoni 38

2.1 Schéma et photographie du montage expérimental du laboratoire 42
2.2 Schéma et photographie du montage expérimental utilisé pour les mesures en piscine 48
2.3 Signal de bulle (hydrophone) enregistré lors de l'impact d'une goutte en piscine 50
2.4 Principe de la méthode de pression de bulle maximale 52
2.5 Photographies de l'appareil de mesure de profilométrie et de l'interface du logiciel associé 53
2.6 Graphe de l'algorithme de débruitage utilisé sur les mesures acoustiques . . 55
2.7 Signaux acoustiques typiques d'un impact de goutte, enregistré par le microphone et l'hydrophone avant débruitage et après débruitage 56
2.8 Exemple d'un signal mesuré à l'hydrophone lors d'un impact de goutte, présentant 4 événements acoustiques d'amplitude, de fréquence et de durée différentes 57
2.9 Graphe de l'algorithme de détection des événements acoustiques 58
2.10 Signaux acoustiques d'un impact de goutte au microphone et à l'hydrophone, avec le calcul d'énergie locale par fenêtre glissante sur le signal de l'hydrophone 59
2.11 Événement acoustique issu du signal de l'hydrophone montrant une variation d'amplitude de son enveloppe 60
2.12 Superposition de signaux acoustiques de l'hydrophone issus de mesures successives d'impact d'une goutte avec la même configuration 62
2.13 Graphe de l'algorithme de détection des groupes de temps d'apparition des événements acoustiques 63
2.14 Illustration des différentes étapes du programme de clustering 64
2.15 Exemple des temps de démarrage des événements acoustiques issus de plusieurs séries de mesures 65
2.16 Illustration de la méthode de calcul de la constante d'amortissement des oscillations amorties enregistrées sur les signaux d'impacts de gouttes . . . 67
2.17 Interface de visualisation développée pour l'identification des sources des événements acoustiques 68
2.18 Différentes étapes du traitement vidéo 69
2.19 Résultat du tracking de la hauteur de l'interface pour une vidéo d'impact d'une goutte 70

2.20 Comparaison des contours de cavité issus de plusieurs configurations d'impact 71
2.21 Illustration de la méthode d'évaluation du volume et de la surface des objets sur les vidéos 71
2.22 Image d'une bulle créée lors d'un impact de goutte 73

3.1 Signal recorded by the microphone and the hydrophone 80
3.2 Hydrodynamic flow above the water surface for the First Impact event . . 82
3.3 Hydrodynamic flow under the water surface for the First Impact event . . 82
3.4 Hydrodynamic flow above the water surface for the Rayleigh Jet event . . 83
3.5 Hydrodynamic flow under the water surface for the bubble formation event 84
3.6 Detailed images of the detachment of the air bubble (BF) and the evolution of the liquid zip-like flow mechanism 85
3.7 Airborne and underwater acoustic signals during the bubble creation . . . 86
3.8 Images corresponding to the evolution of an air bubble and the water interface after the formation of the bubble 87
3.9 Graphs of the temporal evolution of the pressure measured by the microphone and hydrophone and time–frequency representation of the damped oscillations of the underwater pressure produced by a bubble formed after a drop impact 90
3.10 The measured dominant frequencies as a function of the bubble radius at rest, and the corrected frequencies 91
3.11 Transmission coefficient through the water–air interface as a function of the ratio of the distance between the acoustic source to the interface and the wavelength of the acoustic wave in the water 93
3.12 Characteristic damping time of the oscillating signals measured in water and in the air 95

4.1 Hydrophone and microphone signals for a water drop impacting a water bath with SDS 102
4.2 Image sequences corresponding to the acoustic signals shown in Fig. 4.1 . . 104
4.3 Video footage corresponding to the event bubble pinch off 106
4.4 Acoustic signals from a microphone and hydrophone corresponding to the event bubble pinch off 106
4.5 Video footage corresponding to the event zip-like flow 107

