



HAL
open science

Mouillage dynamique : surfaces superhydrophobes et coalescences induites par vibrations

Lorenzo Betti

► **To cite this version:**

Lorenzo Betti. Mouillage dynamique : surfaces superhydrophobes et coalescences induites par vibrations. Mécanique [physics]. Université Côte d'Azur, 2022. Français. NNT : 2022COAZ4108 . tel-04042382

HAL Id: tel-04042382

<https://theses.hal.science/tel-04042382>

Submitted on 23 Mar 2023

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.



$$\rho \left(\frac{\partial v}{\partial t} + v \cdot \nabla v \right) = -\nabla p + \nabla \cdot T + f$$

$$e^{i\pi} + 1 = 0$$

THÈSE DE DOCTORAT

Mouillage dynamique : surfaces superhydrophobes et
coalescences induites par vibrations

Lorenzo Betti

Institut de Physique de Nice (INPHYNI)

Présentée en vue de l'obtention
du grade de docteur en Physique
d'Université Côte d'Azur

Dirigée par : Xavier Noblin

Co-dirigée par : Céline Cohen

Soutenue le : 14 Décembre 2022

Devant le jury, composé de :

Anne-Laure Biance,
Directrice de recherche CNRS,
Université Claude Bernard Lyon 1

Philippe Brunet,
Directeur de recherche CNRS,
Université Paris Diderot (Paris 7)

Elise Lorenceau,
Directrice de recherche CNRS,
Université Grenoble-Alpes

François Gallaire,
Associate Professor,
Ecole Polytechnique Fédérale de
Lausanne

Mouillage dynamique : surfaces superhydrophobes et coalescences induites par vibrations

Jury :

Présidente du jury

Elise Lorenceau,
Directrice de recherche CNRS, Université Grenoble-Alpes

Rapporteurs

Anne-Laure Bianco,
Directrice de recherche CNRS, Université Claude Bernard Lyon 1

Philippe Brunet,
Directeur de recherche CNRS, Université Paris Diderot (Paris 7)

Examineur

François Gallaire,
Associate Professor, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne

Directeur de thèse

Xavier Noblin,
Chargé de recherche CNRS, Université Côte d'Azur

Co-Directrice de thèse

Céline Cohen,
Maîtresse de conférences, Université Côte d'Azur

Résumé :

Les phénomènes de mouillage sont au cœur de la vie quotidienne et de nombreuses applications industrielles : systèmes micro fluidiques, revêtement de surfaces, textile. Durant cette thèse, nous avons étudié différents phénomènes mettant en jeu la dynamique de la ligne de contact.

Dans une première partie, nous avons réalisé une nouvelle expérience d'impact mécanique sur une plaque couverte d'une figure de souffle. Avec de l'imagerie rapide, nous avons montré que l'hystérésis de l'angle de contact induit un effet de seuil sur l'accélération nécessaire pour générer des oscillations du rayon des gouttes et provoquer leur coalescence.

Dans une seconde partie, nous avons étudié en détail la dynamique de coalescence entre deux gouttes posées vibrées. Nous avons mis en évidence que la vibration des gouttes peut engendrer leur coalescence ou de manière plus surprenante leur non coalescence suivant l'amplitude de vibration et la nature de la surface.

Enfin, nous avons étudié la dynamique de l'angle de contact sur des surfaces micro-texturées en utilisant de manière originale la méthode du pont capillaire. Nous présentons pour la première fois des mesures pour de l'eau montrant une dépendance très faible de l'angle dynamique avec la vitesse en contraste fort avec nos mesures sur surfaces lisses. On montre l'intérêt de cette méthode pour l'étude de grande surface sans effets de bord.

Mots clés : Mouillage, Vibrations, Figure de souffle, Ligne de contact, Surface texturée, Coalescence.

Abstract :

Wetting phenomena are at the heart of everyday life and of many industrial applications : microfluidic systems, surface coating, textile. During this thesis, we have studied different phenomena involving the dynamics of the contact line.

In a first part, we performed a new experiment of mechanical impact on a plate covered with a breath figure. With fast imaging, we have shown that the contact angle hysteresis induces a threshold effect on the acceleration necessary to generate oscillations of the droplets radii and cause their coalescence.

In a second part, we have studied in detail the dynamics of coalescence between two vibrated drops. We show how drops vibrations can trigger their coalescence or more surprisingly their non-coalescence depending on the amplitude of vibration and the nature of the surface.

Finally, we have studied the dynamics of the contact angle on microtextured surfaces using the capillary bridge method. We present for the first time measurements for water showing a very weak dependence of the dynamic angle with the velocity in strong contrast with our measurements on smooth surfaces. We show the interest of this method for the study of large surfaces without edge effects.

Keywords : Wetting, Vibrations, Breath figure, Contact line, Textured surfaces, Coalescence.

Remerciements

Premièrement, je tiens bien évidemment à vous remercier du fond du cœur mes très chers directeurs de thèse, Xavier et Céline. Durant ces années à travailler à vos côtés, j'ai pu apprendre énormément de choses grâce à votre savoir, votre expérience et votre créativité. Humainement parlant y a rien à dire, vous avez toujours su vous rendre disponible et à l'écoute avec une bonne humeur sans faille qui rassure et donne la force d'avancer. Vous allez me manquer ne changer rien, vous êtes les meilleurs !

Je remercie bien évidemment les membres de mon jury de thèse en commençant par mes deux rapporteurs, Anne-Laure Biance et Philippe Brunet, pour le temps consacré à l'évaluation de mon travail ainsi que les retours positifs et constructifs ce manuscrit. Je remercie également Elise Lorenceau d'avoir accepté d'être présidente de mon jury, et enfin François Gallaire pour sa présence en temps examinateur.

A présent, je tiens à remercier spécialement les personnes qui m'ont accompagné au quotidien pendant ces trois années de thèse. Je parle bien entendu de tous mes amis, qu'ils soient doctorants ou post-doctorants, qui ont fait que ces années ont été trois belles années pleines de rigolades, de bon moments, de débat (plus ou moins scientifiques) et de découverte.

Commençons tout d'abord par la bande du "Canal du midi", composée de Français, d'un Portugais, d'une Belge et d'un Italien (non, ce n'est pas le début d'une blague). Parmi ces personnes, on trouve d'abord, Guillaume qui a toujours le mot juste et une personnalité remarquable, puis Jordy l'ambassadeur portugais du 6ème a l'humour fin qui met l'ambiance partout où il se trouve.

Christophe, une magnifique rencontre lors de mon premier stage de licence, devenu rapidement un ami et l'investigateur des pauses biscuits qui ont vite été indispensables dans nos journées de thésard (elles m'avaient manqué la dernière année si tu savais).

Michel, dit : "le bel homme italien", grand amateur de chèvres, de chapeaux de paille et surtout de bonne nourriture. Tu es quelqu'un de génial, toujours souriant tout en étant imperturbable dans ton travail sauf peut-être quand Jordy rode dans les parages.

Thibaut, toujours la banane et le verre à la main, capable de gérer une troupe d'aventuriers perturbé dans nos parties de D & D. Tu aurais dû arriver dans le groupe bien plus tôt, car il manquait la présence du véritable maître Pokémon que tu es.

Marjorie, pour ta douceur, ta gentillesse et ces cascades que toi seul maîtrises ! Merci aussi à nos chers post-docs ! Amandine, notre Belge grande amatrice de Limoncello et Antoine,

le rider fou, arrivé très récemment, mais qui s'est joint au groupe sans aucune difficulté! Duncan, petit ange parti trop vite (il est toujours vivant), ta fougue et ton humour me manque, mais heureusement que je peux toujours en profiter pendant nos sessions de "ballon voiture" le week-end à pleurer de rire sous l'œil aguerrie de Mathis l'homme "très calienté".

Je tiens aussi à remercier tous les autres doctorants et permanents de la team "Quantique", je ne vous oublie pas! Avec une mention spéciale pour mes amis et collègues de bureau : Alek, Yohan, Romain, Tess et Mohammed qui sont des personnes en or avec qui je partage un grand nombre de passion commune! L'ambiance de ce bureau va beaucoup me manquer!

Merci, à tous les stagiaires qui malgré leur passage plutôt bref dans cette aventure, ont apporté quelque chose : Julien, Arthur, Marie, Lisa, Emma et Léa. Un salut particulier à François-Xavier qui au moment où j'écris ces lignes commence sa thèse dans l'équipe.

Merci à toute l'équipe MIMIC, que je considère plutôt comme une grande famille! Elles vont me manquer ces réunions en dégustant de délicieux petits gâteaux et c'est pique-nique dans le parc! Merci à toi Yaroslava pour ta gentillesse, et toute l'aide que tu m'as apporté en salle blanche!

Merci à tous les permanents du laboratoire, dont la majorité a été mes enseignants pendant mon parcours universitaire, sans qui je n'en serai pas là aujourd'hui!

Merci au service info, Bernard Gay-Para et Jérôme Mauro, pour leur disponibilité et leur personnalité toujours au top.

Merci à tous les autres membres de l'Institut de Physique de Nice que j'ai croisé pendant ces 3 ans, ainsi qu'à son directeur Guillaume Huyet.

Merci à toi Clémence, ma petite loutre d'amour, de m'avoir accompagné depuis le début, malgré toutes les difficultés qu'on a rencontré! Merci pour ton amour et ton soutien plus que nécessaire!

Pour conclure, je souhaite remercier ma famille, qui m'a soutenue au maximum, à leur niveau, depuis mon enfance (mal-grès mon caractère spécial) pour que je puisse réaliser mon rêve et mon objectif. Merci pour vos efforts, votre patience et vos encouragements. Sans tout cela, je n'aurai jamais réussi. Merci.

Table des matières

Introduction	1
1 La physique des interfaces	5
1.1 Capillarité et Mouillage.	5
1.1.1 Tension de surface et force capillaire.	5
1.1.2 Théorie du mouillage statique.	7
1.1.3 Mouillage statique sur surface superhydrophobe.	11
1.2 Mouillage dynamique.	14
1.2.1 Loi Angle-Vitesse.	14
1.2.2 Modèle Hydrodynamique.	15
1.2.3 Modèle moléculaire.	16
1.2.4 Mesures expérimentales.	17
1.3 Mouillage et vibration.	19
1.3.1 Ligne de contact fixe.	20
1.3.2 Ligne de contact mobile.	21
1.4 Coalescence et rebond de deux gouttes.	23
1.4.1 Régime quasi-statique.	23
1.4.2 Régime dynamique.	25
1.5 Figure de souffle.	28
1.5.1 Nucléation des gouttes.	29
1.5.2 Évolution des gouttes nucléées.	29
1.5.3 Contrôle d'une figure de souffle.	32
2 Impact sur une surface embuée	33
2.1 Dispositif expérimental.	33
2.1.1 Matériaux et caractérisation du support.	34
2.1.2 Protocole expérimental.	35
2.1.3 Caractérisation des mouvements du substrat.	36
2.1.4 Protocole de traitement d'image.	39
2.1.5 Caractérisation d'une figure de souffle.	40
2.1.6 Expérience typique.	42
2.2 Résultats.	45
2.2.1 Évolution naturelle de la figure de souffle avant impact.	45
2.2.2 Effet de l'accélération et du rayon moyen R_m sur le % DNR	45
2.2.3 Interprétation : Courbe maîtresse avec nombre de Bond effectif.	47
2.2.4 Patterns de coalescence.	49
2.2.5 Analyse en terme morphologiques.	50

2.2.6	Influence de la chimie de surface.	51
2.2.7	Discussion du seuil en rayon de gouttes.	53
2.3	Simulation numérique.	54
2.3.1	Méthode.	54
2.3.2	Résultats.	56
2.4	Conclusions et Perspectives.	58
3	Vibration et Coalescence	59
3.1	Dispositif expérimental.	59
3.1.1	Surfaces étudiées.	59
3.1.2	Génération des vibrations.	60
3.1.3	Protocole expérimental.	62
3.2	Résultats : domaines de coalescence et non-coalescence.	68
3.2.1	Polycarbonate.	68
3.2.2	PDMS.	70
3.2.3	Téflon.	72
3.2.4	Interprétation.	75
3.3	Résultats : dynamique de la coalescence.	79
3.3.1	Croissance du rayon du cou au cours du temps.	80
3.3.2	Rayon maximal du cou.	81
3.3.3	Interprétations.	82
3.4	Conclusions et Perspectives.	84
4	Pont capillaire : Angles de contact dynamique	85
4.1	Fabrication des surfaces courbes.	85
4.1.1	Surface lisse.	85
4.1.2	Surface micro-texturée.	86
4.2	Méthode du pont capillaire.	88
4.2.1	Dispositif expérimental.	89
4.2.2	Protocole expérimental.	90
4.2.3	Analyse d'images.	91
4.2.4	Mesure de l'angle de contact.	93
4.2.5	Mesure de la vitesse de la ligne de contact.	97
4.2.6	Incertitude expérimentale et sensibilité aux paramètres.	99
4.3	Dynamique de l'angle de contact.	103
4.3.1	Surfaces lisses.	103
4.3.2	Surfaces micro-texturées.	104
4.4	Discussion.	105
4.5	Conclusions et Perspectives.	109
	Conclusion générale	111
	Bibliographie	115
	Annexe A Influence de l'angle de contact sur le rayon d'étalement d'une goutte lors d'un impact.	123

TABLE DES MATIÈRES

Annexe B Betti <i>et al</i> , accepté à Phys. Rev. Fluids. (2022).	125
Annexe C Influence du profils du substrat sur l'angle calculé	143
Annexe D Influence des paramètres du modèle moléculaire	145

Introduction

En observant des gouttes d'eau sur différents types de substrats, les scientifiques ont remarqué que la goutte adopte différents comportements suivant la surface avec laquelle elle est mise en contact. La goutte s'étale bien sur une surface en verre propre tandis qu'elle forme une jolie sphère sur une feuille de lotus. Ils ont aussi observé qu'entre deux surfaces solides, une goutte forme un pont liquide (Figure 1.c) et que dans des capillaires de petits diamètres, l'eau monte dans le capillaire vainquant ainsi son propre poids qui tendrait plutôt à la faire couler à cause de la gravité. Ces phénomènes ont conduit à la fin du dix-neuvième siècle, à l'émergence d'un nouveau domaine scientifique : "la capillarité et le mouillage" c'est-à-dire l'étude des interfaces mobiles. Le mouillage décrit la capacité d'un liquide à s'étaler sur une surface solide. Si cet étalement est fait à très faible vitesse, on parle de mouillage statique. Pour décrire cet étalement, on utilise l'angle de contact que forme la goutte avec la surface solide. Plus il est petit et plus la goutte s'étale. Les études ont montré que les perles d'eau observées sur les feuilles de lotus sont dues à une rugosité micrométrique et nanométrique associées à la nature hydrophobe de la feuille (Figure 1.a). On appelle ce comportement la superhydrophobie. Dans les années 2000, avec le développement des techniques de microfabrication, les premières surfaces superhydrophobes ont été fabriquées dans les laboratoires. La Figure 1.b en présente un exemple. Il s'agit d'une surface couverte de micropiliers obtenus par photolithographie [1]. La compréhension du mouillage de ces surfaces a alors connu un essor considérable [1–6]. La faible adhésion de l'eau sur ces dernières leur confèrent des propriétés à la fois fascinantes d'un point de vue fondamental mais aussi très intéressantes du point de vue des applications. Sur ces surfaces, les gouttes roulent facilement et rebondissent lors d'impacts ; la friction liquide est également très réduite. Elles sont ainsi anti-salissures, anti-bactériennes, anti-buée ou encore aérodynamiquement intéressantes. La compréhension de ces phénomènes est d'un intérêt majeur. Du point de vue de la physique fondamentale, c'est un domaine riche qui mêle à la fois des problèmes thermodynamiques, hydrodynamiques, mécaniques et la science des matériaux et des surfaces. Du point de vue industriel, les propriétés de mouillage sont importantes pour l'industrie aéronautique, les cosmétiques et les textiles avec le développement respectivement de revêtements anti-glace pour les ailes des avions, de vêtements imperméables ou bien de surfaces déperlantes.

Le mouillage statique est aujourd'hui bien décrit dans la littérature en particulier pour les surfaces lisses. Quelques questions sont encore en suspens concernant l'effet sur l'angle de contact, des déformations locales de la goutte au niveau de la ligne de contact

du fait des rugosités. Cependant, le mouillage statique ne représente qu'une infime partie des problématiques de mouillage. En effet, la plupart des applications impliquent le mouvement des gouttes sur les surfaces (glissement d'une goutte le long d'une paroi ou lors du dépôt d'un revêtement liquide sur une surface). Le mouillage est alors dit dynamique. L'angle de contact dépend de la vitesse de la ligne de contact et de la nature du mouvement, forcé ou libre, permanent ou transitoire. L'origine de ces dépendances réside dans l'hystérésis de l'angle de contact qui représente le fait que l'angle dépend de la façon dont le liquide se déplace sur le solide et plus précisément du sens de déplacement. En effet, les déformations locales de la ligne au niveau des défauts microscopiques ne sont pas les mêmes lorsque la ligne les traverse dans un sens d'avancée ou de reculée. L'hystérésis représente la capacité du solide à s'opposer au mouvement de la ligne. Elle quantifie ainsi le frottement du liquide.

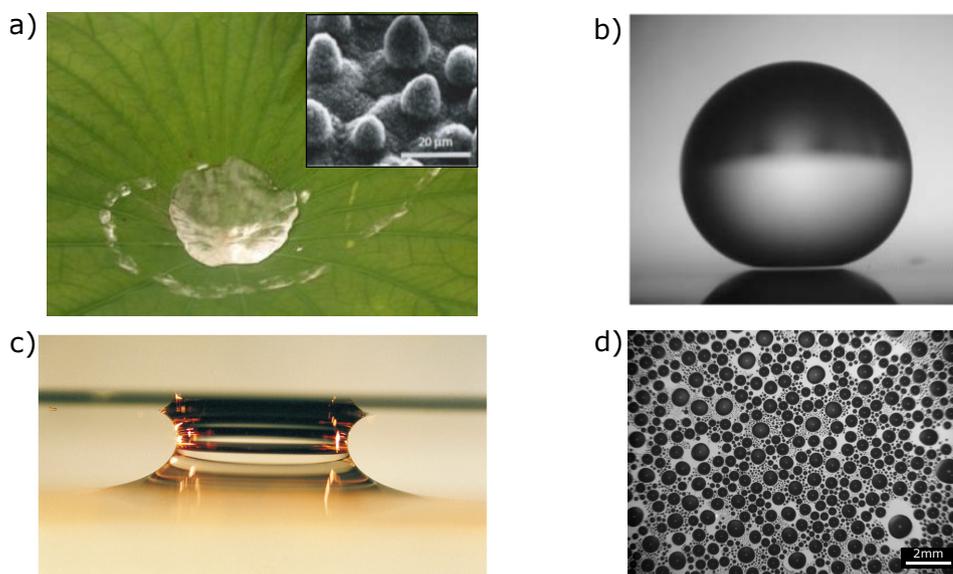


FIGURE 1 – a) Surface d'une feuille de lotus à différentes échelles [7]. b) Une goutte sur une surface superhydrophobe, en maintenant sur le sommet de pilier micrométrique [1]. c) Un pont capillaire formé entre un bain et une surface plane [8]. d) La buée formée par condensation à travers un zoom.

Il existe différentes façons de mettre en mouvement la ligne de contact. Dans un régime permanent, en déplaçant la ligne à vitesse constante ou bien dans un régime transitoire en faisant accélérer une ligne de contact par le biais de vibrations ou d'impacts. L'hystérésis joue un rôle particulièrement important pour les régimes transitoires où les lignes de contact sont amenées à changer rapidement de sens de déplacement. La dépendance de l'angle de contact avec la vitesse a été largement étudiée dans la littérature en particulier pour les surfaces lisses. Les résultats de la littérature ont conduit à deux approches pour expliquer les lois angle de contact-vitesse de la ligne. Une modélisation hydrodynamique où le frottement visqueux s'oppose aux forces capillaires motrices qui conduit à une dépendance de l'angle avec la vitesse à la puissance $1/3$. Le second modèle, fondé sur une approche moléculaire, considère que le mouvement de la ligne se fait par saut de molécules d'une phase à l'autre. Le rôle précis de l'hystérésis sur ces dépendances est encore mal compris. Le cas des surfaces superhydrophobes a été beaucoup moins étudié et il n'existe

aujourd'hui pas de compréhension universelle pour décrire la dépendance des angles de contact avec la vitesse pour ces surfaces qui ne suivent pas les modèles utilisés pour les surfaces lisses. Le glissement sur ce type de surface joue probablement un rôle essentiel. La seconde partie de ce travail de thèse s'intéresse directement à cette question. Nous avons utilisé la technique du pont capillaire pour étudier le mouillage dynamique de surfaces superhydrophobes complexes.

Dans la première partie de la thèse, nous nous sommes intéressés à des sollicitations de lignes de contact dans un régime plus transitoire via des vibrations induites par un impact mécanique ou forcées par un pot vibrant. Nous avons plus précisément étudié l'effet de ces vibrations sur la coalescence de gouttes et plus particulièrement comment on peut les utiliser pour accélérer la croissance naturelle de la buée en générant des événements de coalescence. La buée représente une assemblée de gouttes micrométriques qui mouillent une surface (Figure 1.d). Elles se forment par condensation de vapeur chaude sur une surface froide. Aujourd'hui, la collecte des gouttes de buée représente une source alternative d'eau potable essentielle pour certaines régions au climat aride [9]. Les auteurs ont montré que la coalescence entre les gouttes est un élément important dans l'évolution de la buée [10]. Quelques études ont sollicité les gouttes de différentes façons pour accélérer la coalescence entre les gouttes [11, 12]. Cependant les méthodes utilisées sont techniquement compliquées à mettre en œuvre et demandent des sources d'énergie continues pour alimenter la sollicitation.

Ce manuscrit se décompose en quatre parties. Le chapitre 1 introduit les différents outils théoriques nécessaires à la compression des phénomènes étudiés tels que : la théorie du mouillage statique et dynamique, la vibration d'une goutte, la coalescence et enfin la croissance des figures de souffle. Le chapitre 2 présente le comportement d'une figure de souffle vibrée suite à l'un impact d'un projectile sur cette dernière. Le chapitre 3 se concentre sur la dynamique de coalescence entre deux gouttes soumises à des vibrations contrôlées. Enfin, le chapitre 4 se focalise sur l'étude de la dynamique de l'angle de contact lors du mouvement d'un pont capillaire. Dans les chapitres 2, 3 et 4, on présente le dispositif, le protocole expérimental, puis les résultats et les discussions associées aux différents phénomènes. Pour finir, le manuscrit se clôture avec une conclusion générale et propose des pistes de réflexion pour chacune des parties. Plusieurs annexes clotent ce manuscrit.

La physique des interfaces

La capillarité est l'étude des interfaces entre deux corps qu'ils soient liquide/liquide ou bien liquide/gaz. L'interface représente la région qui sépare les deux phases, Liquide/Gaz dans le cas d'une goutte dans l'air par exemple. L'interface entre ces corps est donc mobile et va s'adapter afin de minimiser son énergie. La capillarité joue un rôle essentiel dans de nombreux domaines scientifiques (physique des surfaces, biologie) et industriels (cosmétique, textile, industrie du verre). On la retrouve également dans notre quotidien lorsqu'on fait des bulles de savon, que l'on regarde le petit pont liquide formé en piégeant une goutte entre nos doigts ou bien lorsque des gouttelettes de buée se forment sur une vitre. Lorsqu'on ajoute un corps solide au problème, on peut donc voir deux nouveaux types d'interfaces : Liquide/Solide et Liquide/Gaz. On parle alors de mouillage, l'ensemble de ces phénomènes mêlant tous les types d'interfaces (la physique des interfaces) se regroupe en capillarité et mouillage.

1.1 Capillarité et Mouillage.

1.1.1 Tension de surface et force capillaire.

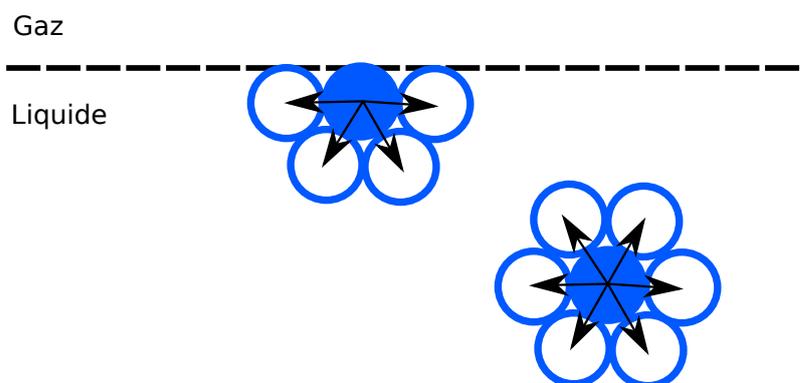


FIGURE 1.1 – Tension de surface.