4.6 Acoustic signals from microphone and hydrophone corresponding to the event zip-like flow . . . 108
4.7 Video footage corresponding to the event donut splash . . . 109
4.8 Acoustic signals from microphone and hydrophone corresponding to the event donut splash . . . 109
4.9 Video footage corresponding to the event Mesler-like entrainment . . . 110
4.10 Acoustic signals from microphone and hydrophone corresponding to the event Mesler-like entrainment . . . 111
4.11 Video footage corresponding to the event touched bubble . . . 112
4.12 Acoustic signals from microphone and hydrophone corresponding to the event touched bubble . . . 112
4.13 Descriptors for all the acoustic events detected during drop impact on water bath with various SDS concentrations . . . 114
4.14 Drawing of the experimental set up . . . 118
4.15 Succession of the main hydrodynamic events after a water drop impact on a surface of an aqueous solution of SDS at 240 mg/L . . . 120
4.16 Images of the different bubble entrainment mechanisms, from measures of a water drop impact on a aqueous solution of CTAB at various concentrations 122
4.17 Examples of typical microphone and hydrophone signals from the different bubble entrainment and excitation mechanisms . . . 123
4.18 Examples of power spetra of typical microphone and hydrophone signals from the different bubble entrainment and excitation mechanisms . . . 124
4.19 Typical hydrophonic signal of a DS event, with the hydrodynamic contribution extracted with a low-pass filter and the acoustic contribution extracted with a band-pass filter. . . . 126
4.20 2D representations of the signal descriptors for the signals of the learning data base . . . 132
4.21 Success rate of the classification algorithm for different values tested for the parameter k . . . 135
4.22 Confusion matrix from the test of classification using a KNN method . . . 135
4.23 Microphone and hydrophone signals from a water drop impact on a water tank with 5% ethanol . . . 138

5.1 Surface tension, density viscosity of aqueous solutions of ethanol at different wt% fractions . . . 146

5.2 Schematic drawing of the surface of a liquid about 20 ms after the impact of a drop of water . . . 147
5.3 Different stages of the cavity and crown development after a water drop impact on a water surface . . . 147
5.4 Hydrophonic signal corresponding to the cavity and crown dynamics after a water drop impact on a water surface . . . 148
5.5 Images of the cavity and the crown 20 ms after the initial impact for aqueous mixtures of ethanol at various concentrations . . . 149
5.6 Crown maximum height and rim radius at the maximum expansion of the crown as a function of liquid composition for aqueous solutions of ethanol . 150
5.7 Hydrophonic signals corresponding to the cavity and crown dynamics after a water drop impact on a aqueous solution of ethanol at various concentrations 151
5.8 Overlay of the cavities cross-sectional profiles from measurements with aqueous solutions of ethanol at various concentrations . . . 151
5.9 Time of the overpressure maximum as a function of wt% of ethanol in the liquid bath . . . 152
5.10 Height and rim radius at the maximum expansion of the crown as a function of surface tension, density and viscosity of ethanol-based aqueous solutions 153
5.11 Time of the hydrophonic overpressure maximum as a function of surface tension, density and viscosity of ethanol-based aqueous solutions . . . 154
5.12 H and R_{rim} versus ρ/σ and σ/η for aqueous solutions of ethanol . . . 155
5.13 Crown maximum height as a function of surface tension, for aqueous solutions of ethanol . . . 157
5.14 Timeof the overpressure maximum as a function of the maximum height of the crown for ethanol-based solutions . . . 157
5.15 Time t_{max} of the overpressure maximum as function of ρ/σ in Log/Log scale for ethanol-based aqueous solutions . . . 158
5.16 Overlay of 50 microphone signals of a drop impact on aqueous solutions of SDS at different concentrations . . . 164
5.17 Starting time of the microphone acoustic events as a function of the CMC fraction for SDS, CTAB and Brij35 . . . 165
5.18 Footage of the Rayleigh jet at its maximum height for water with SDS at different concentrations . . . 166
5.19 The maximum height of the Rayleigh jet for SDS, CTAB and Brij35 . . . 167