Au cœur des phénomènes de capillarité, se trouve la tension de surface [13]. Elle s'exprime dans la vie de tous les jours de façon étonnante en permettant à des liquides

d'adopter des formes géométriques stables tels que : la goutte d'eau dans l'huile, le film de savon ainsi que la bulle qu'il permet de créer ou bien les ondes qui se propagent sur l'eau.

Prenons l'exemple d'une goutte d'eau dans l'air (Figure 1.1). À l'échelle moléculaire, la tension superficielle notée γ trouve son origine dans les interactions entre les molécules qui composent le liquide et celles du milieu extérieur au niveau de l'interface. Laplace et Young l'ont interprété grâce aux forces attractives présentes au sein du liquide entre une molécule et toutes ses voisines qui régissent la cohésion du liquide [13]. Dans le liquide, la molécule est entourée de voisines identiques et les interactions entre elles se compensent. En revanche, à l'interface, la molécule se retrouve en contact avec le milieu extérieur et perd la moitié de ses interactions. La tension de surface représente directement ce défaut d'énergie par unité de surface. Afin de minimiser cette énergie, le liquide minimise l'aire de l'interface. Si a est la dimension de la molécule et U l'énergie de cohésion alors la tension de surface a pour valeur caractéristique :

$$\gamma \simeq \frac{U}{2a^2} \quad (1.1)$$

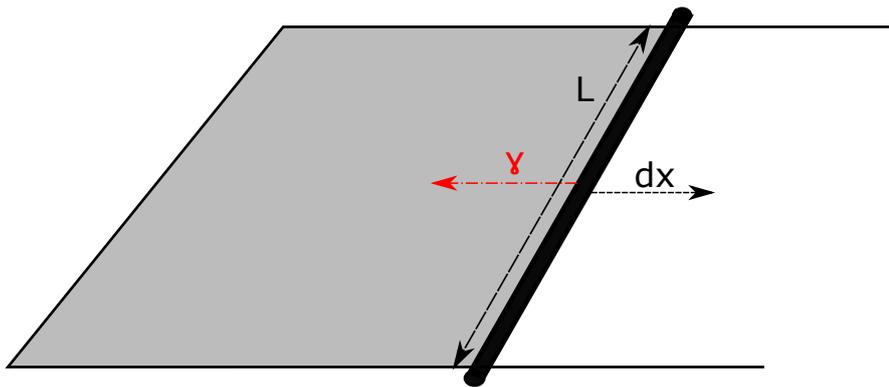


FIGURE 1.2 – Force capillaire.

Si on considère une interface de surface S , il faut fournir une énergie mécanique pour l'augmenter (Figure 1.2). Le travail des forces dW à fournir pour augmenter la surface S d'un élément dS est proportionnel à la quantité de molécules qu'il faut apporter sur l'élément dS . On a ainsi la définition suivante pour γ :

$$dW = \gamma dS \quad (1.2)$$

La tension de surface a aussi une interprétation mécanique. La force capillaire découle directement de la tension de surface. Elle peut être mise en évidence par l'exemple suivant. Si on considère un cadre rectangulaire et une tige mobile reliés par un film d'eau savonneuse, il faut appliquer le travail $dW = F_c dx$ pour que la tige se déplace. On a donc :

$$dW = \gamma dS = \gamma 2L dx = F_c dx \quad (1.3)$$

On obtient ainsi la force capillaire $F_c = 2L\gamma$. Ainsi γ peut être comprise comme une force par unité de longueur de ligne.

1.1.2 Théorie du mouillage statique.

Paramètre d'étalement.

Le mouillage désigne l'étude du comportement d'un liquide déposé sur un substrat (liquide ou solide) [13]. Il s'agit donc d'un système à trois phases, une phase liquide en contact avec deux autres phases qui peuvent être solides, liquides ou gazeuses. Dans ce manuscrit, on ne traite que le cas d'un liquide en contact avec un solide dans l'air. Le mouillage est à l'origine d'un grand nombre d'applications dans des secteurs industriels comme dans les secteurs automobile (revêtements), ou chimique et cosmétique (émulsion), de l'alimentaire et du bâtiment. Il joue aussi un rôle important dans des mécanismes biologiques tels que la montée de la sève dans les arbres ou la capacité de certains insectes à se déplacer sur l'eau. Une goutte déposée sur une surface peut adopter deux situations de mouillage qui sont représentées sur la Figure 1.3.

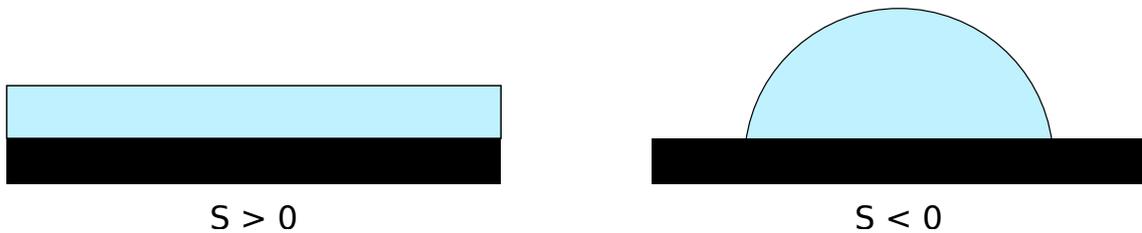


FIGURE 1.3 – Les deux situations de mouillage en fonction du paramètre d'étalements.

- Le mouillage total, lorsque le liquide épouse totalement le solide sous la forme d'un film.
- Le mouillage partiel dans le cas opposé, quand une goutte possède une forme de calotte sphérique avec une surface de contact restreinte avec le solide.

Pour caractériser ces situations, on introduit le paramètre d'étalement S qui mesure la différence d'énergie par unité de surface si le substrat est sec et celle dans le cas où il est mouillé [13]. Si γ_{SG} , γ_{SL} et γ sont les tensions superficielles respectives entre Solide/Gaz, Solide/Liquide et Liquide/Gaz, alors le paramètre d'étalement s'écrit :

$$S = \gamma_{SG} - (\gamma_{SL} + \gamma) \quad (1.4)$$

Le liquide s'étale si S est positif, car l'énergie la plus basse du système est dans ce cas, celle du solide recouvert d'un film liquide. Si S est négatif, le liquide ne s'étale pas et adopte une forme d'équilibre de calotte sphérique si on ne considère pas les effets de la gravité comme on le décrit un peu plus loin (vrai pour les gouttes de rayon inférieur au millimètre).

Angle de contact d'équilibre.

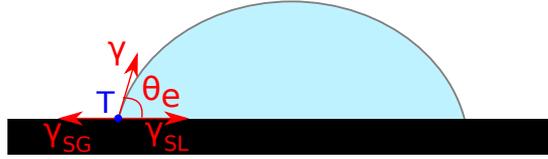


FIGURE 1.4 – Angle de contact d'équilibre et ligne de contact.

La surface de contact adoptée par le liquide est d'autant plus faible que l'affinité entre les deux phases est faible. Ainsi, la forme de la goutte peut aller d'une calotte sphérique très tronquée à la forme d'une sphère. Pour différencier ces différents états, on utilise l'angle de contact qui représente l'angle formé par la surface solide et l'interface Liquide/Gaz au niveau du point triple (celui où les trois phases sont en contact) comme illustré sur la Figure 1.4. Sur une surface solide parfaitement lisse et homogène chimiquement, il est possible de calculer l'angle de contact de deux façons. La première consiste à projeter les forces capillaires qui agissent sur la ligne de contact sur le plan solide. En équilibrant ces forces, on obtient l'équation de Young-Dupré (1805) [14] :

$$\cos(\theta_e) = \frac{\gamma_{SG} - \gamma_{SL}}{\gamma} \quad (1.5)$$

L'angle θ_e représente l'angle de contact d'équilibre. La seconde méthode consiste à calculer le travail de la force quand on réalise un déplacement élémentaire de la ligne de contact. A l'équilibre, ce travail est nul :

$$\delta W = (\gamma_{SG} - \gamma_{SL})dx - \gamma \cos(\theta_e)dx = 0$$

et on retrouve la relation (1.5). La valeur de cet angle de contact permet de caractériser les propriétés de mouillage statiques d'une surface :

- Si $0 < \theta_e < 90^\circ$, la surface est dite hydrophile.
- Si $90^\circ < \theta_e < 140^\circ$, la surface est dite hydrophobe.
- Si $140^\circ < \theta_e$, la surface est dite superhydrophobe.

Longueur capillaire.

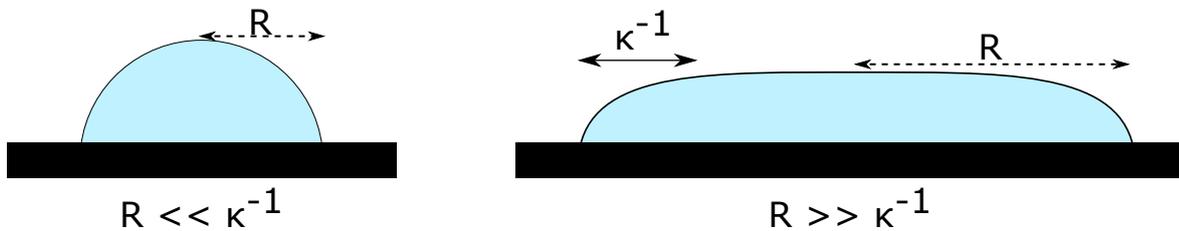


FIGURE 1.5 – Longueur capillaire.

Lorsque les gouttes sont plus grosses, on ne peut plus négliger la gravité pour décrire leur forme [13]. Elles s'aplatissent à cause de la gravité comme on le voit sur la Figure 1.5.

Pour comparer les effets capillaires et les effets de gravité, on introduit la longueur capillaire κ^{-1} qui définit le rapport entre la pression de Laplace et la pression hydrostatique telle que :

$$\kappa^{-1} = \sqrt{\left(\frac{\gamma}{\rho g}\right)} \quad (1.6)$$

Si le rayon d'une goutte R est inférieur à κ^{-1} , les forces capillaires sont prédominantes et la goutte est une calotte sphérique. En revanche, quand $R \gg \kappa^{-1}$, la pesanteur prédomine et la goutte s'aplatit. Elle se raccorde au solide toujours avec un l'angle θ_e .

Angles de contact et hystérèse de l'angle de contact.

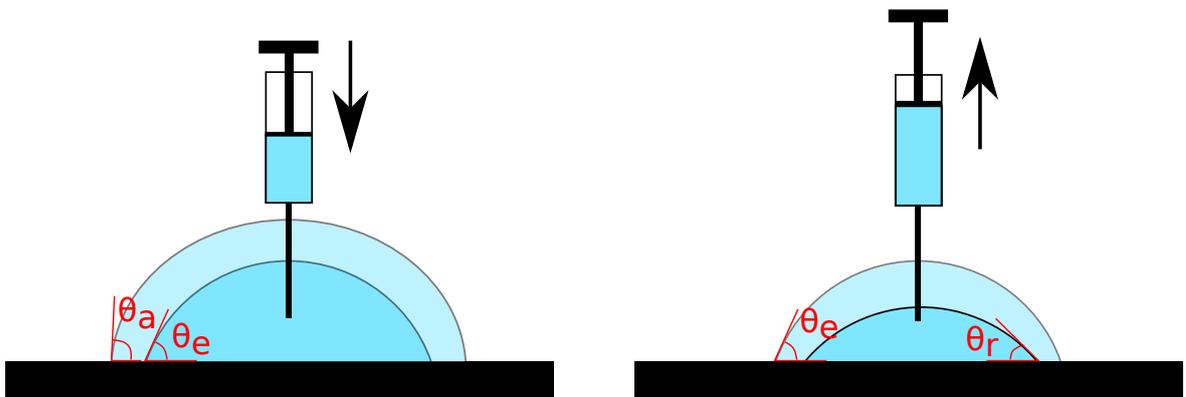


FIGURE 1.6 – Schémas de la mesure des angles d'avancée et de reculée avec la méthode de la goutte sessile.

L'angle de contact d'équilibre θ_e défini par la relation (1.5) est un angle théorique pour une surface modèle lisse et homogène chimiquement. Cependant, les surfaces réelles présentent des rugosités physiques et/ou des hétérogénéités chimiques. Ces défauts peuvent piéger la ligne de contact et la déformer localement. A cause de ces défauts, l'angle n'est plus à l'angle d'équilibre, mais il peut prendre toute une gamme d'angles de contact correspondant à des états métastables [13]. Les deux angles limites de cet intervalle sont appelés l'angle d'avancée θ_a et l'angle de reculée θ_r , illustrés sur la Figure 1.6. La différence entre ces angles définit l'hystérésis de l'angle de contact $\Delta\theta = \theta_a - \theta_r$. θ_a et θ_r représentent respectivement les angles qui doivent être atteints pour dépiéger la ligne de contact et lui permettre d'avancer ou de reculer sur la surface.

- Si $\theta > \theta_a$, la ligne avance.
- Si $\theta_r < \theta < \theta_a$ la ligne reste fixe.
- Si $\theta < \theta_r$, la ligne recule.

Pour mesurer θ_a et θ_r , il existe différentes méthodes [15, 16]. La première méthode est la mesure sur plan incliné, où l'on dépose une goutte sur un plan dont on augmente l'inclinaison jusqu'à ce que la goutte glisse. Les angles de contact d'avancée et de reculée sont mesurés simultanément lors de la mise en mouvement juste avant le mouvement de la goutte respectivement à l'avant et à l'arrière de celle-ci. La seconde méthode est appelée méthode de Wilhelmy. Dans ce cas plutôt que de mettre en mouvement le liquide, la

surface est lentement enfoncée ou retirée d'un bain liquide pour mesurer l'angle de contact. La troisième méthode (goutte sessile), consiste à déposer une goutte sur une surface solide. Puis, on remplit (gonfle) ou vide (dégonfle) la goutte à débit constant et on mesure les angles limites pour que la ligne se mette en mouvement (Figure 1.6) [13].

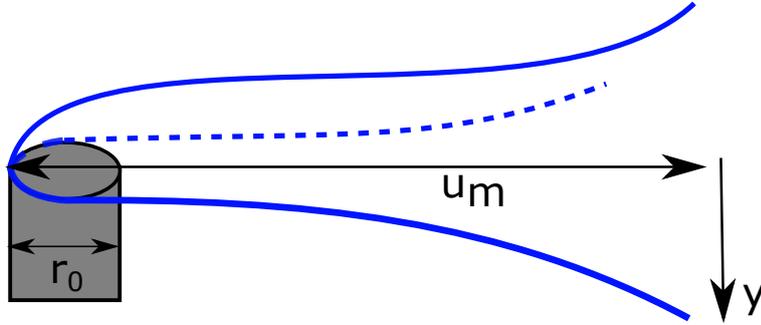


FIGURE 1.7 – Déformation d'une ligne de contact lors du passage d'un défaut.

Pour mettre en mouvement la ligne de contact, il faut donc appliquer une force suffisante pour surmonter l'ancrage de la ligne triple sur les défauts de la surface qui sont responsables de l'hystérésis. Joanny et de Gennes [17], en 1984, ont montré que l'hystérésis de l'angle de contact est liée à la force et à la distribution des défauts sur la surface. Si on suppose une surface recouverte de défauts mouillants capables de retenir la ligne (défauts forts) et suffisamment éloignés pour que l'on puisse les considérer indépendants (dilués), alors la force seuil pour déplacer la ligne est :

$$F = \gamma(\cos(\theta_e) - \cos(\theta_a))$$

Lorsque la ligne se déplace sur une distance dx , elle rencontre $n * dx$ défauts par unité de longueur, avec n le nombre de défauts par unité de surface. Au passage de chaque défaut, la ligne se déforme et une énergie E est dissipée lors du dépiégeage de la ligne :

$$Fdx = ndxE \tag{1.7}$$

L'énergie E est maximale lorsque l'élongation maximale de la ligne u_m est atteinte. L'élongation de la ligne décrite sur le schéma de la Figure 1.7 s'écrit alors :

$$u_m = r_0 \ln\left(\frac{2y_m}{r_0}\right) = \frac{f_m}{\gamma\pi} \ln\left(\frac{2y_m}{r_0}\right) \tag{1.8}$$

avec f_m la force totale appliquée par un défaut et r_0 la taille du défaut.

L'élongation est maximale quand $y_m = L/2$, où L représente la distance moyenne entre deux accrochages de la ligne. Dans ces conditions, la ligne peut être considérée comme un ressort dont l'énergie maximale stockée est :

$$E = \frac{f_m^2}{2\gamma\pi} \ln(L/r_0) \tag{1.9}$$

A partir de cette analogie, on trouve la relation entre l'hystérésis et la densité de défauts telle que :

$$\gamma(\cos(\theta_e) - \cos(\theta_a)) = \frac{n f_m^2}{2\gamma\pi} \ln(L/r_0) \quad (1.10)$$

Ainsi, l'hystérésis est proportionnelle à la densité de défauts et à leur force au carré. L'hystérésis joue donc un rôle primordial dans le mouillage des surfaces rugueuses comme les surfaces superhydrophobes par exemple.

1.1.3 Mouillage statique sur surface superhydrophobe.

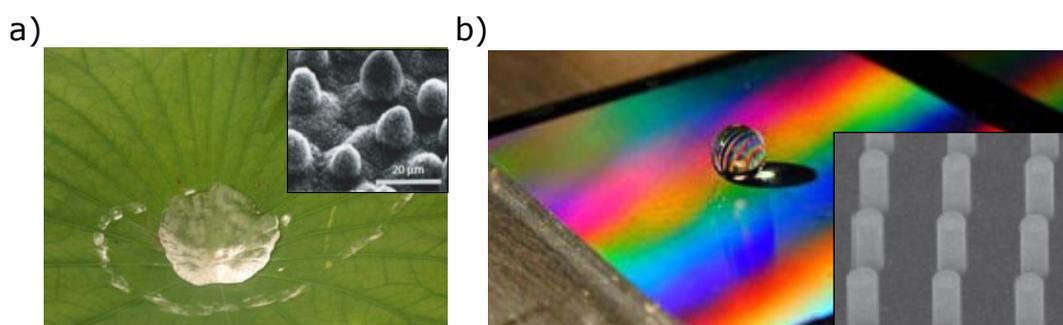


FIGURE 1.8 – a) Une feuille de lotus observée à différentes échelles [7]. b) Une surface superhydrophobe artificielle [1].

Les surfaces superhydrophobes sont des surfaces complexes présentant des rugosités physiques à l'échelle micrométrique et/ou nanométrique qui sont couplées à une nature chimique hydrophobe [17]. Ces surfaces sont présentes dans la nature, comme les feuilles de lotus [7] (Figure 1.8.a)), les pattes de certains insectes [18] ou même la peau de certains lézards [19]. En s'inspirant de ces modèles naturels, des surfaces superhydrophobes artificielles ont été développées en laboratoire dans les années 2000 grâce à des techniques de micro-impression, photolithographie ou de gravure (Figure 1.8.b)). L'étude du mouillage sur ce type de surface a alors connu un essor considérable du fait de leur importance pratique cruciale à de nombreuses applications [4, 20–23]. La description du mouillage de ces surfaces reste encore incomplète pour le régime quasi-statique que nous allons voir ci-dessous. Elle est encore très mal comprise pour le régime dynamique [24, 25] que nous verrons à la partie suivante (1.2).

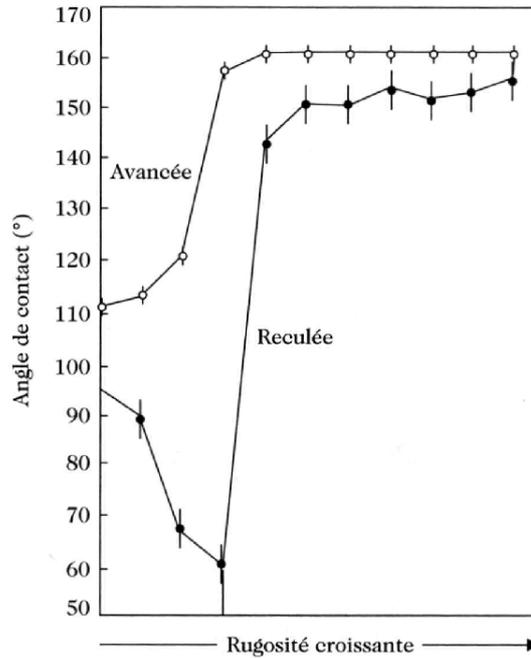


FIGURE 1.9 – Résultats des travaux de Dettre et Johson [26], illustrant les angles d'avancée et de reculée sur un même substrat pour différentes rugosités.

Comme on l'a vu précédemment, les rugosités influent sur l'angle de contact en déformant localement la ligne triple, ce qui est à l'origine de l'hystérésis de l'angle de contact. C'est en 1964 que Dettre *et al* [26] ont étudié la dépendance des angles d'avancée et de reculée en fonction de la rugosité. Ils ont aussi montré l'existence de deux régimes comme on peut l'observer sur la Figure 1.9 qui présente θ_a et θ_r en fonction de l'amplitude de la rugosité.

- A faible rugosité, l'angle de reculée θ_r diminue avec l'augmentation de la rugosité et inversement l'angle d'avancée θ_a augmente avec la rugosité.
- A partir d'une certaine rugosité, les valeurs de θ_a et θ_r augmentent drastiquement et en dépendent ensuite peu.

Les deux régimes suggèrent l'existence de deux états de mouillage pour la goutte. Ces deux états sont représentés sur la Figure 1.10. Le premier état (Figure 1.10.a) qui a été introduit par Wenzel en 1936 correspond à une goutte dite "empalée" [27]. Il suppose qu'une goutte déposée sur une surface rugueuse homogène chimiquement épouse parfaitement les reliefs de la surface. Il introduit alors le paramètre de rugosité r_w pour caractériser la relation entre l'angle de contact apparent θ^* sur la surface rugueuse et l'angle de contact d'équilibre sur le même substrat mais supposé lisse θ_e . La rugosité r_w est définie par le rapport entre l'aire de la surface de contact réelle et l'aire de la surface de contact apparente mouillée. La relation entre les angles de contact est alors :

$$\cos(\theta^*) = r_w \cos(\theta_e) \quad (1.11)$$

r_w est par définition toujours supérieur à 1. Ainsi, d'après l'équation (1.11), la rugosité amplifie l'état de mouillage initial du liquide. Une surface hydrophobe est d'autant plus

hydrophobe qu'elle est rugueuse et au contraire, une surface hydrophile l'est encore plus quand elle est rugueuse. Ce modèle explique bien le comportement observé par Dettre *et al* [26] pour des faibles rugosités.

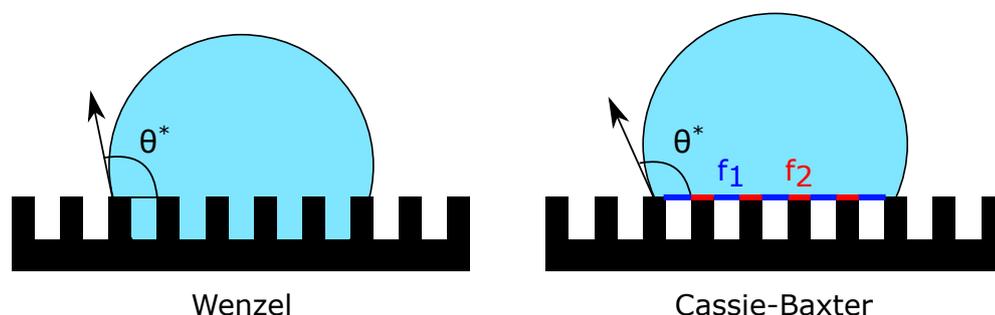


FIGURE 1.10 – a) Etat empalé (Wenzel). b) Etat fakir (Cassie-Baxter).

Le second état représenté sur la Figure 1.10.b), est celui où la goutte n'épouse plus les rugosités. Elle présente une énergie plus basse en reposant sur le sommet des rugosités piégeant de l'air sous la goutte entre les rugosités. Elle repose ainsi sur une surface hétérogène avec une partie de la goutte seulement en contact avec le solide et l'autre avec de l'air. Cet état "fakir" peut être décrit par le même type de raisonnement que pour l'état empalé. Cassie et Baxter ont décrit cet état en supposant une goutte déposée sur une surface chimiquement hétérogène [28]. Ils supposent que la surface est composée d'une alternance de deux phases 1 et 2 de fraction surface f_1 et f_2 ($f_1 + f_2 = 1$). Chaque phase est caractérisée par un angle de contact local θ_1 et θ_2 . Ils définissent l'angle apparent θ^* comme étant la somme des angles de chaque phase pondérés par la fraction de surface associée, tel que :

$$\cos(\theta^*) = f_1 \cos(\theta_1) + f_2 \cos(\theta_2) \quad (1.12)$$

Pour les surfaces rugueuses, les deux phases considérées sont donc le solide et l'air. L'angle de contact avec l'air est $\theta_2 = 180^\circ$ ce qui conduit à la relation $\cos(\theta^*) = f_1 \cos(\theta_1) - f_2$ pour ces surfaces.