5.20 Initial speed of the Rayleigh jet for SDS, CTAB and Brij35 167
5.21 Rayleigh jet acceleration during its rise for SDS, CTAB and Brij35 168
5.22 Maximum height of the Rayleigh jet as a function of jet initial speed and acceleration for SDS, CTAB and Brij35 170
5.23 Maximum height of the Rayleigh jet as a function of surface tension for aqueous solutions of ethanol, at various concentrations 172
5.24 Equilibrium and dynamic surface tensions of Brij-35, SDS and CTAB as a function of the fraction of the CMC 173
5.25 Rayleigh jet acceleration as a function of the difference between dynamic and equilibrium surface tensions for SDS, CTAB and Brij35 174
5.26 Temps de démarrage des événements acoustiques pour différentes concentrations de caséine 177
5.27 Hauteur maximale du jet de Rayeigh en fonction de la concentration en caséine 178
5.28 Évolution de la tension de surface en fonction du temps pour une solution d'eau et de micelles de caséine à une concentration de 0.11 g/L 179
5.29 Estimation de la différence entre la tension de surface dynamique et la tension de surface au repos pour plusieurs concentrations de caséine 179
5.30 Tension de surface en fonction de la concentration en caséine micellaire . . 180
5.31 Évolution de la tension de surface en fonction du temps pour une solution de caséine à une concentration de 0.9 g/L et de 1.4 g/L 181
5.32 Image du jet de Rayleigh à sa hauteur maximale pour quatre concentrations de caséine 182
5.33 Diamètre du jet de Rayleigh et de la première gouttelette secondaire en fonction de la concentration en caséine 182
5.34 Temps de détachement de la première gouttelette secondaire en fonction de la concentration en caséine 183
5.35 Vitesse moyenne du jet de Rayleigh en fonction de la concentration en caséine 184
5.36 Images de la cavité et de la couronne formées après l'impact d'une goutte d'eau sur une solution de caséine à différentes concentrations 185
5.37 Temps de démarrage des différents événements acoustiques, dont la classe est identifiée, en fonction de la concentration en caséine 186
5.38 Évolution de la tension de surface en fonction du temps pour une solution d'eau et d'ovalbumine à une concentration de 0.5 g/L 187

5.39 Hauteur maximale du jet de Rayleigh pour différentes concentrations d'ovalbumine . . . 188
5.40 Temps de démarrage du premier événement acoustique en fonction du temps avant et après l'ajout d'ovalbumine . . . 189
5.41 Schéma des deux configurations d'impact étudiées . . . 191
5.42 Diamètre de la goutte en fonction de la concentration en tensioactif pour le SDS et le Brij35, pour deux configurations d'impact différentes . . . 192
5.43 Images de l'impact d'une goutte d'eau et de solution de SDS sur une solution de SDS . . . 194
5.44 Hauteur maximale du jet de Rayleigh en fonction de la concentration en tensioactif pour deux configurations d'impact . . . 195
5.45 Hauteur maximale du jet de Rayleigh normalisée par le diamètre de la goutte à l'impact en fonction de la concentration en tensioactif pour deux configurations d'impact . . . 196
5.46 Diagramme présentant les limites des différents régimes d'emprisonnement de bulle en fonction du diamètre de la goutte et de la vitesse d'impact . . . 197
5.47 Temps d'apparition des événements acoustiques de l'hydrophone pour deux configurations d'impact, pour le SDS et le Brij35 . . . 198

A.1 Superposition de cinq mesures de la profondeur de la cavité en fonction du temps dans le cas de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau . . . 210
A.2 Superposition de cinq signaux hydrophoniques correspondant à la dynamique de la cavité dans le cas de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau . 211
A.3 Image de la goutte 0.6 ms avant l'impact pour quatre mesures d'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau . . . 212
A.4 Images du jet de Rayleigh issues de différentes mesures d'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau . . . 213
A.5 Signaux acoustiques émis par l'emprisonnement d'une bulle lors de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau . . . 214
A.6 Schéma explicatif de l'évolution de la taille de la bulle emprisonnée en fonction de la forme de la cavité lors de l'impact de la gouttelette secondaire 215
A.7 Fréquence des oscillations de pression émises par la vibration de bulle en fonction du temps de démarrage des oscillations . . . 216
A.8 Valeur des différents critères de variabilité en fonction de la concentration d'éthanol, pour les différents événements acoustiques détectés . . . 219