Ces modèles ont permis de bien expliquer vers la fin des années 90 et début 2000 les propriétés de mouillage de certaines surfaces idéales qui les suivaient effectivement (ils concernaient que l'angle d'équilibre) [29, 30]. Il est aujourd'hui bien établi que ces modèles ne parviennent pas à décrire universellement le mouillage des surfaces superhydrophobes. En effet, ils sont fondés sur un équilibre global de l'angle de contact, sans prendre en considération la déformation locale de la ligne triple par la texturation. Ainsi, ils ne peuvent pas prendre en compte non plus le sens de déplacement de la ligne, et donc ne prennent pas en compte l'hystérésis de l'angle de mouillage.

Dans le cas des surfaces superhydrophobes, il est possible de faire un parallèle avec une surface comportant des défauts. En effet, une surface superhydrophobe possède une texturation, souvent définie par un motif de rugosités tel que des piliers micrométriques par exemple. Ces piliers peuvent être considérés comme des défauts et la surface superhydrophobe est alors caractérisée par la fraction surfacique occupée par les piliers. Cette fraction surfacique dépend des dimensions d'un pilier et de l'espacement entre eux.

Reyssat *et al* [4] en 2009, ont montré sur ce type de surface, pour une densité faible de piliers, que l'hystérésis augmente avec la densité de piliers en accord avec le modèle de Joanny et de Gennes [17]. En 2012, Dubov *et al* [31] en faisant varier l'espacement des piliers a montré que seul l'angle de recul varie avec la fraction surfacique. Ils ont interprété les résultats avec un modèle d'accrochage de la ligne dans le cas d'un réseau périodique de piliers proches, fondé sur les mêmes hypothèses que Joanny [17]. McHale *et al* [32] en 2005, ont observé et mesuré les oscillations de l'angle de contact lors du mouvement de la ligne de contact sur une surface texturée. En effet, le mouvement de la ligne sur ce type de surface n'est pas continu. Elle se déplace de façon discrète ce qui induit l'oscillation de l'angle de contact de recul [5, 32]. Gauthier *et al* [20] en 2013, ont montré ainsi que le déplacement de la ligne triple dépend du réseau. Dans le cas d'un réseau carré, la ligne se déplace le long d'une rangée de piliers comme une "fermeture éclair" avant de passer à la rangée suivante. En revanche, lorsque le réseau est concentrique, la ligne passe d'une rangée à la suivante d'un seul coup.

Plus récemment Rivetti *et al* [21] en 2015, ont décrit le mouvement de la ligne avec un modèle de "kink". Ils ont montré que la fraction surfacique est le bon paramètre pour comprendre le déplacement de la ligne sur une surface avec un réseau périodique de piliers. Enfin en 2019, Cohen *et al* [22] ont observé une dépendance à ce paramètre pour les angles θ_r , bien décrit par le modèle de Rivetti [21] et Dubov [31] mais également pour θ_a , non observé dans les études précédentes.

1.2 Mouillage dynamique.

1.2.1 Loi Angle-Vitesse.

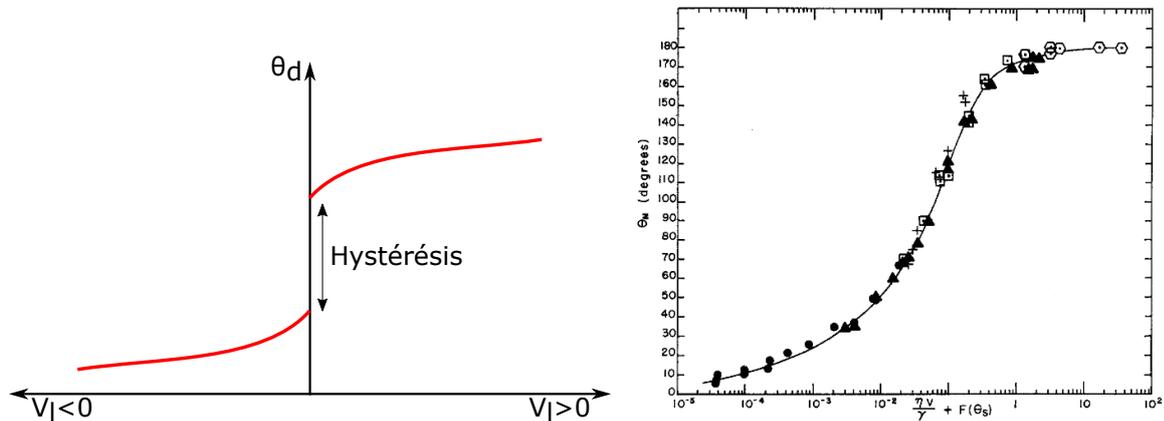


FIGURE 1.11 – Gauche : schématisation de la dynamique de l'angle de contact. Droite : Mesures d'angles de contact dynamique d'avancée tirées de [33].

Lorsque la ligne de contact est en mouvement à une vitesse V_l , le mouillage devient dynamique et l'angle de contact dépend alors de cette vitesse [34]. L'angle de contact dynamique est noté généralement θ_a . Plus la ligne de contact recule rapidement, plus l'angle de recul est petit et inversement plus la ligne avance rapidement et plus l'angle est grand.

La dynamique de l'angle de contact a été largement étudiée dans la littérature [15, 16, 24, 25, 33, 35–40]. En 1975, Hoffman [33], présente les premières mesures d'angle de contact dynamique pour diverses huiles silicones en mouillage total ($\theta_e = 0$) dans un tube en verre (Figure 1.11). Il montre que la relation entre l'angle et la vitesse suit une loi en $V_l \sim \theta_d^3$.

Dans [35], ils montrent que la dynamique de la ligne de contact est un phénomène activé thermiquement, en mesurant l'hystérésis de l'angle de contact d'un ménisque d'hydrogène liquide. Ils montrent que le piégeage de la ligne de contact sur les défauts mésoscopiques du substrat contrôle à la fois l'hystérésis et la dynamique de la ligne de contact à faible vitesse, proche du seuil de dépiégeage.

Le mouvement de la ligne de contact peut être décrit par le déplacement d'un coin liquide (un dièdre) en contact avec une surface formant un angle θ_d , schématisé sur la Figure 1.12. Cette mise en mouvement se fait quand une force suffisamment importante est appliquée à la ligne pour dépasser l'hystérésis. Le mouillage dynamique est l'étude de la relation entre l'angle dynamique θ_d et la vitesse de la ligne de contact V_l . D'un point de vue expérimental, on met en mouvement la ligne à une vitesse donnée et on mesure la valeur de l'angle de contact.

Il existe plusieurs modèles théoriques pour décrire la variation de l'angle de contact avec la vitesse qui se distinguent par les mécanismes de dissipation mis en cause au niveau de la ligne triple. Nous décrivons ici les deux principales approches que l'on trouve dans la littérature [15, 16, 40, 41] :

- Le modèle hydrodynamique, pour lequel l'origine de la dissipation est la viscosité [42, 43].
- Le modèle moléculaire, pour lequel la dissipation provient de mécanismes moléculaires d'adsorption et de désorption de molécules [44].

Différentes études combinent ces deux approches pour expliquer les données expérimentales.

1.2.2 Modèle Hydrodynamique.

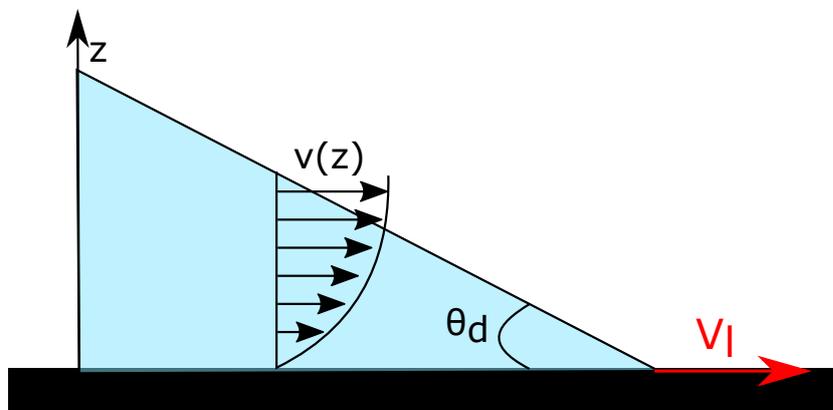


FIGURE 1.12 – Modélisation de la ligne de contact en mouvement.

Dans ce modèle, l'angle de contact varie avec la vitesse à cause de la dissipation visqueuse dans le liquide [15]. En calculant le profil de vitesse à partir des équations de Navier-Stokes dans l'écoulement, les auteurs se sont heurtés à un problème dans le coin liquide au voisinage de la ligne triple. En effet, ce calcul conduit à la divergence du gradient de vitesse lorsque la hauteur du liquide tend vers zéro. Pour y remédier, ils ont introduit deux longueurs de coupures de l'écoulement x et a_m sous la forme d'un facteur logarithmique $l = \ln(x/a_m)$. x est la longueur maximale du système (la longueur capillaire ou la taille de la goutte) et a_m la longueur minimale (échelle moléculaire) en dessous de laquelle l'écoulement ne satisfait plus les conditions de non-glissement sur la paroi. De cette manière, la dépendance de l'angle de contact macroscopique avec la vitesse a été calculée par Cox et Voinov [42, 43] dans la limite des angles de contact petits, et conduit à la loi suivante :

$$\theta_{d,a/r}^3 = \theta_{s,a/r}^3 \pm 9C_a \ln\left(\frac{x}{a_m}\right) \quad (1.13)$$

avec $\theta_{d,a/r}^3$ l'angle de contact dynamique d'avancée ou de recule, $\theta_{s,a/r}^3$ l'angle de contact statique d'avancée ou de reculée et le nombre capillaire $C_a = \frac{\eta V_i}{\gamma}$ avec η la viscosité du liquide. Cette loi explique donc la dépendance de l'angle de contact dynamique observée par Hoffman.

Il est possible de calculer la vitesse d'entraînement au-delà de laquelle cette loi n'est plus valide en cherchant la vitesse extrême donnée par la fonction (1.13) [13]. Au-delà de cette vitesse, un film de liquide est entraîné sur la surface :

$$V_m = \frac{\gamma \theta_e^3}{9\sqrt{3}\eta l} \quad (1.14)$$

1.2.3 Modèle moléculaire.

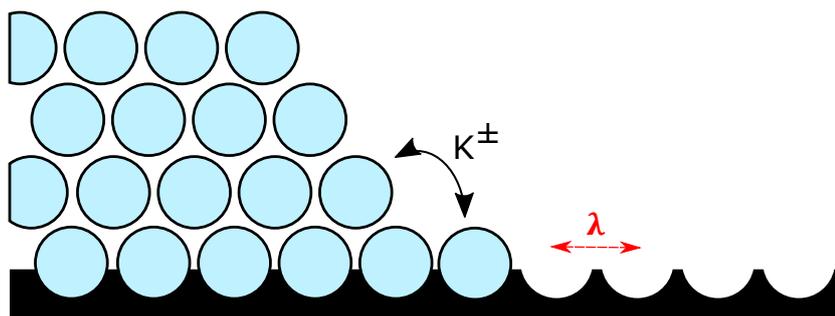


FIGURE 1.13 – Schématisation de la ligne de contact du point de vue moléculaire.

L'approche moléculaire, proposée par Blake *et al* [44], considère que la dissipation des forces capillaires résulte des processus d'adsorption et de désorption des molécules du liquide au niveau de la ligne de contact (Figure 1.13). Ces processus sont activés par des fluctuations thermiques. Le mouvement de la ligne se fait alors par le passage de molécule du liquide à la surface sur des sites libres à une fréquence K^+ (avancée) ou bien de la surface au liquide à une fréquence K^- (reculée). A l'équilibre, lorsque la ligne est

immobile, ces deux fréquences sont égales et valent K_0 . K_0 est la fréquence d'équilibre des déplacements aléatoires des molécules. Lorsque la ligne de contact est mise en mouvement par une force $F = \gamma(\cos(\theta_e - \theta_d))$, et en considérant que la distance moyenne entre les sites d'adsorption/désorption est λ , on obtient la relation entre l'angle et la vitesse suivante :

$$\theta_{d,a/r} = \cos^{-1} \left(\cos(\theta_{s,a/r}) \pm \frac{2k_B T}{\gamma \lambda^2} \sinh^{-1} \left(\frac{V_l}{2K_0 \lambda} \right) \right) \quad (1.15)$$

où k_B est la constante de Boltzmann et T la température ambiante du milieu.

1.2.4 Mesures expérimentales.

Comme vu précédemment, de nombreuses études ont permis de mesurer sur des surfaces lisses les lois de comportement angle-vitesse [15,16,33,35,40,41,45]. Différents moyens ont ensuite été utilisés pour solliciter la ligne et réaliser des mesures dynamiques.

Dans [36], les auteurs ont mesuré les angles de contact dynamique d'une goutte visqueuse qui glisse sur un plan incliné. En mesurant les angles sur toute la périphérie de la goutte, ils observent que l'angle de contact suit bien la loi de Cox-Voinov pour l'angle de recul. Dans [24,46] les auteurs observent la relation $\theta_{s,r}^3 - \theta_{d,r}^3 \sim Ca$ pour de l'eau et un acide sur une plaque hydrophobe de téflon lisse. Ramiasa *et al* [37], ont étudiée la dynamique d'un front d'eau en retrait, déplacé par une gouttelette de dodécane et d'une bulle d'air sur des surfaces de plus en plus hydrophobes. Ils montrent que l'angle de contact est bien décrit par le modèle moléculaire et que la friction de la ligne de contact diminue d'autant plus que la surface est hydrophobe. Plus tard dans [38], les auteurs montrent également dans le cas des surfaces rugueuses à l'échelle nanométrique que le mouvement de la ligne résulte d'un mouvement collectif d'une portion de celle-ci lors du dépiégeage par un défaut, plutôt que de déplacements moléculaires individuels. De plus, lorsque les rugosités atteignent des tailles micrométriques, celles-ci affectent la dynamique de l'angle de contact.

Dans [47], les auteurs ont étudié la dynamique de l'angle de contact d'avancée et de reculée de solutions nanocolloïdales à base de tensioactifs sur des surfaces hydrophiles, hydrophobes et superhydrophobes avec la méthode de goutte sessile. Ils observent que la loi de Cox-Voinov-Tanner s'avère valable pour les surfaces hydrophiles mais qu'une faible dépendance au nombre capillaire est observée pour les surfaces superhydrophobes.

Ainsi, sur des substrats lisses, le modèle de type hydrodynamique explique bien les données pour des liquides visqueux tandis que le modèle moléculaire rend mieux compte des données pour des liquides peu visqueux comme l'eau par exemple. Le mouillage dynamique des surfaces superhydrophobes, a été bien moins étudié et reste encore mal compris. Voici ci-après les seules études existantes.

Kim *et al* [24] ont mis en évidence sur ces surfaces que l'angle de contact d'avancée dépend très peu du nombre capillaire. Dans [24,25], les auteurs montrent que pour des surfaces superhydrophobes, la dynamique de l'angle de reculée ne suit pas la loi de Cox-Voinov $\theta_d^3 \propto Ca$ et que le modèle hydrodynamique n'est pas approprié pour décrire la relation. Ils ont aussi étudié la dynamique de l'angle de reculée $\theta_{d,r}$ en fonction de Ca , sur une surface lisse en téflon et deux types de surfaces superhydrophobes (Figure 1.14). Ils comparent en particulier l'angle dynamique de reculée pour des systèmes : i) d'eau sur une

surface lisse en téflon, ii) une solution aqueuse sur une surface superhydrophobe avec une rugosité nanométrique et iii) une solution aqueuse sur une surface superhydrophobe avec une texturation micrométrique en état Cassie. Seule la surface possédant une texturation micrométrique présente une très faible dépendance avec le nombre capillaire comparé aux deux autres surfaces. Dans [25] les auteurs ont étudié la dépendance de l'angle de contact pour des solutions aqueuses sur des surfaces en téflon texturées en état Wenzel. Ils ont observé que la différence des angles au cube suit une loi : $\theta_{s,r}^3 - \theta_{d,r}^3 \propto Ca^b$. L'exposant b varie de 1 à 1/2 lorsque le nombre capillaire augmente.

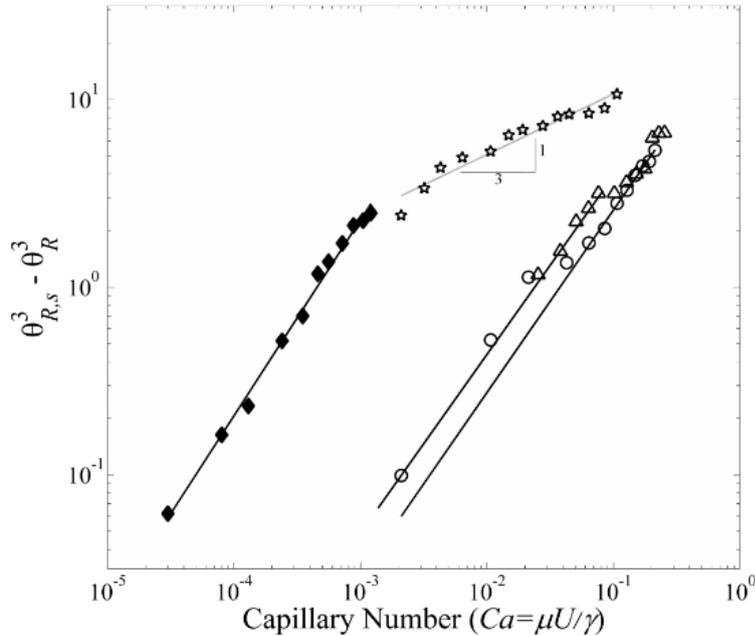


FIGURE 1.14 – Mesures de la différence entre le cube de l'angle de contact de reculée statique et le cube de l'angle de contact de reculée dynamique en fonction du nombre de capillaires tirés de [24]. Les données incluent une surface recouverte d'une peinture superhydrophobe avec une solution de glycérine (cercle) et une solution de PEO (triangle), une surface texturée en téflon superhydrophobe avec une solution de glycérine (étoile), une surface en téflon lisse avec de l'eau pure (losange fermé).

Dans [39], en étudiant le dévalement d'une goutte sur une surface superhydrophobe inclinée, les auteurs montrent que la friction sur ce type de surface est grandement réduite et que la goutte d'eau garde une forme d'équilibre quasi-statique même pour des grandes vitesses.

Enfin, dans la littérature, on ne trouve pas de données de mesure d'angle de contact dynamique pour de l'eau sur des substrats superhydrophobes, à notre connaissance. Kim *et al* [24] justifient leur choix d'utiliser un mélange eau-glycérol pour atteindre des nombres capillaires suffisamment grands pour observer une nette dépendance de l'angle avec Ca . De plus, la texturation des surfaces étudiées dans [24, 25, 39] n'est pas bien contrôlée ce qui rend plus difficile la compréhension des résultats. Dans cette thèse, nous avons donc choisi de réaliser des mesures d'angle de contact pour de l'eau sur des surfaces superhydrophobes modèles, constituées de réseau carré de micropiliers.

1.3 Mouillage et vibration.

Les différentes situations considérées dans la première partie du manuscrit concernent le mouillage dynamique en régime permanent. Nous allons maintenant considérer le mouillage dans un régime transitoire. En effet, ces sollicitations transitoires ont un très fort intérêt pour les impacts de gouttes et pour le déplacement des gouttes sur des surfaces qui est utile pour divers types d'applications, telles que : la microfluidique digitale [48, 49] ou bien l'étalement d'une goutte [50, 51]. Différents procédés ont donc été proposés dans la littérature pour pouvoir mettre en mouvement la ligne de contact de manière contrôlée. Parmi eux, on peut citer : l'électro-mouillage [52, 53] et les vibrations mécaniques du substrats [48, 54, 55]. Dans [54–57], les auteurs montrent que les vibrations du substrat peuvent être utilisées pour déplacer une goutte posée sur un substrat de façon contrôlée. En particulier dans [54], ils montrent qu'avec des vibrations horizontales et verticales simultanées, il est possible de contrôler directement le déplacement d'une goutte (Figure 1.15.a)). Brunet *et al* [55], montre qu'il est possible de faire grimper une goutte sur un plan incliné à l'aide de vibration (Figure 1.15.b)). Plus récemment dans [48, 58], les auteurs montrent en utilisant des ondes acoustiques de surface (SAW) dans la gamme des ultrasons, qu'il est possible d'induire un écoulement et une pression radiative au sein de la goutte, pour la déformer afin de la déplacer. Enfin il est possible également de faire osciller une goutte sans sollicitation mécanique, mais en lui appliquant une différence de potentiel électrique. Cela permet d'induire une force électrique au niveau de la ligne de contact pour la mettre en mouvement [52, 53].

Tout comme les solides possèdent des fréquences de résonance, une goutte de liquide résonne à des fréquences spécifiques en adoptant des modes de formes associés à celle-ci. Dans le cas des liquides, ces fréquences dépendent des propriétés du liquide tel que la masse volumique, la tension de surface, l'angle de contact ainsi que la forme. Tous ces facteurs sont à l'origine de la complexité des phénomènes impliquant la vibration d'une goutte posée.

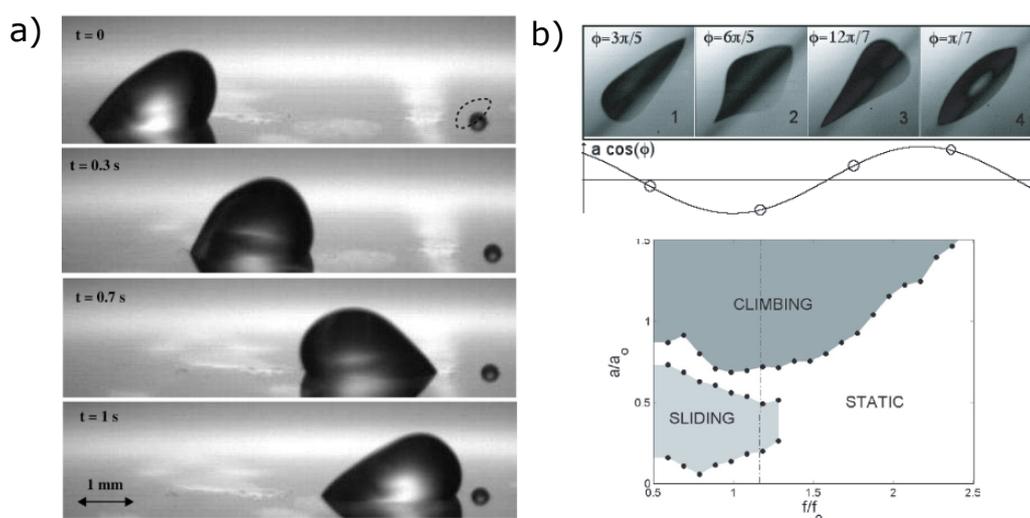


FIGURE 1.15 – a) Goutte en déplacement sur un substrat verticale qui oscille à la fois verticalement et horizontalement, tiré de [54]. b) Goutte qui remonte une surface inclinée sous l'effet de vibration tirée de [55].

L'étude des oscillations libres d'une goutte en état de microgravité ou en lévitation a été l'objet d'étude pendant plus d'un siècle. Les premières études menées par Rayleigh [59] puis Lamb [60] montrent que pour des gouttes sphériques, la fréquence de résonance de l'harmonique sphérique d'indice n s'exprime comme : $\omega_n^2 = \frac{\gamma}{\rho R^3} n(n-1)(n-2)$ avec R le rayon de la goutte, γ la tension de surface du liquide et ρ la masse volumique.

Les premières études de l'effet des vibrations sur des gouttes en mouillage partiel ont été réalisées par Rodot *et al* [61], en 1982, en observant la croissance de cristaux en microgravité. Suite à cela, une multitude d'études théoriques, numériques et expérimentales ont vu le jour, dans l'optique de renforcer la compréhension du comportement d'une goutte vibrée. La majeure partie des études fondamentales se focalise sur l'utilisation de faibles fréquences de vibration (verticales ou horizontales) pour étudier l'effet des oscillations sur l'angle de contact et la ligne triple. L'étude de l'effet des hautes fréquences a aussi été étudiée [58, 62].



FIGURE 1.16 – Les deux comportements d'une goutte sous l'effet de vibrations verticales.