A.9 Jet de Rayleigh pour l'impact d'une goutte d'eau sur une solution aqueuse avec une concentration de 70 % d'éthanol 220
A.10 Valeur des critères de variabilité en fonction de la fraction de la CMC pour les mesures d'impact d'une goutte d'eau sur un bain de SDS, de CTAB et de Brij35 221
A.11 Valeur des critères de variabilité pour les différentes familles d'emprisonnement de bulle 221
A.12 Pourcentage de bulles formées lors de l'impact d'une goutte d'eau sur de l'eau en fonction du temps 223

NOMENCLATURE

$\bar{t}_{x_{BP}^{(h)}}$	Centre de gravité dans le temps du signal hydrophonique filtré passe-bande
$\bar{x}^{(m)}$	Moyenne du signal microphonique
β	Constante d'amortissement de bulle
δ	Constante d'amortissement de la bulle
δ_{rad}	Constante d'amortissement par radiation
δ_{th}	Constante d'amortissement thermique
δ_{vis}	Constante d'amortissement visqueux
η	Viscosité du liquide
Γ	Concentration surfacique de tensioactif
γ	Rapport de chaleur spécifique
Γ_∞	Concentration surfacique maximale du tensioactif
λ	Longueur d'onde
ω_0	Pulsation propre de bulle
ρ	Densité du liquide
σ	Tension de surface
σ_0	Tension de surface du solvant
τ	Temps caractéristique d'amortissement du signal acoustique
τ_{air}	Temps caractéristique d'amortissement dans l'air
τ_{water}	Temps caractéristique d'amortissement dans l'eau
a	Accélération du jet de Rayleigh
c	Concentration de tensioactif dans la solution

c_d Coefficient de correction de la fréquence de Minnaert (distance à l'interface)

c_e Coefficient de correction de la fréquence de Minnaert (anisotropie)

c_s Concentration de tensioactif au niveau de la subsurface

D Coefficient de diffusion des tensioactifs

d Distance bulle/interface

d_{cap} Diamètre du capillaire utilisé pour la formation de goutte

e Ratio grand axe/petit axe pour une bulle

E_{X} Énergie du signal X

f_c Fréquence corrigée par les coefficients de Strasberg

f_M Fréquence de Minnaert

F_s Fréquence d'acquisition

$F_{main}^{(h)}$ Fréquence dominante du signal acoustique

$Fsar^{(h)}$ Ratio d'amplitude des signaux hydrophoniques filtrés

H Hauteur maximale de la couronne

h_{jet} Hauteur du jet de Rayleigh

h_{max} Hauteur maximale du jet de Rayleigh

k Nombre de voisins considérés dans la méthode KNN

k_d Facteur prenant en compte le rétrécissement du col lors de la formation d'une goutte

K_L Constante d'adsorption à l'équilibre de Langmuir

k_σ Constante du liquide dans le modèle de Guggenheim

$MMSR^{(m)}$ Ratio min/max du signal microphonique

N Nombre de points du signal acoustique traité

n Facteur empirique dans le modèle de Guggenheim

P_0 Pression dans le liquide

$P_{\mathrm{X}}(F)$ Spectre de puissance du signal X

P_A Niveau de pression acoustique

P_i Pression à l'intérieur d'une bulle

R Constante des gaz parfaits

R_0 Rayon de bulle

R_1, R_2 Rayons de courbure de l'interface liquide-gaz

R_E Part de l'énergie acoustique dans l'énergie totale du signal hydrophonique

R_{rim} Rayon de la section du torroïde formé au sommet de la couronne

T Température du liquide

t Temps

T_c Température critique du liquide

T_s Période d'acquisition

t_{max} Temps d'apparition du maximum de pression dû à la rétraction de la cavité

Tr Coeficient de transmission entre l'eau et l'air

V_i Vitesse initiale du jet de Rayleigh

V_M Vitesse des écoulements de Marangoni

$x^{(h)}[n]$ Signal hydrophonique

$x^{(m)}[n]$ Signal microphonique

$x^{(h)}_{BP}[n]$ Signal hydrophonique filtré passe-bande

$x^{(h)}_{LP}[n]$ Signal hydrophonique filtré passe-bas

$x^{(m)}_{std}$ Écart-type du signal microphonique

Z_{air} Impédance de l'air

Z_{water} Impédance de l'eau

DOCTORAT BRETAGNE LOIRE / SCIENCES POUR L'INGENIEUR

Le Mans Université

Titre : Acoustique et hydrodynamique d'impact d'une goutte d'eau à la surface de liquides complexes

Mot clés : Impact, Goutte d'eau, Acoustique, Hydrodynamique, Bulle, Tension de surface, Physico-chimie, Traitement du signal

Résumé : Une goutte impactant une surface liquide produit un son particulier. Ce son est dû principalement à la vibration de bulles d'air emprisonnées dans le liquide durant une succession d'événements hydrodynamiques engendrés par l'impact. Bien que l'influence des conditions initiales de l'impact sur le déroulement des événements hydrodynamiques soit bien décrite dans le cas de l'eau pure, le rôle des propriétés du liquide reste encore à définir. Si une modification des propriétés du liquide engendre des changements dans le déroulement des événements hydrodynamiques menant à l'emprisonnement de bulles, le son émis peut être modifié. La mise en évidence de paramètres du signal acoustique variant avec certaines propriétés du liquide permettrait ainsi le développement de méthodes acoustiques de mesure de ces propriétés. Ces travaux ont pour objectif de comprendre l'influence de la tension de surface d'un liquide sur le son produit par l'impact d'une goutte d'eau pure sur la surface de ce liquide. Le signal acoustique est mesuré simultanément dans l'eau et dans l'air, et une caméra rapide permet d'enregistrer des images de l'interface à haute fréquence d'acquisition. La synchronisation des mesures vidéo et acoustiques permet l'identification des événements hydrodynamiques responsables des différentes émissions acoustiques. Divers outils de traitement du signal et vidéo sont développés pour analyser l'hydrodynamique de l'interface et les sons générés dans l'eau et dans l'air. En premier lieu, un régime d'impact particulier, dit "irregular entrainement", est étudié pour l'eau pure. Un mécanisme inédit a été mis en évidence pour la première fois. Il s'apparente à une fermeture de la cavité dans un mouvement de zip liquide conduisant à l'emprisonnement d'une bulle d'aire par une goutte secondaire détachée du jet de Rayleigh. L'étude détaillée du signal acoustique permet de révéler des incohérences entre les mesures et les modèles classiques de la littérature pour décrire le son des bulles formées. Ces incohérences sont explicitées et des modèles plus complets sont proposés. Ce régime d'impact est ensuite étudié dans le cas de solutions aqueuses présentant des tensions de surface variées, soit par dilution d'un autre liquide, soit par ajout de substances tensioactives. Les principaux changements dans le signal acoustique sont présentés et explicités via l'analyse de l'hydrodynamique de l'impact. Dans le cas d'ajout d'un liquide miscible dans l'eau, le développement de la couronne de liquide formée lors des premiers instants de l'impact est modifié. Ces modifications mènent à un retard dans son effondrement, qui se traduit sur le signal acoustique par un retard dans l'apparition d'un pic de pression sur le signal hydrophonique. Le temps d'apparition de ce pic de pression est relié directement à la tension de surface de la solution. Dans le cas de l'ajout de tensioactifs, une comportement universel, indépendant de la nature ou la dynamique du tensioactif est mis en évidence. Il se traduit par un maximum du temps d'apparition des événements acoustiques aux alentours de la concentration micellaire critique (CMC) du tensioactif accompagnée par un élargissement de leur fenêtre temporelle et sa légère réduction au delà de la CMC. Ce comportement est relié à l'apparition d'écoulements de Marangoni et à des effets de viscosité avec