Nous décrivons ici le comportement d'une goutte posée sous l'effet des vibrations verticales du substrat. Celle-ci, peut osciller de deux façons comme illustré sur la Figure 1.16 :

1. Avec une ligne de contact fixe et un angle de contact variable.
2. Avec une ligne de contact mobile et un angle de contact fixe ou qui varie.

Ces deux régimes dépendent de l'amplitude de vibration et de la fréquence.

1.3.1 Ligne de contact fixe.

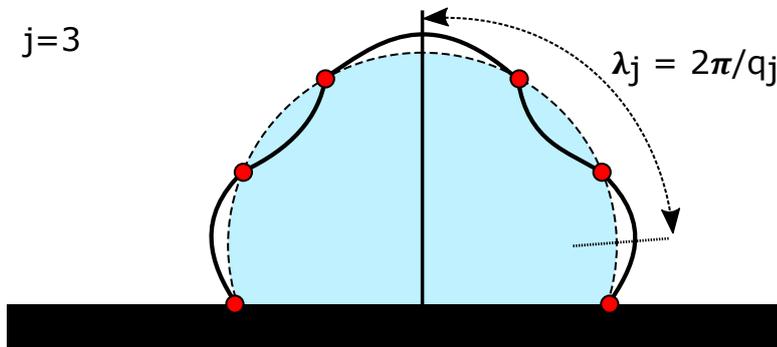


FIGURE 1.17 – Oscillation d'une goutte avec une ligne de contact fixe dans le mode $j = 3$.

Le premier cas correspond à de faibles amplitudes de vibration du substrat. La ligne triple reste piégée et l'angle de contact oscille entre l'angle d'avancée et de reculée ($\theta_r <$

$\theta < \theta_a$) (Figure 1.17). L'utilisation des vibrations permet de mesurer l'angle de contact moyen à partir des oscillations de l'angle [63, 64]. Sharp *et al* [65] appliquent aux cas des gouttes petites (calottes sphériques), une théorie simple proposée par Noblin *et al* [66] pour calculer les fréquences de résonance d'une goutte posée à partir des ondes capillaires stationnaires autour du profil de la goutte. Quand la goutte est en résonance, la longueur du profil de la goutte s est un multiple j d'une demi-longueur d'onde λ tel que :

$$s = 2\theta R = \frac{j\lambda}{2} \quad (1.16)$$

avec R est le rayon de la goutte. Quand la goutte est plus petite que la longueur capillaire, elle adopte une forme de calotte sphérique. La dépendance entre le volume de celle-ci et l'angle de contact est déterminée par :

$$V = \frac{m}{\rho} = \frac{\pi R^3}{3} (\cos^3(\theta) - 3\cos(\theta) + 2) \quad (1.17)$$

où m et ρ sont la masse et la masse volumique du liquide. En combinant les équations (1.16 et 1.17), on obtient la dépendance de la fréquence de résonance du mode j en fonction de l'angle de contact pour une goutte posée :

$$\omega_j^2 \sim \frac{j^3 \gamma (\cos^3(\theta) - 3\cos(\theta) + 2)}{m\theta^3} \quad (1.18)$$

Cette fréquence est limitée au cas d'oscillations axisymétriques de la goutte.

1.3.2 Ligne de contact mobile.

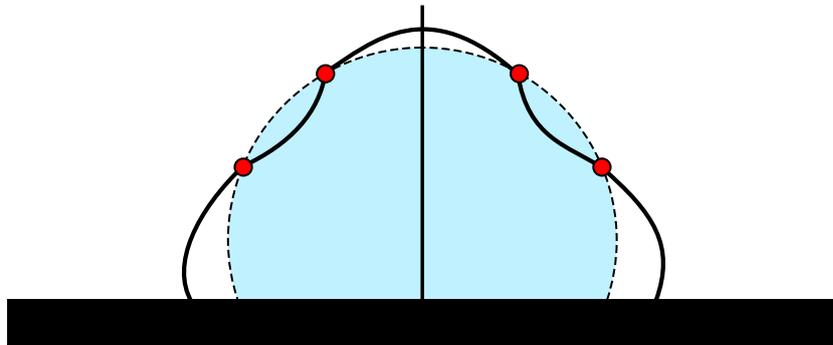


FIGURE 1.18 – Oscillation d'une goutte avec une ligne de contact mobile.

Nous avons vu que les vibrations à faibles amplitudes génèrent des ondes capillaires stationnaires sur la surface des gouttes et que l'angle de contact oscille sans que la ligne ne bouge. Lorsque l'amplitude est suffisamment grande, la ligne de contact se met en mouvement de façon périodique en avançant et en reculant (Figure 1.18). Dans [56, 66], les auteurs montrent que ces deux régimes d'oscillation sont induits par l'hystérésis de l'angle de contact. La transition entre eux survient lorsque les oscillations de l'angle de contact sont suffisantes pour dépasser les angles d'avancée et de reculée. Ils montrent ainsi que l'hystérésis est analogue à une force de frottement solide et qu'elle induit un mouvement de "stick-slip" de la ligne de contact. Noblin *et al* [66], en étudiant la vibration de petite

flaque, montrent qu'il existe une accélération seuil pour mettre en mouvement la ligne. Ils interprètent cela à l'aide d'un modèle énergétique simplifié dont la condition de mise en mouvement s'écrit par :

$$\frac{a}{g} > \frac{H}{(1 - \cos(\theta_e))} \quad (1.19)$$

où a est l'accélération maximale des vibrations du substrat, g l'accélération de la pesanteur et $H = \cos(\theta_a) - \cos(\theta_r)$ l'hystérésis. La Figure 1.19 illustre ainsi la position de la ligne de contact et l'évolution de l'angle de contact avec le temps pour une petite flaque soumise à des vibrations.

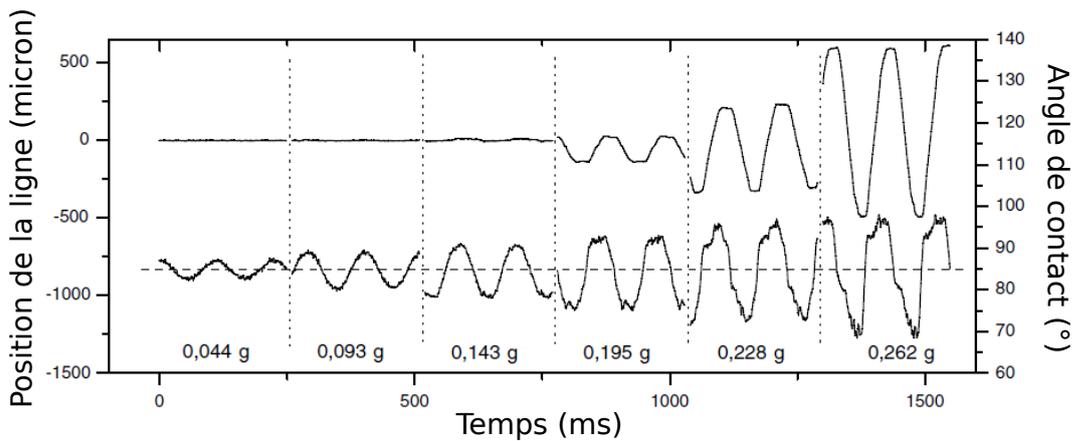


FIGURE 1.19 – Transition entre les mouvements "stick" et "stick-slip" de la ligne de contact en fonction de l'accélération des vibrations (courbes supérieures) et oscillation de l'angle de contact au cours du temps (courbes inférieures) tirée de [66].

1.4 Coalescence et rebond de deux gouttes.

La coalescence de deux gouttes désigne le processus de fusion de ces gouttes en une goutte unique. Induire la coalescence de deux gouttes a été étudié dans la littérature d'un point de vue fondamental [67–69] et permet de déclencher le mélange de deux liquides pour étudier des réactions chimiques par exemple [70] ou d'encapsuler un liquide dans un autre [71]. Dans cette section, nous décrivons plus précisément les différents mécanismes de coalescence en régime quasi-statique puis en régime dynamique. La formation de cette nouvelle goutte se décompose en trois étapes :

1. Les gouttes entrent en contact à un instant noté $t_{contact}$. Le film d'air les séparant est drainé. Le contact est défini par le moment où les interfaces des gouttes se touchent.
2. Un pont liquide se forme et croît entre les gouttes.
3. La goutte finale formée, tend à retrouver une forme circulaire.

1.4.1 Régime quasi-statique.

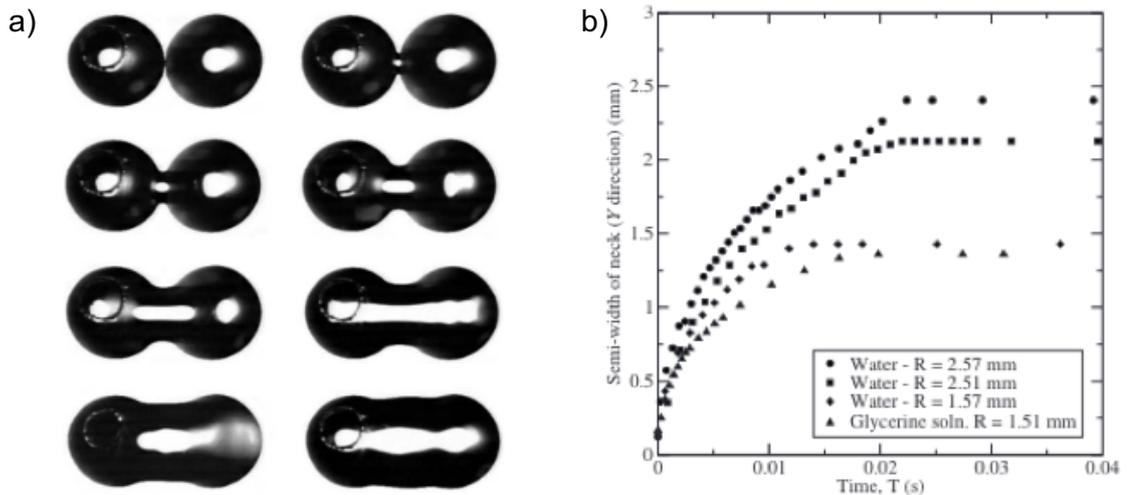


FIGURE 1.20 – a) Séries d'images illustrant la coalescence d'une paire de gouttes sessile en vue du dessus pour les temps : 0, 0.777, 1.888, 4.111, 6.33, 8.55, 16.33, et 60 ms. b) Croissance du rayon du pont liquide ("neck") en fonction du temps. Figures tirées de l'article de Kapur et al (2007) [69].

Considérons deux gouttes posées que l'on nommera goutte 1 et 2. Lorsque deux gouttes entrent en contact, elles coalescent et donnent naissance à la nouvelle goutte 3. En faisant l'hypothèse que les gouttes 1, 2 et 3 restent hémisphériques de volume V_i , on peut définir les coordonnées de leurs centres de masse (x_i, y_i) par rapport à l'aire de contact projetée. La position de la goutte 3 est déterminée par les positions et les volumes des gouttes 1 et 2 telle que :

$$x_3 = \frac{x_1 R_1^3 + x_2 R_2^3}{R_1^3 + R_2^3} \quad (1.20)$$

$$y_3 = \frac{y_1 R_1^3 + y_2 R_2^3}{R_1^3 + R_2^3} \quad (1.21)$$

La Figure 1.20.a) présente la coalescence de deux gouttes en mouillage partiel ainsi que b) la croissance du pont liquide au cours du temps. Dans les premiers instants qui suivent le contact, un pont liquide se forme et croît rapidement perpendiculairement à l'alignement des gouttes. Cette expansion rapide est pilotée principalement par la courbure négative le long de l'interface du pont [68, 69] mais également par l'angle de contact des deux gouttes lors du contact dans le cas de goutte en mouillage partiel [72]. Il a été montré dans la littérature que la croissance du pont, se décompose en deux régimes [68, 73–75]. Aux temps courts, la croissance est dominée par les effets visqueux tandis qu'aux temps plus grands les effets inertiels deviennent dominants. La vitesse de croissance du pont résulte ainsi d'une compétition entre les forces capillaires, les forces visqueuses et les forces inertiels. Dans le régime visqueux, en égalisant les forces capillaires et les forces visqueuses, on montre que le rayon du pont suit la loi :

$$R(t) \sim \frac{\gamma t}{\eta} \quad (1.22)$$

Dans le régime inertiel, ou pour des fluides très peu visqueux, en égalisant les forces capillaires avec les forces inertiels, le rayon du pont suit la loi :

$$R(t) \sim \left(\frac{\gamma R_0}{\rho}\right)^{1/4} \sqrt{t} \quad (1.23)$$

on retrouve cette expression lors des premiers instants du mouillage d'une goutte [76]. À partir de ces expressions, il est possible d'estimer un temps caractéristique pour les deux régimes qui sont notés respectivement τ_i et τ_η pour le régime inertiel et le régime visqueux :

$$\tau_i = \sqrt{\frac{\rho R_0^3}{\gamma}} \quad (1.24)$$

$$\tau_\eta = \frac{\eta R_0}{\gamma} \quad (1.25)$$

On remarque que pour l'eau, la durée du régime visqueux est de l'ordre de 10^{-10} s, ce qui explique que seul le régime inertiel est généralement observé expérimentalement. Cependant, il est possible d'observer ces deux régimes en faisant varier la tension de surface ou bien la viscosité du liquide [74].

1.4.2 Régime dynamique.

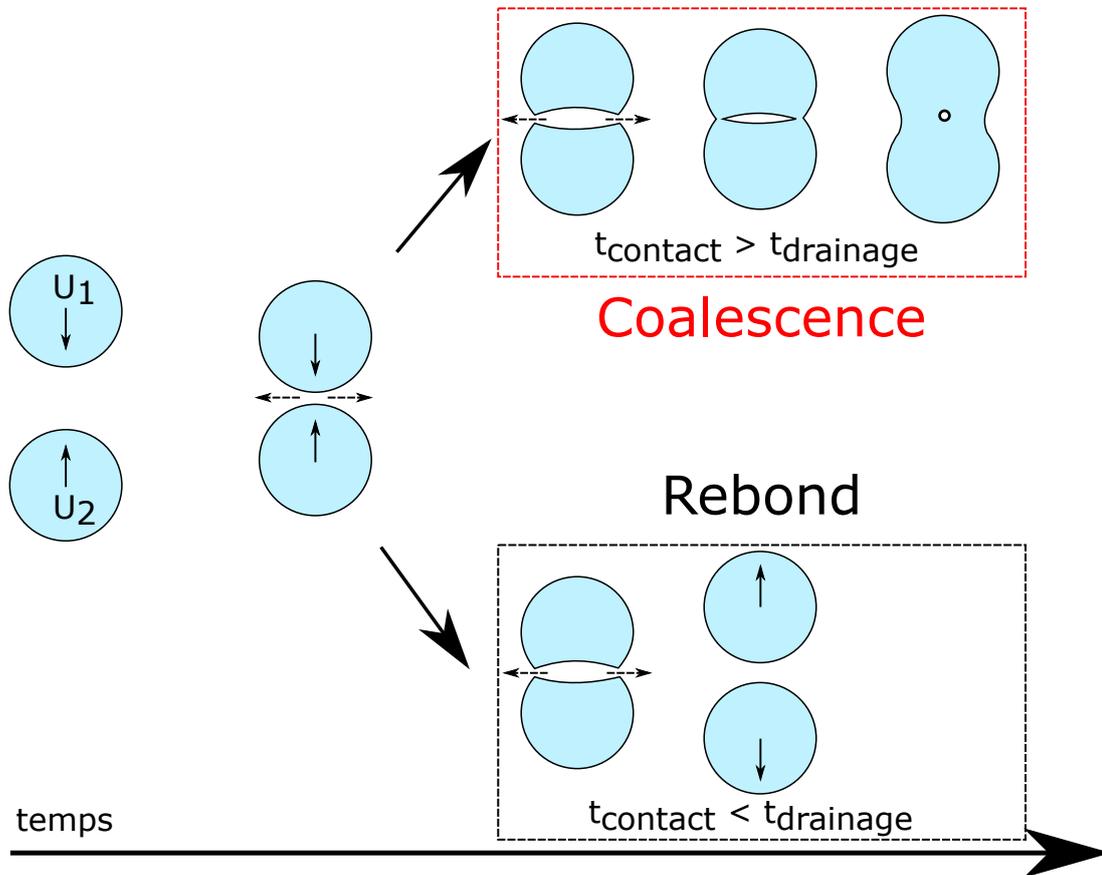


FIGURE 1.21 – Schéma des différents scénarios de coalescence entre deux gouttes qui se rencontrent avec une vitesse U_i , inspiré de [77].

Si la coalescence se fait de manière dynamique, les interfaces liquides se rencontrent avec des vitesses U_i . Lorsque deux interfaces liquides entrent en contact avec une vitesse, elles piègent un film d'air. On trouve ce régime dynamique lors de la rencontre d'une goutte avec un bain liquide ou bien l'impact de deux gouttes dans l'air par exemple [78–82]. La pression exercée par ces interfaces sur le film induit un courant d'air du centre vers la périphérie du contact [83]. Ce flux peut être décrit par les équations de Stokes dans le cas des approximations de lubrification (lorsque la hauteur du film h est très petite devant la longueur du contact). Dans ces différents cas, le temps de drainage du film d'air t_{drainage} n'est plus négligeable contrairement au cas statique. La Figure 1.21 schématise les deux scénarios qui peuvent avoir lieu lors du contact suivant le temps de drainage du film d'air :

- Si $t_{\text{contact}} > t_{\text{drainage}}$, le film d'air est drainé, puis les gouttes coalescent.
- Si $t_{\text{contact}} < t_{\text{drainage}}$, le film d'air n'est pas suffisamment drainé. La coalescence est inhibée, et il y a un rebond.

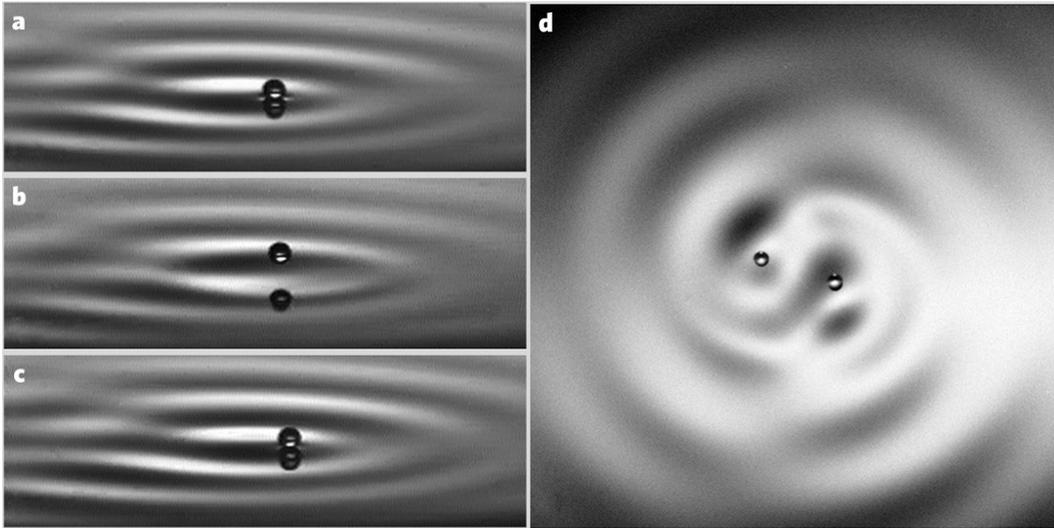


FIGURE 1.22 – Goutte se déplaçant par rebond sur un bain liquide tiré de [84].

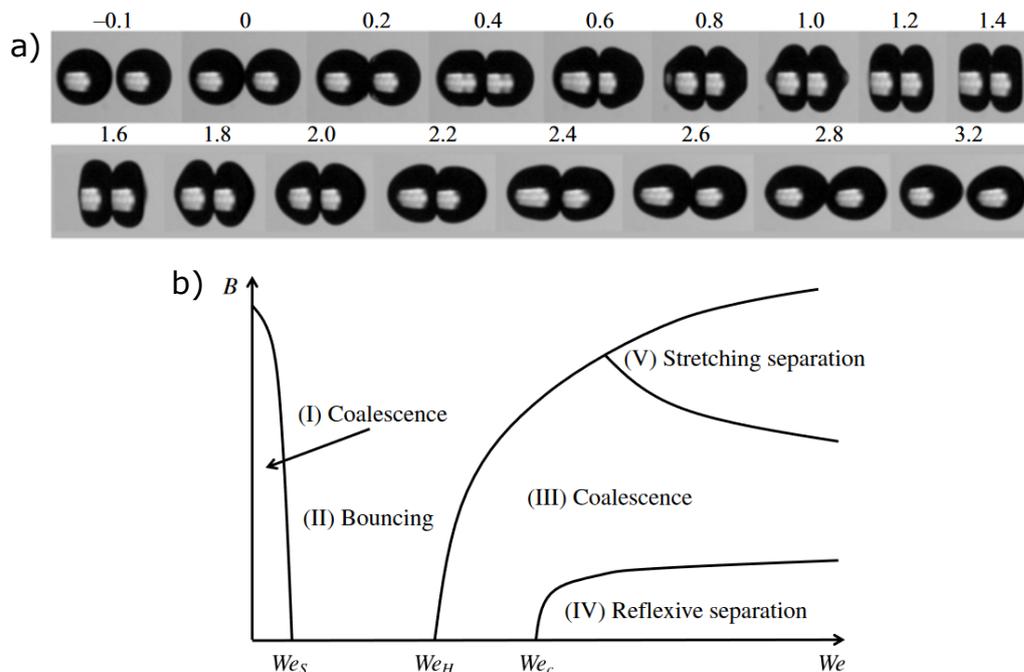


FIGURE 1.23 – a) Rebond entre deux gouttes en collision dans l'air tiré de [85]. b) Diagramme de coalescence lors de l'impact de deux gouttes dans l'air tiré de [86]

Le scénario d'inhibition a conduit à de nombreux nouveaux phénomènes fascinant dans la littérature tel que les "marcheurs de Couder" [80, 84, 87] illustré sur la Figure 1.22. Couder *et al* [79] ont réussi à atteindre un régime permanent de rebond, entre une goutte et un bain liquide visqueux de même nature à l'aide de vibration du bain. Ils montrent que ce régime est possible si l'accélération de la surface du bain est supérieure à celle de la pesanteur. Ils montrent aussi que la dynamique du film d'air joue un rôle important dans le rebond, celui-ci doit rester stable et pouvoir résister à la pression exercée. D'autres travaux ont montré l'influence de la taille des gouttes mais aussi de la viscosité sur ce

phénomène [79, 80, 87]. Gilet *et al* [80], en fixant la fréquence du bain ont ainsi pu filtrer la taille des gouttes pouvant coalescer avec le bain en continu.

Dans le cas de la collision de deux gouttes dans l'air, les différents régimes dépendent de l'angle de collision, du nombre de Weber W_e , de la taille des gouttes et des propriétés des liquides [78, 85, 86]. La Figure 1.23.b) illustre le diagramme d'existence des différents régimes lors de la collision entre deux gouttes de liquide dans l'air. Le nombre de Weber, est un nombre sans dimension, défini par le rapport des forces d'inertie et des forces de tension de surface :

$$W_e = \frac{\rho U^2 D}{\gamma} \quad (1.26)$$

avec U la vitesse de rencontre des gouttes et D le diamètre des gouttes. Le scénario de coalescence retardée survient lorsque l'épaisseur du film d'air atteint une épaisseur critique. En dessous de cette distance critique, les forces attractives de Van Der Waals dominant et rapprochent les interfaces entraînant la coalescence. Pour résumer, le temps de drainage dépend de plusieurs facteurs comme la vitesse, la tension de surface des gouttes, la viscosité et la nature du milieu environnant (si c'est un gaz ou un autre liquide).

1.5 Figure de souffle.

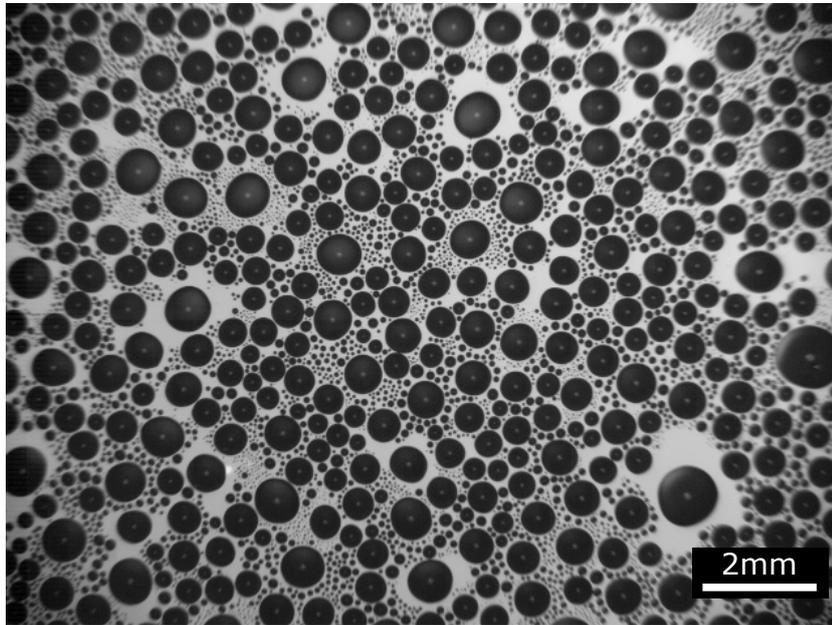


FIGURE 1.24 – Image d'une figure de souffle.

La buée est un phénomène naturel que l'on peut observer tous les jours. Dans la littérature, elle porte le nom de "figure de souffle" et décrit une assemblée de gouttelettes formées lorsque la vapeur d'eau se condense sur une surface froide dans un environnement humide. La Figure 1.24 montre une figure de souffle.

L'évolution des figures du souffle au cours du temps a été activement étudiée expérimentalement et numériquement ces dernières décennies [10, 88–92], en particulier pour comprendre fondamentalement la croissance des gouttelettes par condensation. Ces études ont permis de proposer des procédés de dépôt en phase vapeur de couche mince [90], et de développer des systèmes de récupération d'eau issue de la rosée [93]. Cette dernière application montre que les figures de souffle ont un intérêt environnemental non-négligeable. En effet, dans certaines zones géographiques à faibles précipitations où l'humidité est importante telle que la Tanzanie, elle peut être utilisée comme une source d'eau alternative [94].

Cependant, la formation d'une figure de souffle peut également être problématique. Elle peut nuire à la vie quotidienne mais également dans l'industrie. En effet, l'assemblée de gouttes affecte par exemple la visibilité à travers une surface transparente ce qui peut impliquer un danger (pare-brise de voiture et lunette de vue), une perte d'efficacité (échange thermique) ou bien une perte d'esthétisme (portes vitrées).

Pour minimiser ces effets, différentes approches ont été proposées. Il est possible de restreindre la condensation par exemple en asséchant l'air ambiant [95], ou bien en appliquant des traitements de surface pour limiter la nucléation et/ou faciliter le décrochage et le déplacement des gouttes sur celle-ci (la collecte d'eau) [96–99]. Il est aussi possible de solliciter directement les gouttes. Dans cette section, nous décrivons les mécanismes de formation et d'évolution d'une figure de souffle, puis les différents moyens de solliciter les gouttes pour faire évoluer la figure.

1.5.1 Nucléation des gouttes.

Pour les physiciens, la formation d'une figure de souffle est un problème de transition de phase du premier ordre, avec une phase gazeuse caractérisée par une température et une pression qui se transforme en une phase liquide (condensée) sur une surface de température inférieure.

La première étape est l'apparition des gouttes, appelée nucléation. Celle-ci débute lorsque la phase vapeur présente une pression supérieure à sa pression de vapeur saturante, ou bien une température inférieure à sa température de saturation [100]. Dans ce cas, la vapeur d'eau est dans un état métastable et elle tend à condenser en une phase liquide afin de minimiser son énergie. La nucléation est alors déclenchée par une petite fluctuation thermique ou par la présence d'un défaut (nucléus). Tout cela peut se traduire d'un point de vue énergétique et on montre ainsi qu'il existe une taille critique à partir de laquelle la goutte est stable. Dans le cas d'une nucléation hétérogène, c'est-à-dire celle due à la présence de nucléis (ce qui arrive le plus couramment), la nucléation est affectée par les propriétés de mouillage des surfaces [90, 100].

1.5.2 Évolution des gouttes nucléées.

Les gouttes de liquide qui ont nucléées vont ensuite croître en fonction des conditions atmosphériques (température, humidité, pression, etc.). Une figure de souffle est caractérisée généralement par le rayon moyen des gouttes visibles qui la composent. Pour mesurer optiquement ce rayon, la taille minimale des gouttes doit être de l'ordre de quelques micromètres. L'évolution de la figure de souffle est décrite par la croissance des gouttes et se décompose en deux étapes principales :

1. La croissance des gouttes individuelles.
2. La croissance des gouttes avec événement de coalescence (régime auto-similaire).
C'est le mécanisme prépondérant dans l'évolution de la buée.

Croissance des gouttes individuelles.

Dans les premiers instants de vie de la figure de souffle, les gouttes sont suffisamment loin les unes des autres pour croître individuellement par condensation sans interaction. On considère une goutte sur un substrat à température constante. Le mécanisme principal qui pilote sa croissance provient de l'incorporation des molécules d'eau de la vapeur autour de la goutte. Si on appelle $\vec{j} = -D_0 \vec{\nabla} c$ le flux de molécules à l'interface et D_0 le coefficient de diffusion, le profil de concentration $c(r, t)$ de molécules suit la loi suivante :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{j} = 0 \quad (1.27)$$

avec t le temps et r la distance par rapport au centre de la goutte. Dans le cas quasi-statique (croissance lente) l'équation (1.27) est réduite à $\Delta c = 0$, avec comme conditions aux limites : c_0 la concentration qui correspond à la pression de saturation au niveau de l'interface et c_∞ celle associée à un flux constant de molécules quand r tend vers l'infini [91, 101]. La croissance du rayon de la goutte s'obtient donc en intégrant l'équation suivante :

$$R^2 \frac{dR}{dt} = \int j dS \quad (1.28)$$

De plus, lors de la croissance, on considère que l'incorporation est uniforme sur la surface de la goutte. Pour une goutte hémisphérique en 3D l'équation $\Delta c = 0$ à une solution hyperbolique [91, 101] de la forme :

$$c = c_\infty - (c_\infty - c_0) \frac{R}{r} \quad (1.29)$$

L'intégration de cette équation donne la loi classique d'évolution d'une goutte isolée :

$$R \sim t^{1/2} \quad (1.30)$$

Croissance d'un ensemble de gouttes en interaction sans coalescence.

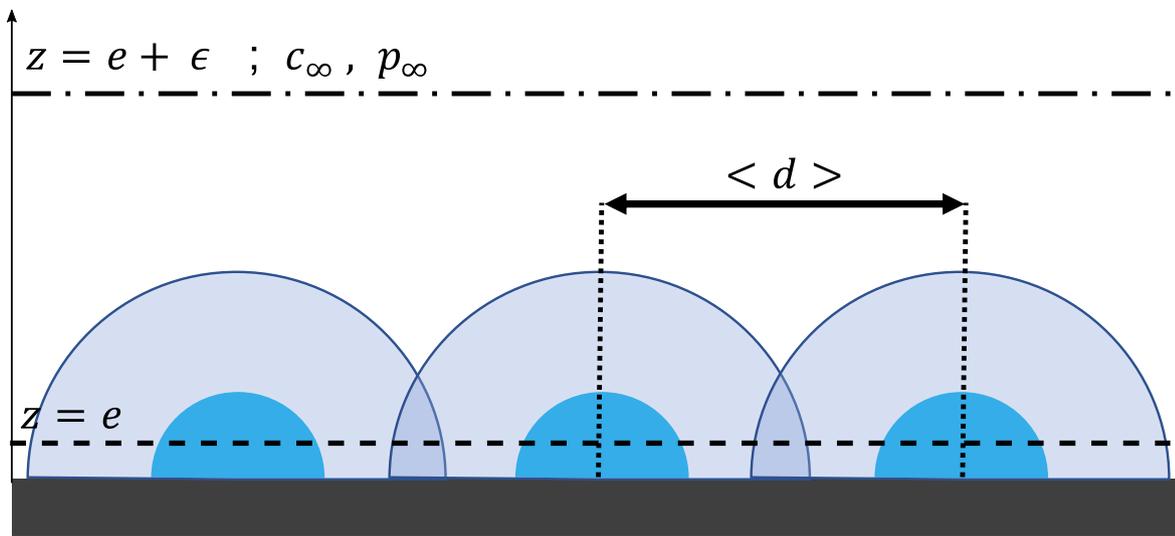


FIGURE 1.25 – Schéma de la croissance d'un ensemble de gouttes en interaction sans coalescence.

En grandissant, les gouttes se rapprochent les unes des autres et elles ne peuvent plus croître de façon indépendante. Autour de chaque goutte, les profils de concentration se superposent comme on le représente sur la Figure 1.25. Ainsi, chaque goutte possède une zone d'influence sur une distance que l'on notera δ . Dans cette configuration, les gouttes sont espacées d'une distance moyenne $\langle d \rangle$. Lorsque les gouttes sont suffisamment proches, elles peuvent être considérées comme un film homogène d'épaisseur $e = V_c/S_c$ [91, 101], qui est le rapport entre le volume total de liquide condensé et l'aire de la surface de condensation. Le volume de chaque goutte va croître comme un film liquide dont la concentration en vapeur varie linéairement perpendiculairement à la surface. Les nouvelles conditions aux limites sont alors : $c_0 = c(z = e)$ et $c_\infty = c(z = e + \epsilon)$, où ϵ est l'épaisseur la couche limite de la concentration. En résolvant l'équation $\Delta c = 0$ avec ces conditions on obtient :

$$e \sim t \quad (1.31)$$

On trouve donc que le volume de chaque goutte est proportionnel à l'épaisseur ce qui conduit à l'évolution temporelle du rayon telle que :

$$R \sim t^{1/3} \quad (1.32)$$

Croissance des gouttes avec évènements de coalescence.

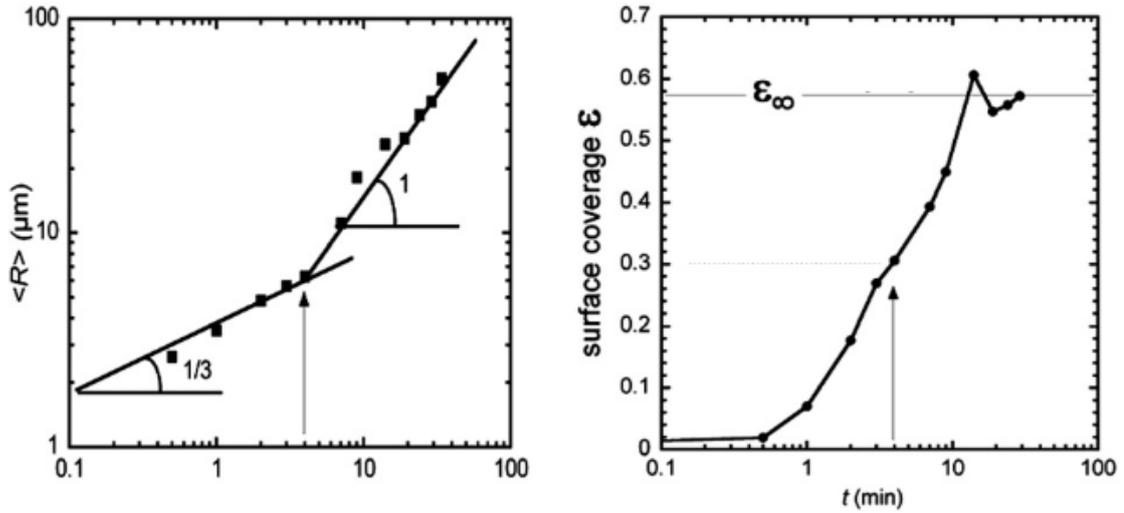


FIGURE 1.26 – Evolution du rayon moyen $\langle R \rangle$ de l'ensemble de gouttes (droite) et de la fraction de surface ϵ mouillée par celles-ci (gauche) au cours du temps. Courbes tirées de l'article de Beysens *et al* (1991) [10].

A mesure que les gouttes continuent de grandir, elles se rapprochent puis se touchent. Quand cela se produit, elles coalescent dans un régime quasi-statique comme décrit et expliqué dans la section précédente. Ces fusions de gouttes induisent une augmentation drastique du rayon moyen des gouttes dans la figure de soufflé et une forte diminution du nombre de gouttes total. Les évènements de coalescence débutent à l'étape 2 de la croissance. Cette étape est un régime auto-similaire [10]. Ce régime est atteint lorsque la surface recouverte par le liquide sur le substrat dépasse environ 30% de la surface totale (voir Figure 1.26). Cela correspond au moment où il commence à y avoir de fortes interactions entre les gouttes du fait de l'encombrement. L'augmentation rapide de la croissance, provient de la fusion de plusieurs gouttes simultanément ce qui est bien plus rapide que la croissance d'une goutte isolée par condensation. Ainsi, le rayon moyen des gouttes de la figure de soufflé peut être défini empiriquement par l'équation (1.33) [10,89] :

$$\langle R \rangle \sim t^{\frac{1}{3} \frac{D_g}{D_g - D_s}} \quad (1.33)$$

où D_g est la dimensionnalité de la goutte (pour une goutte hémisphérique $D_g = 3$) et D_s est la dimensionnalité du substrat (pour une surface plane $D_s = 2$). Ainsi, dans le cas d'une surface lisse avec des gouttes hémisphériques qui croissent par coalescence, le rayon moyen des gouttes suit la loi :

$$\langle R \rangle \sim t \quad (1.34)$$

Les événements de coalescence ont pour effet de stabiliser l'aire mouillée du substrat. Lorsque des événements de coalescence ont lieu, de l'espace est libéré sur la surface entre les gouttes. Ces espaces, qui ne sont alors plus affectés par les zones d'inhibition, permettent la nucléation de nouvelles gouttes entre les plus grosses [10,91,101]. Cette nouvelle génération va croître suivant les mêmes lois décrites plus haut, car le régime est auto-similaire. La distribution de tailles de gouttes devient alors bi-modale. L'aire mouillée atteint ainsi une valeur d'équilibre universelle, qui est égale à environ 55% pour des gouttes hémisphériques sur un substrat lisse avec une faible hystérésis [10,100] (Figure 1.26).

1.5.3 Contrôle d'une figure de souffle.

Maitriser la croissance des gouttes et les phénomènes de coalescence permettent de contrôler l'évolution de la figure de souffle. Pour ce faire, il est possible de jouer sur plusieurs facteurs [92,102,103]. Dans [95], les auteurs ont influencé la nucléation et la croissance des gouttes en faisant varier la température, et/ou l'humidité relative. Dans [104], les auteurs ont étudié l'effet des propriétés de mouillage du substrat sur l'évolution d'une figure de souffle. Dans [91], ils ont montré que la présence de discontinuités sur la surface (géométrique ou thermique) peut favoriser ou non l'évolution locale de la figure de souffle. Enfin dans [92,103], les auteurs ont étudié l'effet de diverses texturations sur la condensation.

Dans le but d'accélérer la croissance des gouttes sans attendre la croissance naturelle, certaines études récentes se sont intéressées à la sollicitation directe des gouttes pour déclencher la coalescence. Dans [11], ils utilisent les propriétés de l'électromouillage pour accélérer la croissance de la figure de souffle. Ils montrent qu'avec un motif d'électrodes, il est possible de faire croître le rayon moyen plus rapidement en couplant l'électromouillage à la condensation naturelle. Dans [12], les auteurs ont étudié l'effet d'ultrasons sur une figure de souffle supportée par une plaque d'aluminium verticale et ils ont montré que les ultrasons permettent d'accélérer la collecte d'eau.

Dans cette thèse, nous avons choisi d'utiliser la vibration des gouttes pour déclencher leur coalescence au sein d'une figure de souffle. Pour faire vibrer les gouttes collectivement de manière efficace, nous avons utilisé l'impact d'une bille solide sur une surface embuée. Nous décrivons cette étude dans le Chapitre 2. Nous avons également étudié plus en détail l'influence des paramètres de vibrations de deux gouttes sur la dynamique de leur coalescence. Cette deuxième étude est présentée dans le Chapitre 3.

Impact sur une surface embuée

Ce chapitre présente l'étude expérimentale de l'effet d'un impact sur une surface recouverte de buée. Le but est d'explorer comment les vibrations mécaniques d'un substrat solide affectent la coalescence des gouttes et modifient l'évolution de la figure de souffle. L'objectif est d'accélérer l'évolution de la figure de souffle afin d'obtenir des gouttes plus grosses qui glisseront plus facilement sur une surface inclinée. Dans cette thèse, nous avons proposé un nouveau moyen très efficace d'engendrer la vibration d'une surface solide avec une accélération importante, par l'impact d'un projectile solide sur une figure de souffle. Nous avons étudié en détail l'évolution du nombre de gouttes et du rayon moyen au cours du temps lors de la sollicitation du substrat. Dans un premier temps, le dispositif expérimental est décrit ainsi que la méthode quantitative d'analyse d'un résultat typique. Puis, les résultats obtenus sont présentés et discutés dans la dernière partie de ce chapitre.

2.1 Dispositif expérimental.

La Figure 2.1 schématise le montage expérimental développé. Le substrat est fixé sur un support circulaire dessiné à cet effet. Il s'agit d'un double anneau en duraluminium qui permet de maintenir fermement le substrat sur tout le pourtour avec des vis pour assurer une déformation symétrique. Une bille magnétique solide ($m = 60g$, $\varnothing = 2.5cm$) est le projectile utilisé pour la réalisation des impacts. Sous le support de serrage, est positionnée une lame semi-réfléchissante inclinée à 45° . Une source lumineuse (EDMUND optics) est redirigée vers le centre du support à travers la lame semi à l'aide d'un miroir, colimatée par un condenseur puis rendue homogène avec un diffuseur. Enfin, une caméra rapide (Fantom V7.11) montée avec un objectif zoom NAVITAR de focales 18-108 mm est alignée avec la lame semi-réfléchissante sous le substrat, permettant l'acquisition de films rapides.

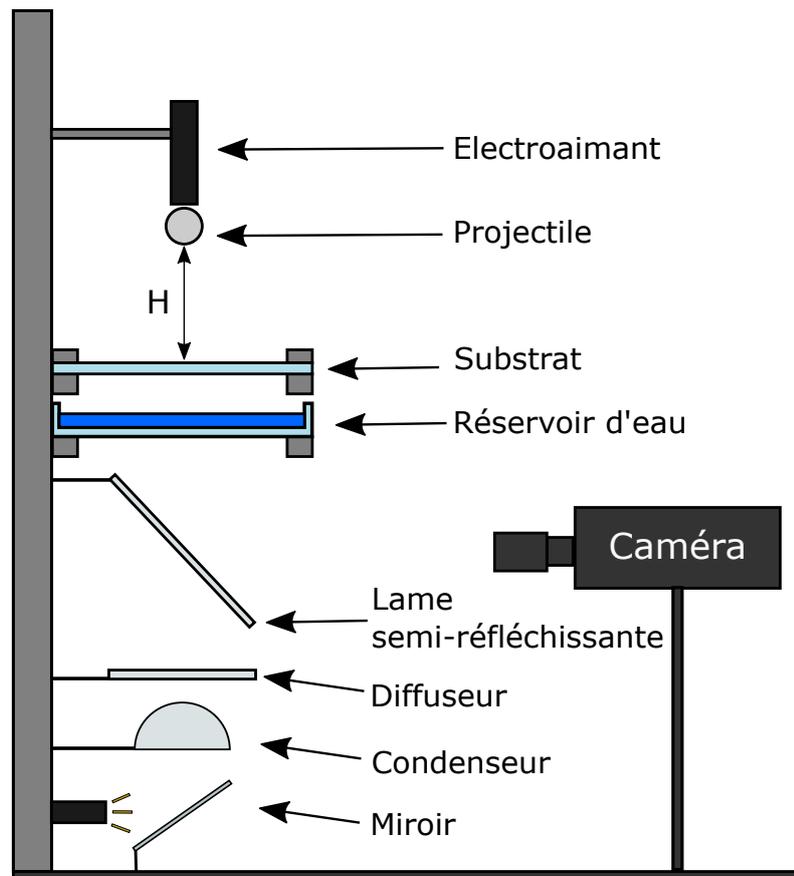


FIGURE 2.1 – Dispositif expérimental montrant comment un impact est généré et comment ses effets sont observés et mesurés.

2.1.1 Matériaux et caractérisation du support.

Pour l'étude, le substrat utilisé est une plaque circulaire de 14 cm de diamètre et d'épaisseur 3 mm en polycarbonate (PC) industriel. Le choix de ce substrat a été motivé pour différentes raisons :

- Il est assez simple de se procurer ce matériau dans le commerce en grande quantité.
- Il est peu coûteux.
- Il possède une bonne résistance mécanique en particulier aux chocs ce qui est très important pour la réalisation des impacts.

Cependant, le polycarbonate présente aussi des points faibles :

- Il est sensible à certains solvants tels que l'éthanol ou l'acétone donc on ne peut pas facilement le nettoyer.
- Il se raye facilement.

Pour éviter les altérations de l'état de surface, le substrat est changé régulièrement et rincé à l'eau distillée.

La surface de polycarbonate est caractérisée en mesurant les angles de contact, d'avancée θ_a et de recul θ_r . Les angles de contact limites, sont mesurés avec un montage de type goutte déposée à l'horizontale où une goutte d'eau est progressivement "gonflée" pour obtenir l'angle de contact d'avancée, puis dégonflée pour obtenir l'angle de contact de recul. Les angles de contact d'avancée et de recul ont été mesurés lorsque la ligne de contact se déplaçait. Les angles sont mesurés par un traitement d'image au plus près de la ligne de contact. La différence entre ces deux angles est définie comme l'hystérésis de l'angle de contact ($\Delta\theta = \theta_a - \theta_r$) et il renseigne sur la capacité de la goutte à se déplacer sur la surface. Dans notre cas, nous avons : $\theta_a = 85.3 \pm 0.5^\circ$, $\theta_r = 61.9 \pm 1.6^\circ$ et $\Delta\theta = 23.4 \pm 2^\circ$.

2.1.2 Protocole expérimental.

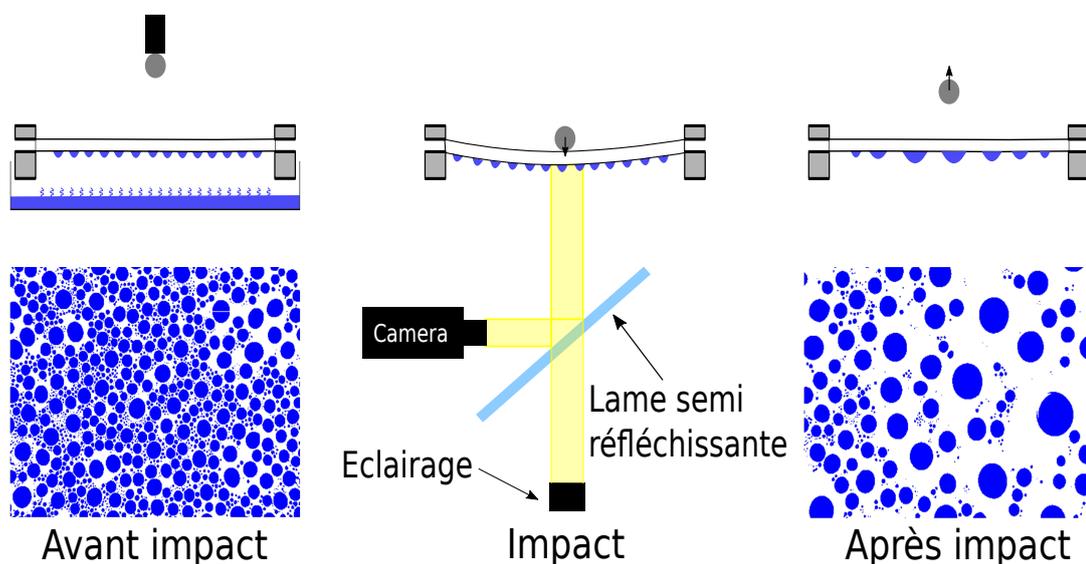


FIGURE 2.2 – Schématisation du protocole expérimental

La Figure 2.2 schématise le déroulement d'une expérience typique. Le substrat est fixé dans l'anneau de serrage fermement sur tout son pourtour. Le projectile est fixé à l'électro-aimant puis positionné à une hauteur H au-dessus du substrat comptée à partir du dessous du projectile. Un réservoir est rempli avec de l'eau déminéralisée réchauffée à $85^\circ C$ à l'aide d'une bouilloire, puis placé sous le substrat. La vapeur d'eau chaude se condense alors sur la face inférieure du substrat qui est à température ambiante et génère une figure de souffle. Après un certain temps de condensation, on retire le réservoir puis quelques secondes après on déclenche l'électro-aimant. Le projectile chute et impact la face supérieure du substrat. Le substrat vibre et on enregistre l'évolution de la figure de souffle avec la caméra rapide à 4000 images/seconde. Une fois l'impact réalisé, on retire la figure de souffle sans toucher le substrat à l'aide d'un jet d'air sec sur la surface du substrat avant la prochaine expérience afin de ne pas endommager le substrat.