l'augmentation de la concentration en tensioactifs. Il ressort que l'estimation de l'évolution caractéristique de ces temps d'apparition peut permettre d'accéder à la CMC du tensioactif utilisé. Enfin, la variation de tension de surface a permis d'observer l'apparition de différents mécanismes d'emprisonnement de bulle. Il est mis en évidence que chacun de ces mécanismes présente une signature acoustique particulière aussi bien dans l'eau que dans l'air. Ainsi, à l'aide d'un algorithme de classification, une méthode de détection et d'identification des mécanismes d'emprisonnement de bulle à partir de ses seuls signaux acoustiques dans l'eau et dans l'air est développée. Les résultats obtenus permettent d'envisager une méthode d'analyse de l'hydrodynamique d'impact de goutte à l'aide des seuls signaux acoustiques.

Title: Acoustics and hydrodynamics of a water drop impact on the surface of complex liquids

Keywords: Impact, Water drop, Acoustics, Hydrodynamics, Bubble, Surface tension, Physicochemistry, Signal processing

Abstract: A drop impacting a liquid surface produces a particular sound. This sound is mainly due to the vibration of air bubbles entrapped in the liquid during the succession of hydrodynamic events generated by the impact. Although the influence of the initial conditions of the impact on the unfolding of the hydrodynamic events is well descibed in the case of pure water, the role of the liquid properties is still to be defined. If a change in the liquid properties leads to changes in the hydrodynamic events leading to bubble entrapment, the sound emitted may be modified. The identification of parameters of the acoustic signal varying with certain properties of the liquid would allow the development of acoustic methods to measure these properties. The objective of this work is to understand the influence of the surface tension of a liquid on the sound produced by the impact of a drop of pure water on the surface of this liquid. The acoustic signal is measured simultaneously in water and in air, and a fast camera allows to record images of the interface at a high acquisition frequency. The synchronization of the video and acoustic measurements allows the identification of the hydrodynamic events responsible for the different acoustic emissions. Various signal processing and video tools are developed to analyze the hydrodynamics of the interface and the sounds generated in the water and in the air. First, a particular impact regime, called "irregular entrainment", is studied for pure water. A new mechanism has been highlighted for the first time. It is similar to a closure of the cavity in a liquid zip-like flow leading to the entrapement of an air bubble by a secondary droplet detached from the Rayleigh jet. The detailed study of the acoustic signal reveals inconsistencies between the measurements and the classical models in the literature to describe the sound of the formed bubbles. These inconsistencies are explained and more complete models are proposed. This impact regime is then studied in the case of aqueous solutions with varying surface tensions, either by dilution of another liquid or by addition of surface-active substances. The main changes in the acoustic signal are presented and explained through the analysis of the hydrodynamics of the impact. In the case of addition of a miscible liquid in water, the development of the liquid crown formed during the first moments of the impact is modified. These modifications lead to a delay in its collapse, which is translated on the acoustic signal by a delay in the appearance of a pressure peak on the hydrophone signal. The time of appearance of this pressure peak is directly related to the surface ten-

sion of the solution. In the case of the addition of surfactants, a universal behavior, independent of the nature or the dynamics of the surfactant is highlighted. It reads in a maximum of the appearance time of the acoustic events around the critical micellar concentration (CMC) of the surfactant accompanied by a widening of their temporal window and its slight reduction beyond the CMC. This behavior is related to the appearance of Marangoni flows and viscosity effects with the increase of the surfactant concentration. It appears that the estimation of the characteristic evolution of these appearance times can allow access to the CMC of the used surfactant. Finally, the variation of surface tension allowed to observe the appearance of different mechanisms of bubble entrapment. It is highlighted that each of these mechanisms presents a particular acoustic signature in water as well as in air. Thus, with the help of a classification algorithm, a method of detection and identification of bubble entrapment mechanisms from their acoustic signals in water and in air is developed. The results obtained allow us to consider a method for analysing the hydrodynamics of drop impact using acoustic signals alone.