2.1.3 Caractérisation des mouvements du substrat.

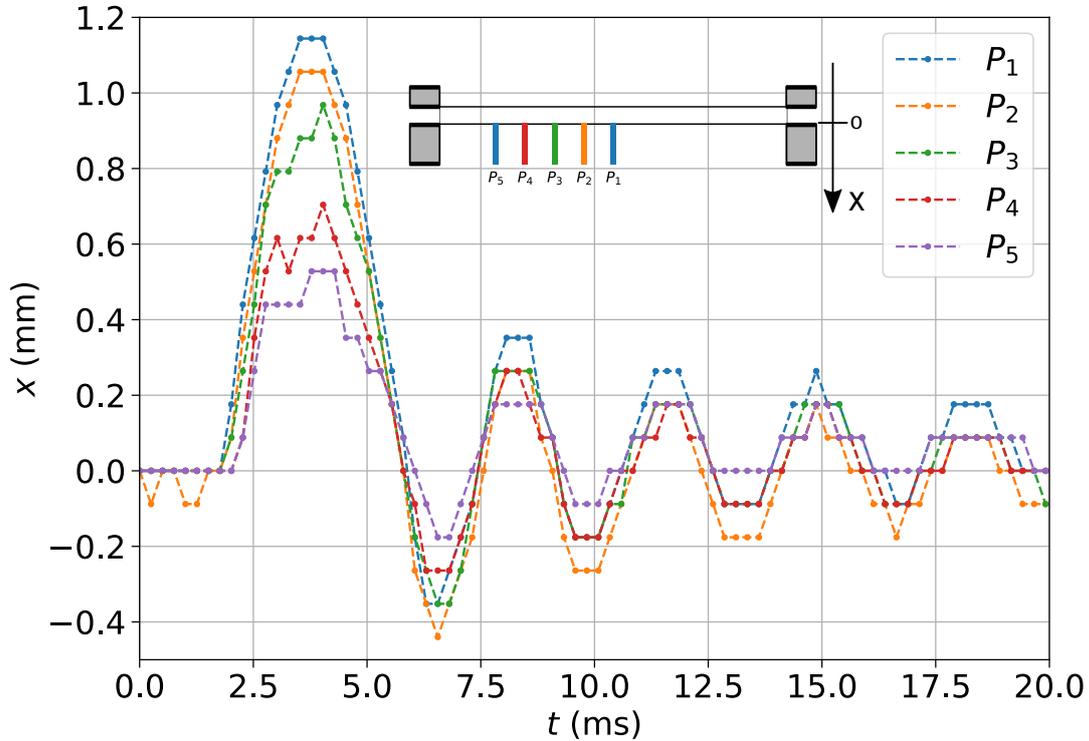


FIGURE 2.3 – Oscillations verticales du substrat en mm lors de l'impact d'une bille en fonction du temps. Chaque couleur représente un point du substrat variant radialement.

Pour caractériser les mouvements du substrat lors de l'impact, on observe le déplacement au cours du temps de piliers millimétrique collés radialement sur la face inférieure de la surface. Chaque pilier, numéroté P_i est espacé de 1cm , du centre vers le bord du substrat. Le pilier $i = 1$ correspond à la zone d'impact au centre, et plus i est grand plus il est éloigné du centre. Pour chaque position, nous avons tracé le déplacement vertical du bas du pilier x_i , en fonction du temps. La Figure 2.3 présente un schéma de la surface avec les piliers ainsi que l'évolution temporelle de la position verticale des 5 premiers piliers.

Tout d'abord, En outre, pour chaque position sur la surface, pour une hauteur de chute donnée, on observe une vibration uniforme des piliers à la même fréquence, où seule l'amplitude varie (les pics se superposent pour tous les piliers.). On est donc en présence du premier mode de vibration, axisymétrique. L'amplitude du déplacement est d'autant plus importante que l'on est proche du point d'impact. Le graphique de la Figure 2.4 détaille l'amplitude au cours du temps d'un pilier. On remarque que le signal est composé de deux parties. La première, d'une amplitude plus grande et de fréquence plus faible que les oscillations suivantes, correspond à l'impact, quand le projectile est en contact avec le substrat. Pendant cette phase la plaque subit au centre une force ponctuelle qui la déforme fortement de façon axisymétrique. Puis la plaque tend à retrouver sa forme d'origine et le projectile quitte la plaque (rebond). La seconde partie du signal représente la vibration du substrat libre, quand le projectile n'est plus en contact. Pour étudier ce

signal composé, chaque partie est ajustée par les fonctions $x_1 = A_1 * \cos(\omega_1 t + \phi_1)$ et $x_2 = A_2 * \cos(\omega_2 t + \phi_2) * e^{-kt}$, respectivement pour la première et la seconde, afin de mesurer l'amplitude A , la pulsation ω , la phase ϕ et le facteur d'atténuation k . L'accélération de la surface est calculée en dérivant deux fois le signal, $\ddot{x}_i(t) = \frac{d^2 x_i}{dt^2}$.

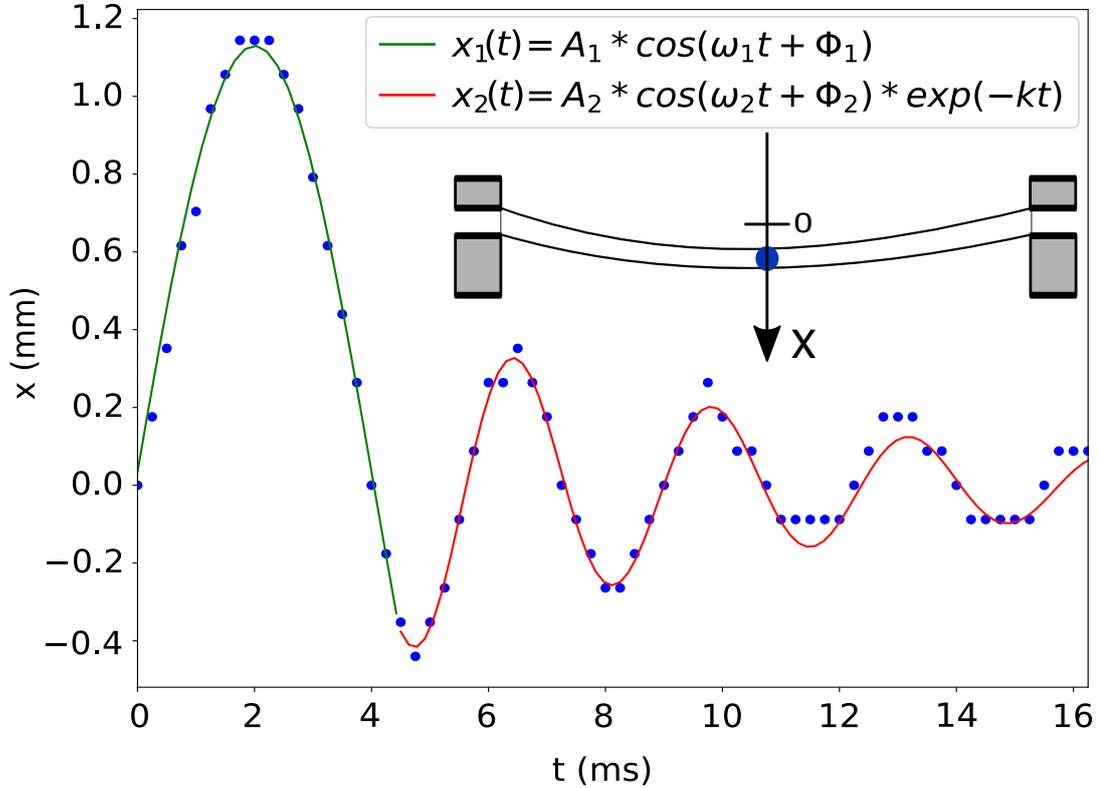


FIGURE 2.4 – Mouvement vertical du centre de la plaque en fonction du temps après un impact d'une bille de masse $m=60\text{g}$, d'une hauteur $H=6\text{cm}$. Le mouvement a été ajusté selon deux lois correspondant à plaque+bille (en vert) puis plaque seule (en rouge).

Nous déterminons les deux pulsations $\omega_1 < \omega_2$ dont les fréquences correspondantes sont : 125 Hz pour la partie verte et 315 Hz pour la partie rouge. La différence entre les deux pulsations provient de la présence d'une masse supplémentaire lors de l'impact (le projectile), correspondant à une masse effective plus élevée de la plaque au centre. Les fréquences propres d'une plaque circulaire sont définies par : $\omega_P = \frac{b}{2\pi} \sqrt{\frac{Eh^2}{\rho d^4}}$ où E est le module d'Young, ρ la densité et b une constante prenant en compte les valeurs d'argument des fonctions de Bessel [105]. Lorsque la bille est en contact avec la plaque, la fréquence peut être réécrite comme suit : $\omega_B = \frac{b}{2\pi} \sqrt{\frac{Eh^3}{d^2 * (M_p/\pi + M_B)}}$. M_p est la masse de la plaque et M_B est la masse du projectile. Alors en effet, l'augmentation de la masse implique une diminution de ω , et explique ainsi les deux fréquences mesurées ω_1 et ω_2 .

Dans notre cas, par exemple avec une plaque de polycarbonate circulaire encadrée, à partir des dimensions connues et des propriétés mécaniques issues de la littérature on obtient pour le premier mode (axisymétrique : $n=0$, noeuds seulement aux bords : $m=0$), une fréquence théorique de : $\omega_2 = 364\text{Hz}$ ($E = 2.2\text{GPa}$, $\lambda a = 3.1962$ et $\rho = 1889\text{kg.m}^{-3}$). Comme l'essentiel du phénomène de coalescence se produit à l'impact, nous avons choisi d'utiliser uniquement A_1 et ω_1 pour caractériser l'impact. L'impact est ainsi caractérisé

l'accélération maximale de la première partie, lors de la déformation de la plaque par le projectile tel que :

$$a_c = A_1 \omega_1^2 \quad (2.1)$$

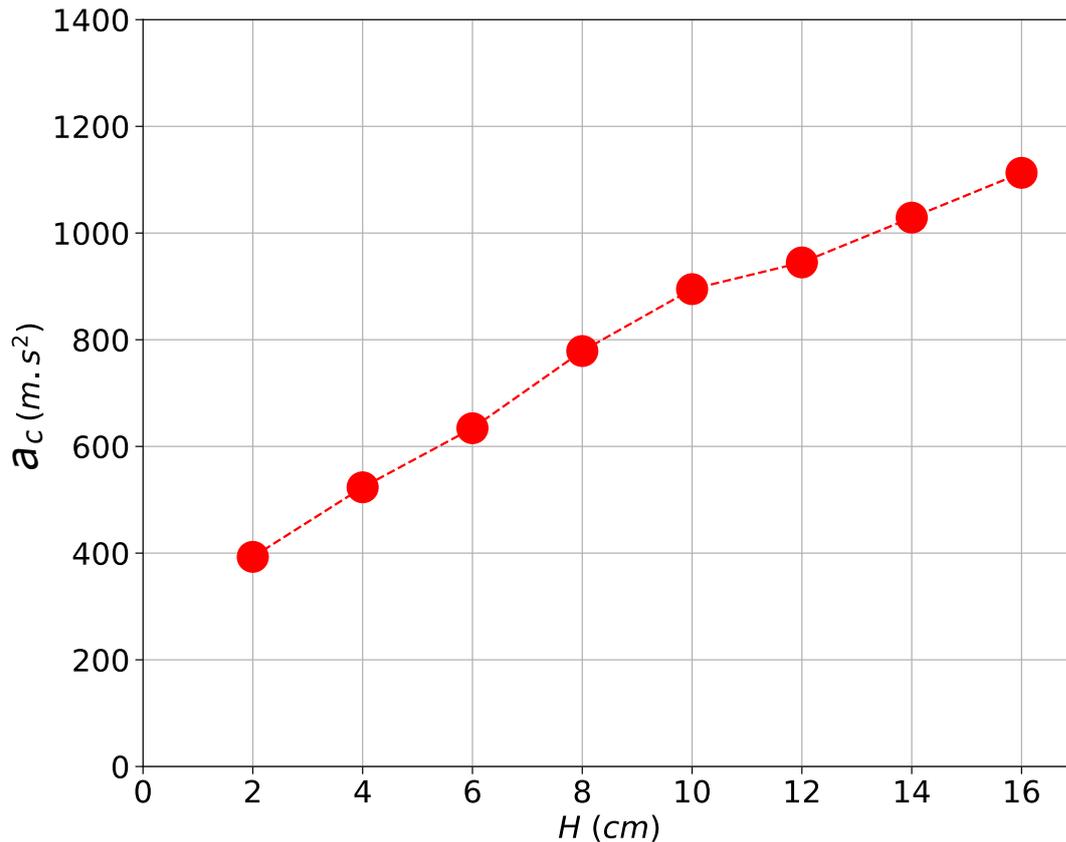


FIGURE 2.5 – Variation de l'amplitude de l'accélération en fonction de la hauteur de chute de la bille.

On a fait varier l'accélération de deux façons différentes. La première consiste à changer la hauteur de chute du projectile. La Figure 2.5 illustre la relation entre l'accélération et la hauteur de chute du projectile. On observe que l'accélération augmente quasi linéairement avec la hauteur de chute dans notre gamme de hauteur. La seconde méthode consiste à fixer la hauteur de chute et à explorer différentes positions sur le substrat. La Figure 2.6 représente l'accélération en fonction de la position sur la plaque pour une hauteur de chute fixe. La déformation étant symétrique lors de la première déformation, en se déplaçant radialement, on a seulement une variation de l'amplitude de déformation et donc une variation de l'accélération locale. La relation entre accélération et position sur le substrat n'est pas linéaire.

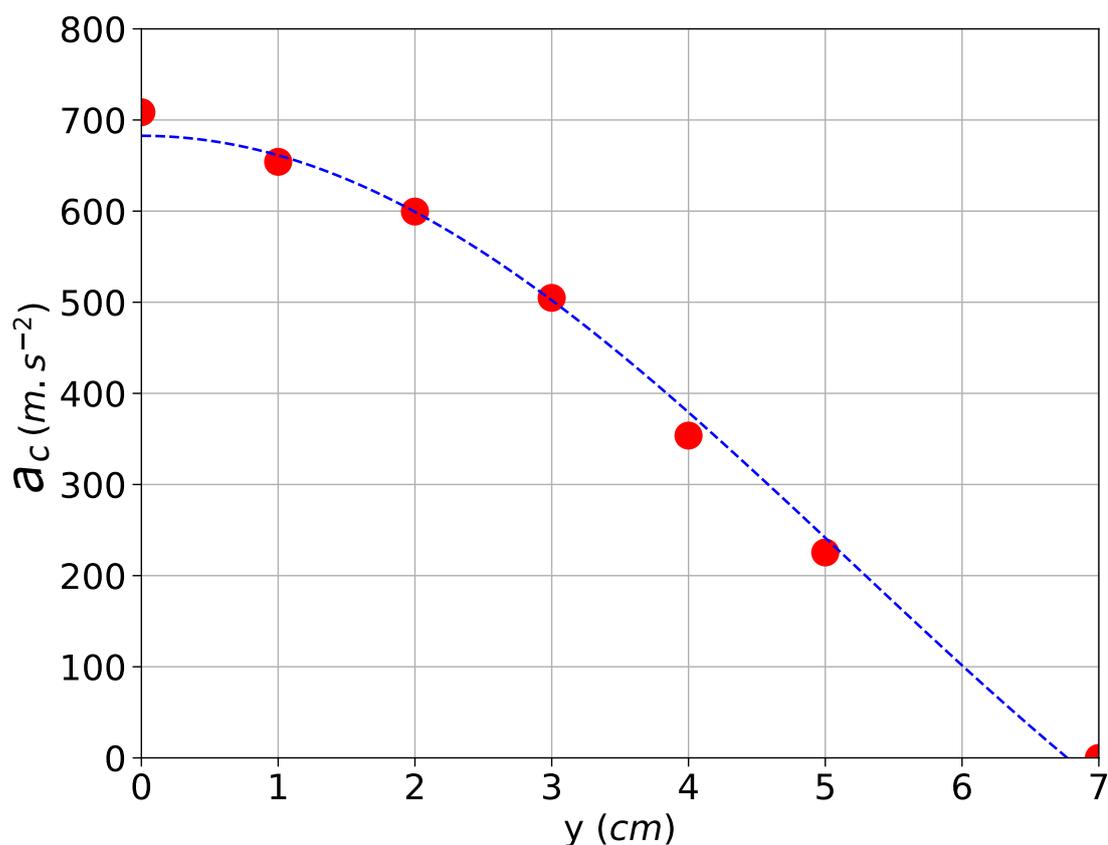


FIGURE 2.6 – Amplitude maximale de l'accélération en fonction de la distance au centre de la plaque circulaire (point d'impact).

2.1.4 Protocole de traitement d'image.

Lorsqu'une expérience est réalisée, la bille est lâchée et un film est enregistré à la caméra rapide. La durée du film est de quelques secondes, résultant en quelques milliers d'images à traiter. La Figure 2.7 présente les différentes étapes du traitement d'une image de la figure de souffle, réalisé à l'aide du logiciel ImageJ. Sur l'image non traitée, les disques noirs représentent les gouttes et le reste plus clair le substrat. Les images sont dans un premier temps segmentées puis binarisées en appliquant la méthode de seuillage Otsu locale (une fonction naturellement implémentée dans ImageJ) [106]. On obtient ainsi des disques blancs (les gouttes) sur fond noir (substrat).

Dans certains cas, la partie centrale de certaines gouttes plus claires, n'est pas complètement remplie après la binarisation (deuxième ligne de la Figure 2.7). Ce problème survient lorsque les gouttes ont un diamètre trop grand. Pour le résoudre, nous appliquons la fonction "fill hole" du logiciel pour remplir tout contour vide.

La proximité et la présence de gouttes micrométriques entre les plus visibles est aussi un problème récurrent, car la majorité des gouttes peuvent se retrouver connectées lors de la binarisation. Pour pallier à cela, on utilise la fonction "watershed" qui permet de délimiter et de séparer les gouttes trop proches.

La calibration de l'échelle est réalisée avec une mire posée sur la surface avant les expériences. Les images traitées permettent d'obtenir les positions et l'aire de chaque disque

blanc avec à la fonction "analyse particule".

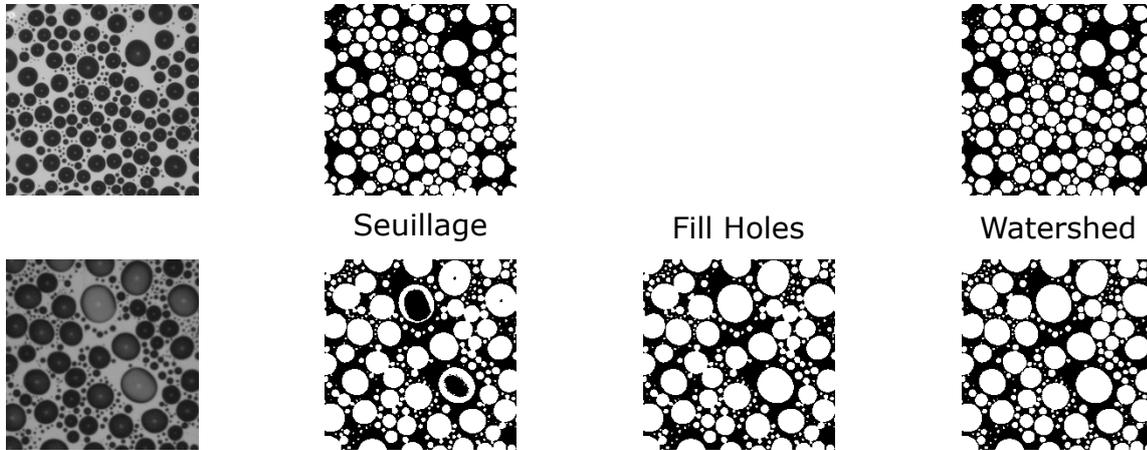


FIGURE 2.7 – Etapes du traitement d’images, pour deux images différentes.

2.1.5 Caractérisation d’une figure de souffle.

Une figure de souffle est généralement caractérisée par sa distribution de taille de gouttes et l’aire mouillée totale sur la surface. La Figure 2.8 représente la distribution des aires de contact des gouttes d’une figure de souffle typique. Dans les premiers instants qui suivent la nucléation des gouttes, la distribution de taille est monodisperse. Puis lorsque le régime auto-similaire est atteint, la distribution devient bi-modale comme vu dans la section 1.5.2 du chapitre 1. Comme on s’y attend pour ce régime, la distribution est bi-modale pour la majorité des figures de souffle étudiées. Le premier pic correspond à toutes les gouttes qui ont condensé tardivement dans les espaces libres entre les gouttes les plus anciennes. Ce pic représente les gouttes de deuxième génération. Le second pic plus petit et plus large correspond aux gouttes plus anciennes dont la croissance est principalement dominée par la coalescence naturelle. Ce pic représente donc les gouttes de première génération.

Nous avons choisi de caractériser les figures de souffle par le rayon moyen équivalent R_m de la première génération. On retiendra donc seulement les gouttes dont l’aire est supérieure à $A \gtrsim 0.03mm^2$ sur la figure. Le rayon moyen équivalent est défini tel que :

$$R_m = \sqrt{\frac{A^*}{\pi}} \quad (2.2)$$

avec $A^* = \frac{\sum A_i}{N}$ l’aire moyenne d’une goutte de la première génération, A_i l’aire mouillée de la goutte i et N le nombre de gouttes.

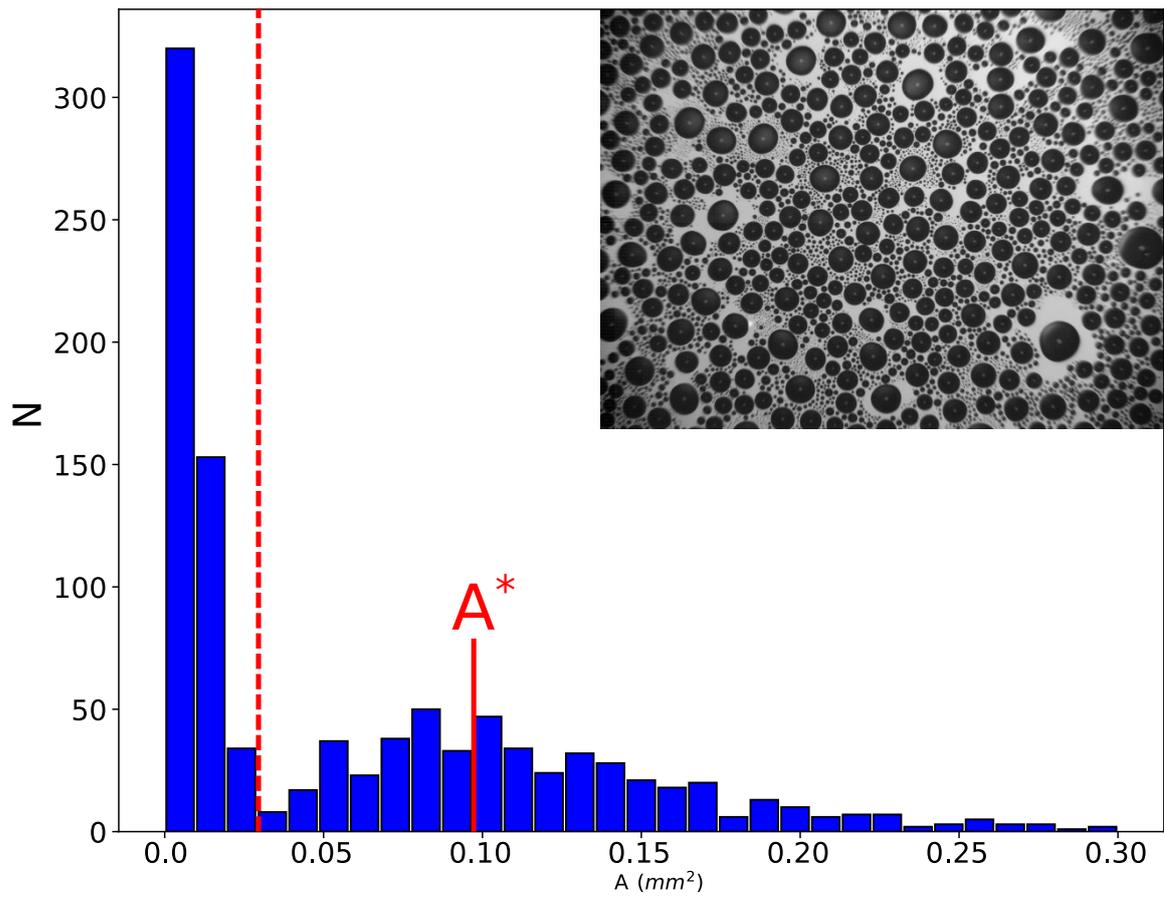


FIGURE 2.8 – Distribution de taille d'une figure de souffle.

2.1.6 Expérience typique.

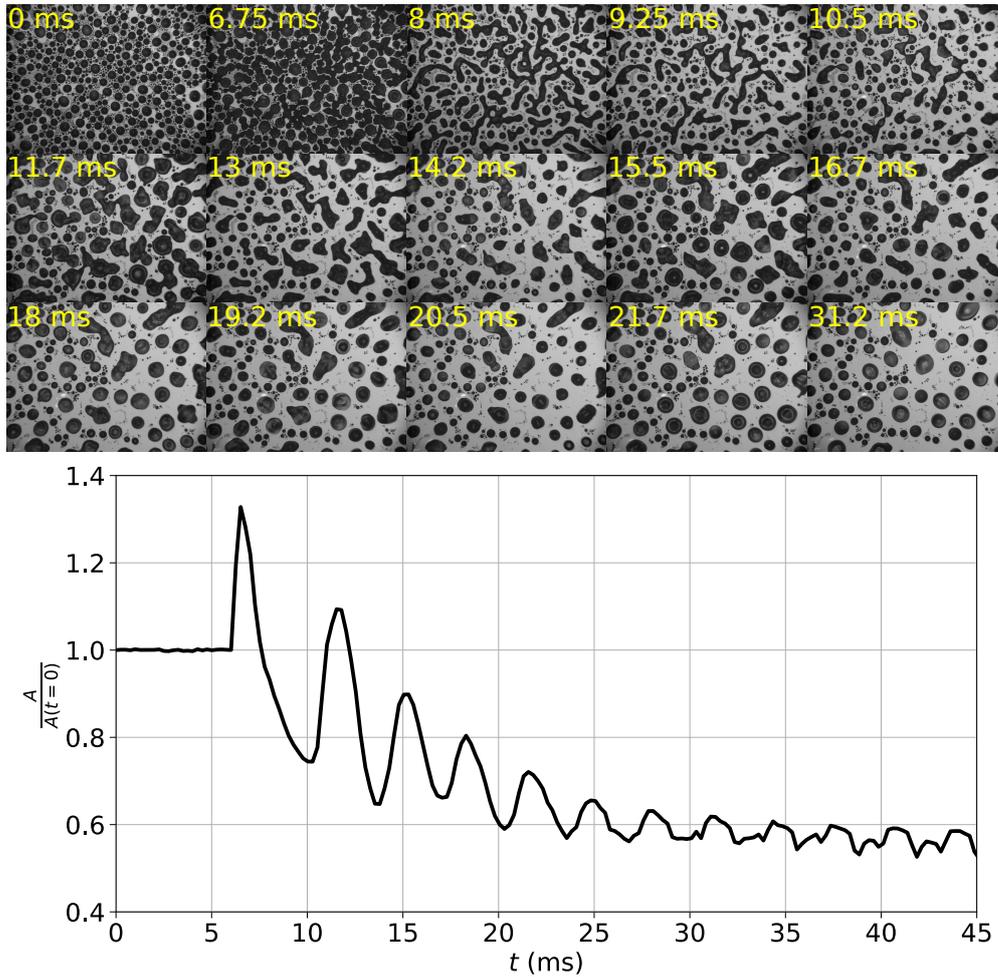


FIGURE 2.9 – Haut : séquence d’images d’une figure de souffle lors d’un impact. Bas : aire mouillée en fonction du temps associé.

La Figure 2.9 illustre une séquence d’images d’une expérience typique d’impact sur une figure de souffle. Cette Figure présente aussi l’évolution de l’aire mouillée totale au cours du temps correspondant aux images. On observe dans un premier temps la figure de souffle initiale formée par condensation. On réalise l’impact, le projectile déforme et fait vibrer le substrat. On observe que l’aire mouillée est d’abord constante avant l’impact. L’impact survient et l’aire augmente brusquement, puis diminue rapidement à une valeur inférieure à l’aire initiale. À partir de cet instant, l’aire oscille avec une amplitude décroissante à chaque oscillation jusqu’à atteindre une valeur finale inférieure.

L’image à $t = 0 \text{ ms}$ correspond à la figure de souffle initiale caractérisée par R_m . Les images à partir de $t = 6.75 \text{ ms}$ sont obtenues pendant l’impact. Les lignes de contact de la plupart des gouttelettes sont mises en mouvement et commencent à osciller. Les gouttes s’étalent et se rétractent comme cela a été décrit par Noblin *et al* [66]. Si les gouttes sont initialement proches les unes des autres, elles peuvent se toucher et coalescer pour finalement donner naissance à une seule goutte, plus grosse. Plusieurs gouttes peuvent coalescer en même temps. Par conséquent, au cours de cette première oscillation des gouttes, des

coalescences se produisent et forme des structures liquides. Cela correspond à la première variation de l'aire mouillée. Les structures liquides se rétractent vers une forme plus ou moins circulaire.

Sur les images à partir de $t = 11.7 \text{ ms}$, les nouvelles gouttes continuent à osciller, forcées par les oscillations libres du substrat. Cette vibration engendre de nouveaux événements de coalescence. Elles seront capables de toucher, dans un deuxième temps, d'autres gouttes. Cependant, si une goutte est trop éloignée des autres, son rayon oscille entre une valeur maximale et une valeur minimale jusqu'à ce que le substrat cesse de bouger. À la fin, nous obtenons moins de gouttes, mais plus grosses que les gouttes initiales et une surface mouillée totale finale plus petite.

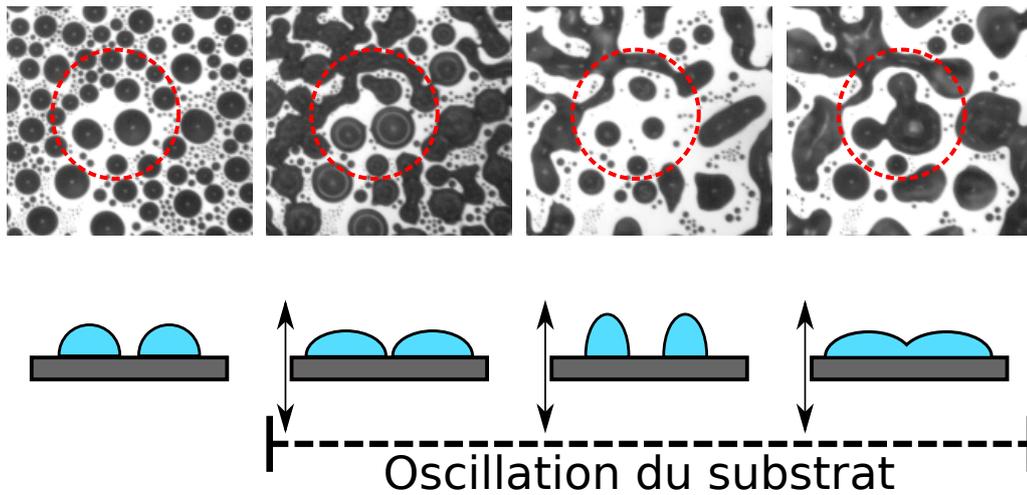


FIGURE 2.10 – Représentation et schématisation de la coalescence de goutte dans une figure de souffle lors d'un impact.

La Figure 2.10 illustre le cas où une goutte ne coalesce pas immédiatement, lors de l'impact. On observe la réponse de la goutte à une impulsion. Les gouttes s'étalent dans un premier temps. Si la distance entre elles est suffisamment petite alors elle coalescence. Si la distance est plus grande, elles ne se touchent pas (zones entourées en rouge). Elles se rétractent, puis s'étalent davantage permettant ainsi le contact et la coalescence entre elles.

La Figure 2.11 représente l'évolution du nombre de gouttes normalisé par le nombre de gouttes initial au cours du temps, correspondant à la Figure 2.9. Le nombre de gouttes est constant jusqu'à l'impact, puis diminue fortement lors de la coalescence (les gouttes sont interconnectées.), pour ensuite réaugmenter du fait de phénomènes de break-up. On observe une seconde diminution du nombre de gouttes lors de la seconde vague de coalescence. Enfin, le nombre de gouttes reste constant. La réduction du nombre de gouttes est quantifiée par un paramètre qu'on nommera $\%DNR$ (Droplet Number Reduction), tel qu'introduit dans [Betti *et al*, accepté à Phys. Rev. Fluids. (2022).] :

$$\%DNR = 100 * \left(1 - \frac{N_f}{N_i}\right) \quad (2.3)$$

où N_i et N_f sont respectivement le nombre initial et final de goutte. Ce paramètre donne une information sur le nombre d'événements de coalescence. Il représente l'efficacité d'un

impact à engendrer des coalescences sur l'exemple de la Figure 2.11, le % DNR est de 58%.

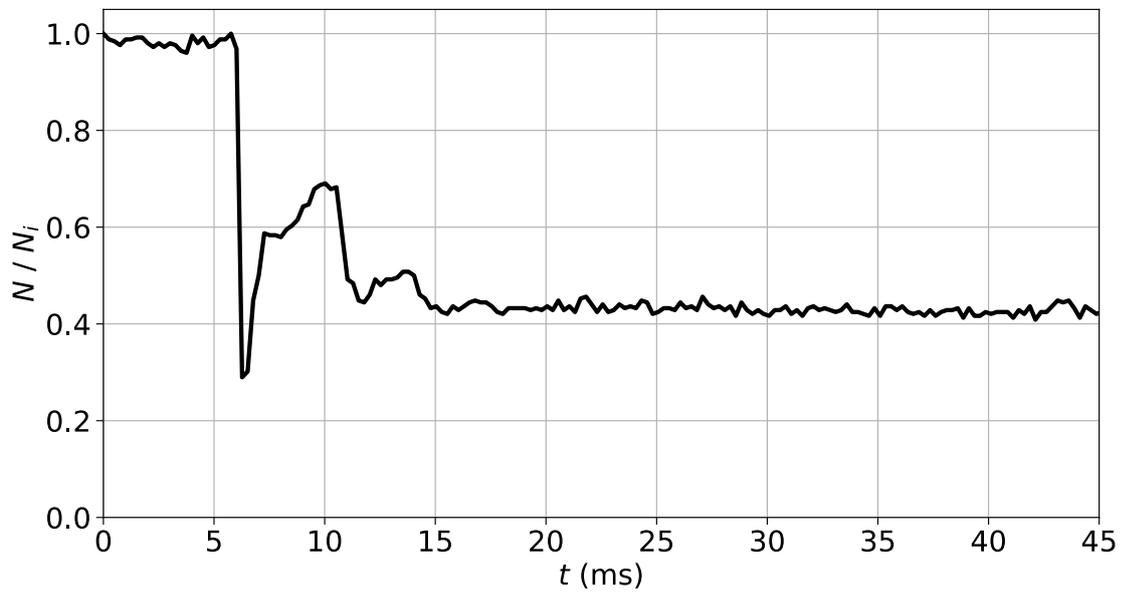


FIGURE 2.11 – Nombre de gouttes différentes présentes sur chaque image, normalisé par le nombre de gouttes initial. Données correspondant à l'expérience de la Figure 2.9.

On définit également la variation du rayon moyen avant et après impact, de la figure de souffle par :

$$\Delta R_m = (R_m - R_f) \quad (2.4)$$

avec R_m le rayon moyen initial et R_f le rayon moyen final.

2.2 Résultats.

2.2.1 Évolution naturelle de la figure de souffle avant impact.

La Figure 2.12 représente l'évolution de R_m au cours du temps pendant la condensation d'une eau maintenue à 65°C par un bain thermostaté (JULABO) placé sous la surface. On observe que le rayon augmente linéairement avec le temps de condensation. Cela nous donne ainsi une équivalence entre R_m et le temps de condensation. Cette évolution représente le degré de "maturation" de la figure de souffle. Lors de cette augmentation, la croissance est principalement dominée par les événements de coalescence, qui explique pourquoi $R_m \propto t$ en accord avec la littérature [10, 104].

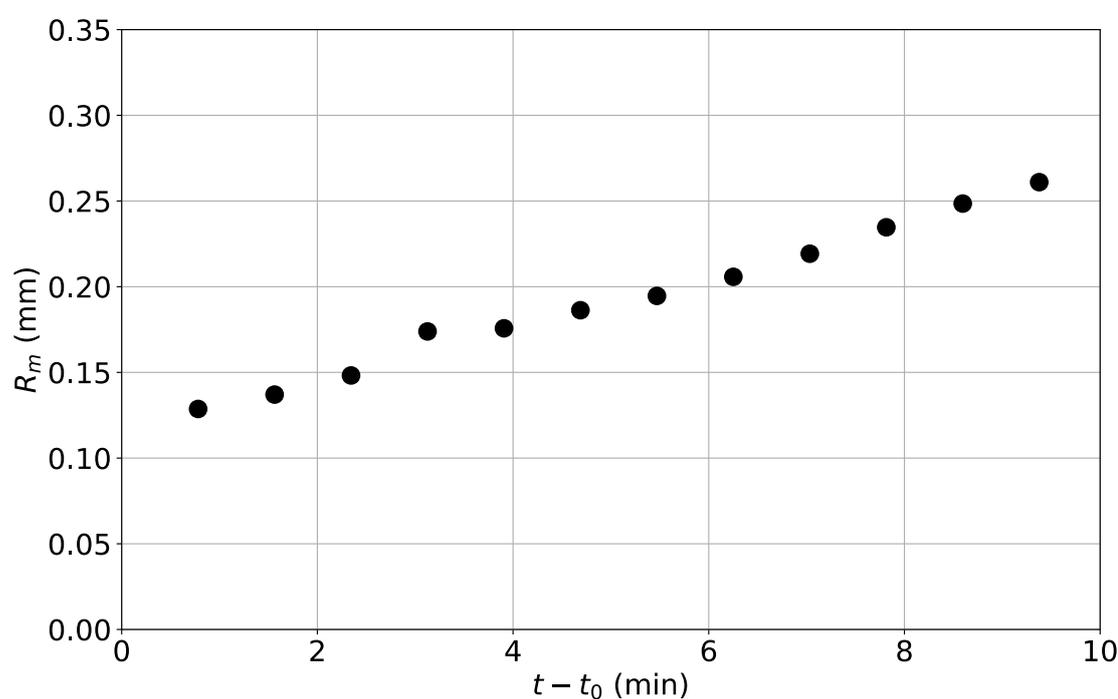


FIGURE 2.12 – Variation du rayon moyen R_m des gouttes pendant l'évolution naturelle par croissance et coalescence d'une figure de souffle.

2.2.2 Effet de l'accélération et du rayon moyen R_m sur le $\%DNR$.

Ici, on s'intéresse à l'influence de R_m et de l'accélération du substrat sur la réduction du nombre de gouttes $\%DNR$. En attendant un temps plus ou moins long de vieillissement d'une figure de souffle, cela permet de partir d'états de départ au moment de l'impact différents. Ainsi le rayon moyen R_m a pu être varié entre 0.1 et 0.35. La Figure 2.13 présente l'efficacité en fonction de R_m , pour cinq accélérations du substrat. Ces cinq valeurs d'accélération du substrat sont obtenues à une hauteur de chute fixée et trois positions d'observations sur la surface (carré de couleur) et en fixant la zone d'observation au centre pour deux hauteurs de chute différentes (symbole vide). Les valeurs de l'accélération sont reportées sur la Figure 2.13.

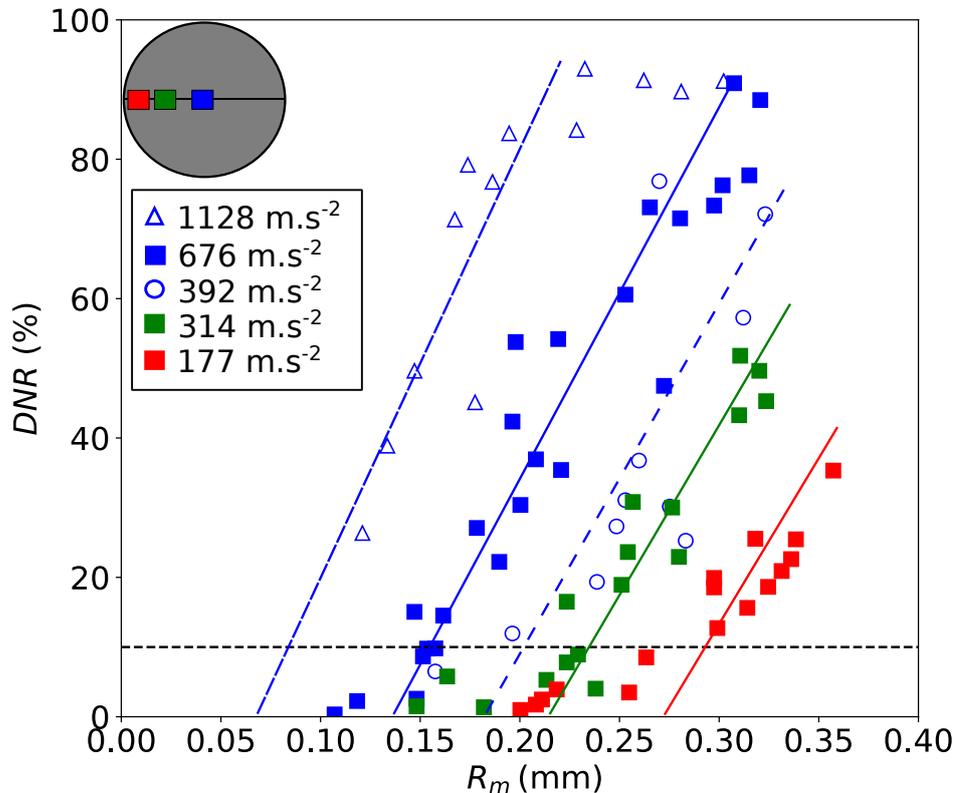


FIGURE 2.13 – Efficacité en fonction du rayon moyen initial de la figure de souffle pour différentes accélérations.

Nous pouvons voir que pour chaque cas, les courbes suivent la même tendance. On observe que la réduction du nombre de gouttes reste quasiment nulle lorsque R_m est inférieur à un rayon seuil. À partir de ce rayon seuil, on observe que le $\%DNR$ augmente et ce d'autant plus que le rayon initial est grand. On voit aussi que le rayon seuil est d'autant plus petit que l'accélération est grande. Plus précisément, plus l'accélération est faible, plus les gouttes doivent être grandes afin de pouvoir fusionner avec leurs voisines. Pour la plus grande accélération utilisée, le rayon seuil est déjà dépassé par les plus petites gouttes mesurées expérimentalement. On observe, en suivant les lignes droites qui sont des guides pour les yeux sur le graphique de la Figure 2.13 que le $\%DNR$ augmente linéairement avec le rayon moyen initial des gouttes. Les pentes augmentent très légèrement avec les accélérations croissantes, mais ont de valeurs assez proches. Le $\%DNR$ plafonne enfin à une valeur proche de 90% pour les plus grandes accélération dans notre gamme de R_m . Lorsque les gouttes sont trop grandes, pendant l'impact une partie peuvent se retrouver éjectée entièrement ou partiellement du substrat, c'est pourquoi nous avons choisi de ne pas dépasser 0.35 mm pour R_m .

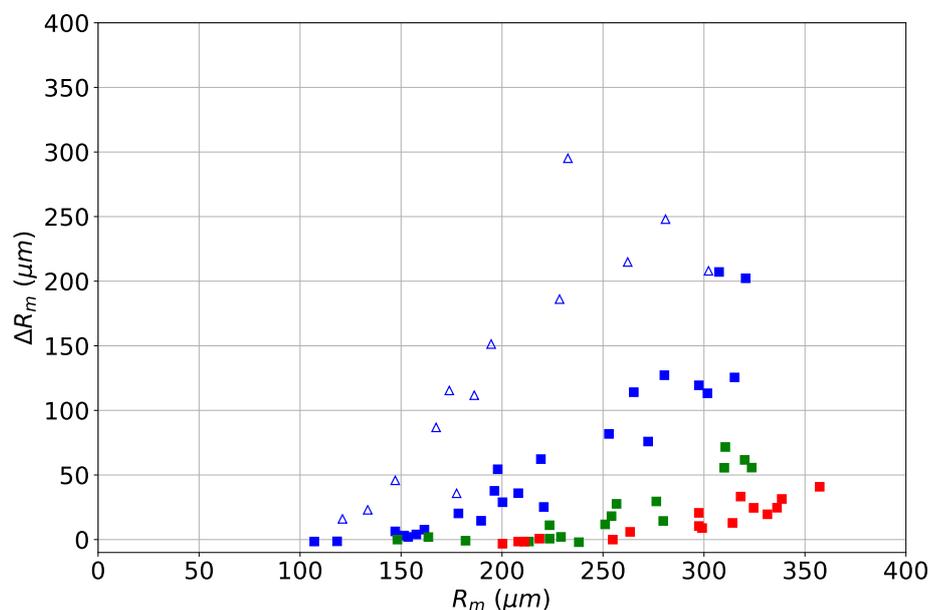


FIGURE 2.14 – Différences du rayon moyen avant et après impact en fonction du rayon moyen initial.

L'augmentation du rayon moyen ΔR_m induit par l'impact en fonction toujours de R_m est montré sur la Figure 2.14 pour les différentes accélérations. On observe que plus le rayon initial est grand, plus ΔR_m est grand. On retrouve également la présence d'un rayon seuil. Ce rayon seuil est légèrement différent de celui issu de la courbe de l'efficacité, il correspond à une efficacité de 10%. Passé cette valeur seuil, ΔR_m croit linéairement avec R_m .

On montre ainsi que dans un temps très court, il est possible d'augmenter la taille des gouttes. En effet, si on se réfère à la Figure 2.12 le temps de condensation nécessaire pour obtenir une augmentation de rayon comparable est de l'ordre de la minute. En moyenne, le temps de l'impact est de l'ordre de la milliseconde, ce qui donne un facteur de 10^4 à 10^5 plus rapide pour obtenir une augmentation similaire du rayon moyen.

2.2.3 Interprétation : Courbe maîtresse avec nombre de Bond effectif.

Nous avons étudié la dynamique d'une population de gouttes déposées soumises à des vibrations produites par un impact. Ces vibrations se caractérisent par des accélérations parfois très grandes devant l'accélération de la pesanteur g . Nous avons observé que l'efficacité d'un impact à engendrer des coalescences dépend à la fois de l'accélération du substrat et de la taille caractéristique des gouttes qui compose la figure de souffle. Pour que la goutte oscille, il faut que la ligne de contact se dépiège et se mette en mouvement. La goutte doit donc atteindre l'angle d'avancée. Il a été montré en effet dans la littérature qu'il existe un seuil en accélération pour que la ligne de contact puisse se mettre en mouvement [64, 66]. De plus, si l'accélération est suffisamment grande par rapport à la tension superficielle, alors la goutte peut se déformer et s'étaler. Nous analysons donc l'efficacité

d'un impact en termes de nombre de Bond β . Ce nombre sans dimension, sous sa forme traditionnelle, compare la force de gravité (le poids) avec la force de tension superficielle. Il est défini comme : $\beta = \rho g L^2 / \gamma$ avec L la dimension caractéristique du système, ρ la masse volumique et g l'accélération de pesanteur. Dans notre cas, la force qui tend à étaler une goutte est de manière dominante au moment de l'impact l'accélération transitoire qu'il subit. On a donc choisi de définir un nombre de Bond effectif β^* en remplaçant l'accélération de pesanteur par l'accélération du substrat tel que :

$$\beta^* = \frac{\Delta \rho a_c R_m^2}{\gamma} \quad (2.5)$$

où $\Delta \rho = 997 \text{ kg.m}^3$ est la différence de densité entre les deux phases (liquides et gaz), a_c est l'accélération locale du substrat, $\gamma = 72.10^{-3} \text{ N.m}^{-1}$ la tension de surface et R_m est le rayon moyen de la figure de souffle. La Figure 2.15 présente l'efficacité en fonction du nombre de Bond effectif β^* . On observe une superposition de toutes les courbes autour d'une courbe maîtresse. Cette façon de tracer met en lumière le caractère universel de ce phénomène et que ce paramètre semble être un bon paramètre de contrôle. β^* à l'avantage de relier nos deux variables étroitement liées à savoir, l'accélération et la dimension caractéristique des figures de souffle.

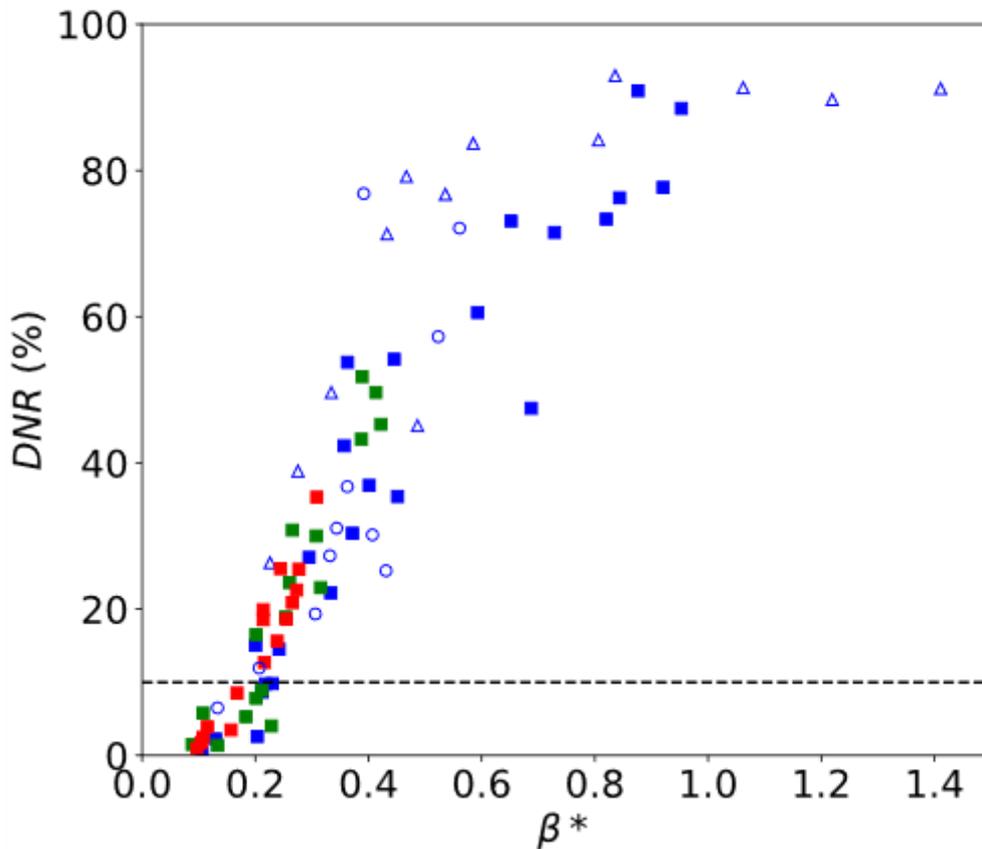


FIGURE 2.15 – Efficacité en fonction du nombre de Bond effectif.

2.2.4 Patterns de coalescence.

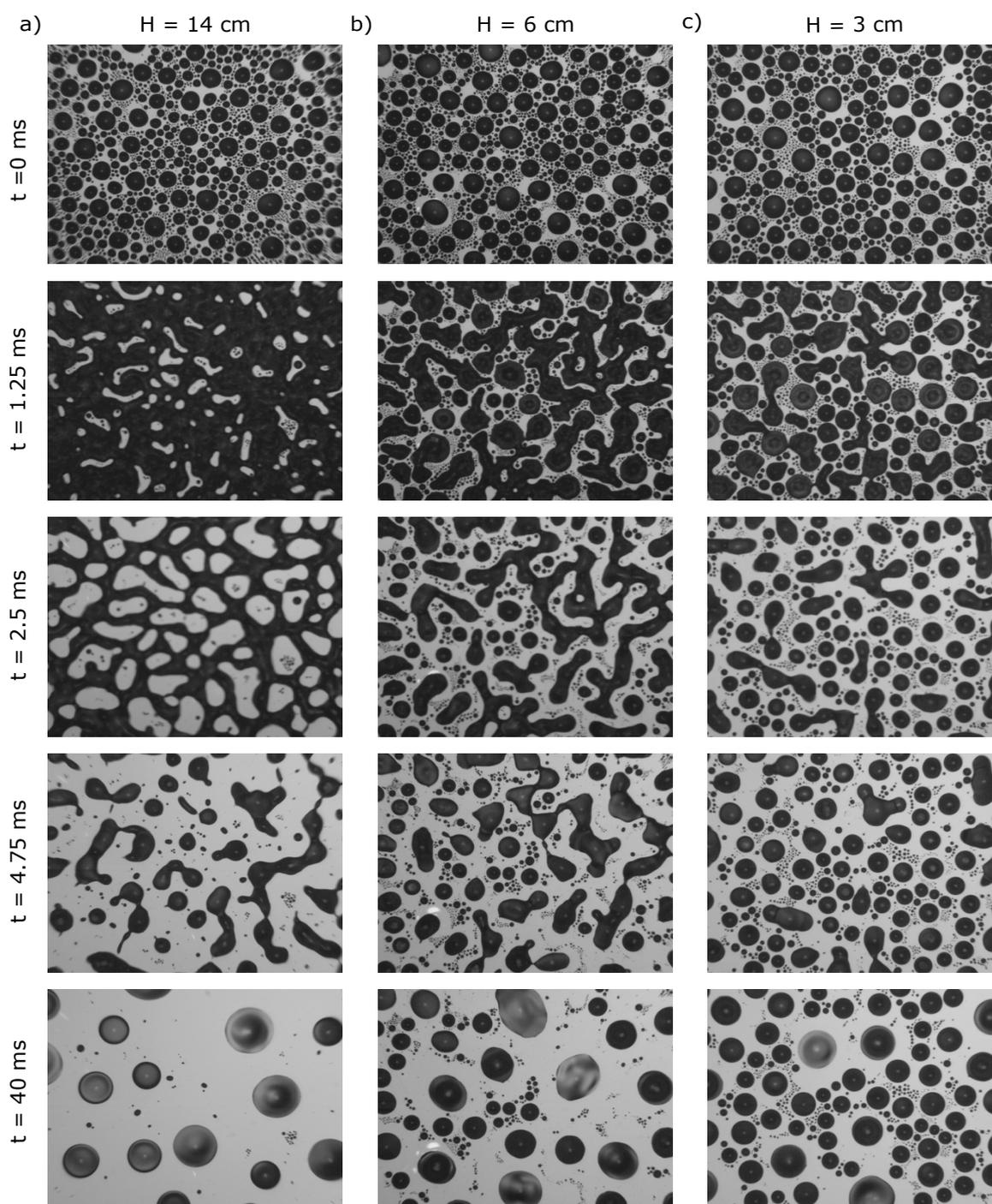


FIGURE 2.16 – Patterns de coalescence d’une figure de souffle à différents temps (lignes) et différentes accélérations (colonnes).

Lors des impacts, les événements de coalescence marquent un moment clé de la transition entre les états initiaux et finaux de la figure de souffle. La figure de souffle passe d’un état composé de gouttes circulaires, à un état final similaire, mais avec des gouttes plus

grandes et moins nombreuses via un état transitoire. Trois types d'évolutions sont observés selon l'amplitude de l'impact. La Figure 2.16 illustre trois séquences d'images d'impact sur une figure de souffle. Chaque séquence correspond à une accélération différente du substrat.

- Dans le cas (a) ou l'accélération et les gouttes sont grandes (cas extrêmes), la totalité des gouttes se retrouvent connectées les unes aux autres et forment un film de liquide sur la zone d'observation percé en quelques endroits par des zones sèches. Ce film va ensuite démouiller rapidement et se fragmenter. Lors de la fragmentation de nouvelles "gouttes" vont se former. Celles-ci vont ensuite osciller par les mouvements du substrat et engendrer ou non de nouvelles coalescences. À la fin, chaque goutte va tendre à retrouver une forme quasi-circulaire et s'immobiliser.
- Le second cas (b) est celui le plus souvent rencontré. Ici, lors de l'impact, les gouttes se retrouvent liées à un grand nombre de gouttes, mais sans former de film. Dans ce cas, on voit plutôt apparaître la formation de "réseaux" liquides qui vont se rétracter et se fragmenter partiellement en gouttes. Celles-ci vont osciller avant de retrouver un forme quasi-circulaire.
- Le dernier cas (c) correspond à une accélération faible ou une taille de goutte petite. Ici lors de l'impact les gouttes ne vont se retrouver liées qu'à quelques gouttes voisines seulement qui coalescent (indépendamment) avant de retrouver une forme quasi-circulaire.

2.2.5 Analyse en terme morphologiques.

Il est intéressant de voir que ces motifs sont similaires à ceux observés au cours du démouillage spinodale [107–109] ou encore dans des phénomènes de coarsening [110, 111]. Pour quantifier ces différents états de transition, nous avons analysé les motifs de coalescence à l'aide de fonction d'analyse morphologique, les fonctions de Minkowski. Ces fonctions sont souvent utilisées dans l'analyse des patterns de démouillage de film fin [109, 112]. Elles ont la particularité de très bien décrire la structure spatiale d'un pattern et ses évolutions temporelles.

À deux dimensions, les fonctions de Minkowski sont :

- L'aire recouverte, F .
- Le périmètre total, U .
- La caractéristique d'Euler à 2D, χ , qui est une mesure de la connectivité de la structure.

Nous avons choisi de différencier les régimes à l'aide du paramètre sans dimensions ζ avec U_0 , F_0 l'aire et le périmètre à l'état initial et U_t , F_t l'aire et le périmètre pendant une transition. ζ représente le rapport entre deux longueurs caractéristiques tel que :

$$\zeta = \frac{U_0 F_t}{F_0 U_t} \quad (2.6)$$

Une valeur de ζ proche de 0 signifie que la figure de souffle tend vers un état de film liquide. Au contraire, une valeur proche de 1 représente l'état de coalescence isolé les unes des autres, et la figure de souffle est très peu modifiée. Sur la Figure 2.17 l'efficacité est

tracée en fonction du nombre de Bond effectif avec en plus un code couleur fonction de la valeur de ζ . On observe bien que plus β^* est grand, plus ζ est petit. Ce qui correspond bien au scénario décrit.

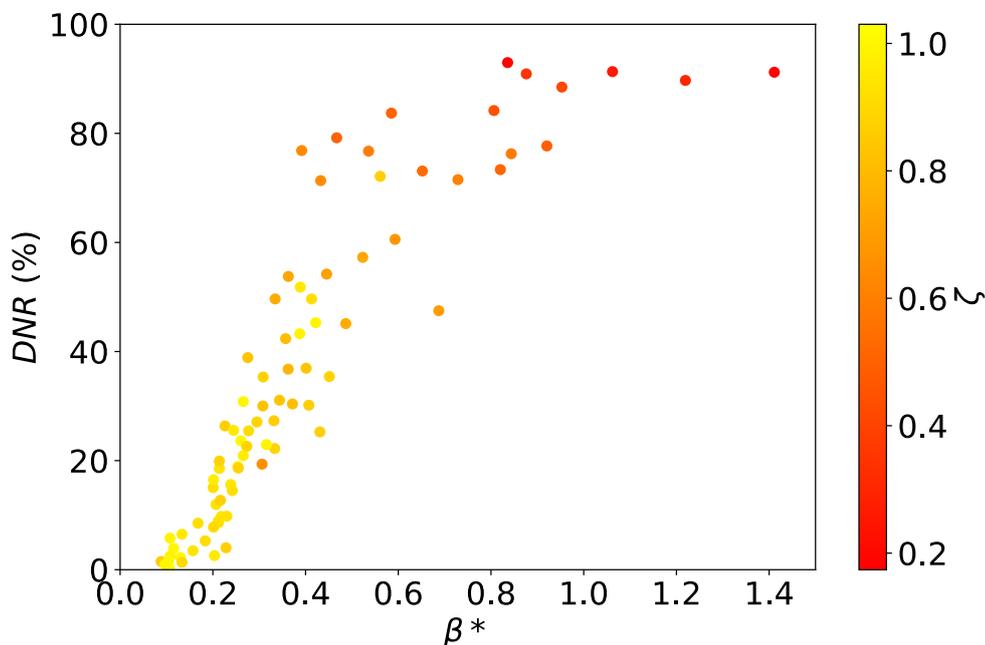


FIGURE 2.17 – Efficacité en fonction du nombre de Bond et du nombre ζ .

2.2.6 Influence de la chimie de surface.

Nous avons modifié les propriétés de mouillage du substrat. Pour ce faire, nous avons gardé le même type de support en polycarbonate sur lequel une fine couche de PDMS de quelques microns est déposée par spin-coating. Le dépôt est réalisé avec un mélange classique de ratio 10 : 1, à 3000 *rpm* puis cuit à 60°C pendant plusieurs heures afin de ne pas endommager le support. La couche ayant une masse et une épaisseur négligeable devant celle de la plaque, elle n'influence donc pas la réponse mécanique de la plaque lors de l'impact.

Les mesures ont été réalisées avec le même protocole décrit dans la section 2.1.2, par deux stagiaires de Licence sous notre supervision. La hauteur de chute est fixée à $H = 6\text{cm}$ et l'observation se fait dans la zone centrale. L'accélération est donc de 676m.s^{-2} . La Figure 2.18 illustre la comparaison en termes d'efficacité entre les deux types de substrats. On observe que pour une même accélération, et même rayon moyen, le %DNR est bien plus grand sur le PDMS que sur le polycarbonate. On observe également que le rayon seuil est inférieur sur le PDMS par rapport au polycarbonate. Les modifications des propriétés de mouillage influent de manière notable sur l'efficacité. Il semble que plus l'angle de contact est grand plus l'efficacité est augmentée. En effet, les angles de contact mesurés sur le PDMS sont de : $\theta_a = 107 \pm 2^\circ$, $\theta_r = 91 \pm 2^\circ$ et $\Delta\theta = 16 \pm 2^\circ$

La Figure 2.19 illustre une séquence d'images typiques du pattern de coalescence sur le PDMS pour une valeur du %DNR maximal. On remarque que sur le PDMS, on arrive à obtenir transitoirement un film de liquide. On observe également une multitude d'ondes

capillaires qui parcourent le film.

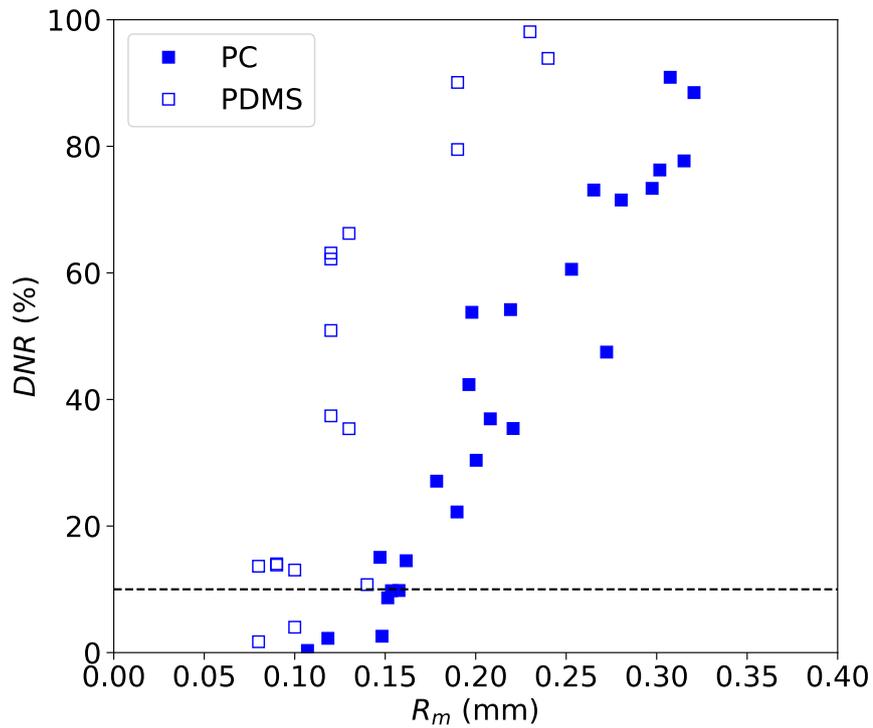


FIGURE 2.18 – Comparaison de l'évolution du % DNR en fonction du rayon moyen initial à accélération identique pour deux chimies de surface différentes : Polycarbonate (PC) et PolyDiMéthylsiloxane réticulé (PDMS).

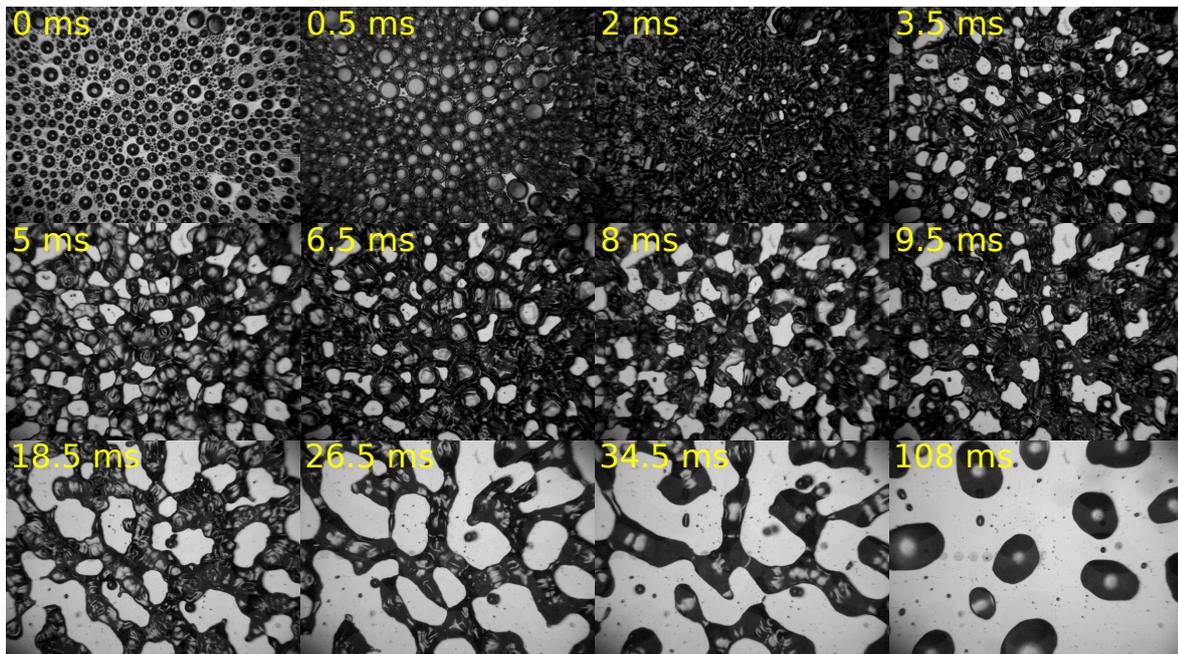


FIGURE 2.19 – Séquence d'images de la coalescence d'une figure de souffle sur une surface de PDMS à grand DNR .

2.2.7 Discussion du seuil en rayon de gouttes.

Pour chaque accélération des expériences sur le polycarbonate (voir Figure 2.14), on récupère la valeur du rayon seuil. La Figure 2.20 montre la dépendance de ce rayon en fonction de l'accélération a_c . On remarque que cette dépendance n'est pas linéaire, mais plutôt en loi de puissance. En effet, on trouve que le rayon seuil diminue comme $R \propto a^{-0.53}$. On retrouve cette dépendance en $a^{-1/2}$ avec une analyse dimensionnelle si on considère qu'une goutte peut s'étaler lorsque l'énergie de gravité de celle-ci est supérieure à l'énergie de surface. Cette dépendance correspond ainsi à la courbe noire continue qui représente la valeur du rayon théorique lorsque $\beta^* = 1$ en fonction de l'accélération. Cependant, ce cas simpliste est incomplet, car il ne prend pas en compte l'hystérésis. En effet, comme on a pu le voir, les propriétés de mouillage de la surface ont un effet direct sur le rayon seuil (Figure 2.19), lors des mesures sur la surface en PDMS.

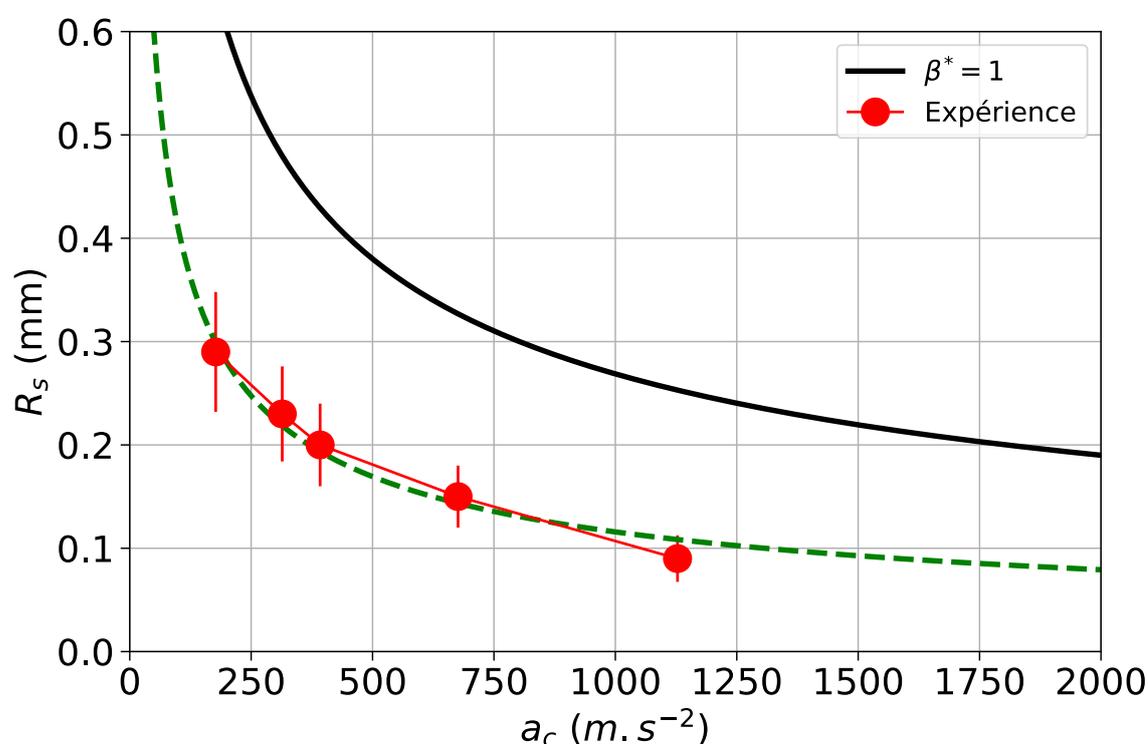


FIGURE 2.20 – Rayon seuil en fonction de l'accélération. La courbe noire représentent le rayon seuil théorique.

En effet, Noblin *et al* [66]- [64] ont montré que pour une fréquence donnée, il existe une accélération minimale nécessaire pour mettre la ligne de contact en mouvement qui dépend de l'hystérésis. De plus, ils ont montré que les vibrations maximales des gouttes sont obtenues lorsque la fréquence de vibration du substrat est proche de la fréquence propre de la goutte qui dépend de sa taille. Dans notre cas, il existe une large gamme de fréquences qui permet d'induire un mouvement suffisant de gouttes de différentes tailles grâce à l'impact.

On note que les valeurs de R_s sont inférieure a la courbe $\beta^* = 1$. Le rayon seuil extrait des mesures expérimentales est un rayon moyen. Dans la figure de souffle, lorsque l'effi-

cacité n'est pas grande, seul un certain nombre de gouttes se mettent en mouvement. Il s'agit des gouttes les plus grandes, c'est pourquoi la valeur de R_s présente est sous-estimée.

Pour explorer plus précisément les effets au niveau de 2 gouttes et non d'une assemblée, nous avons décidé de réaliser des expériences sur 1 et 2 gouttes, c'est l'objet du chapitre suivant. En attendant, nous avons réalisé à l'échelle globale des simulations numériques du phénomène pour N gouttes. Nous présentons maintenant cette approche.

2.3 Simulation numérique.

2.3.1 Méthode.

Il est possible de simuler numériquement les résultats expérimentaux. Nous avons réalisé des simulations numériques afin de comprendre et de reproduire l'allure des courbes de la Figure 2.15. Il s'agit en particulier de connaître les ingrédients minimaux à insérer dans un modèle pour expliquer quantitativement ce qui est observé expérimentalement. Pour cela, on se base sur les figures de souffle expérimentales. On récupère, les aires A_i ainsi que la position du centre de masse de la totalité des gouttes visibles (X_i, Y_i) . Chaque goutte est considérée hémisphérique avec un angle de contact de 90° afin de simplifier les calculs. Cette hypothèse n'est pas totalement éloignée de la réalité, car les gouttes sont proches de l'angle d'avancée $\theta_a \sim 86^\circ$. Dans ce cas, le volume de chaque goutte est : $V_i = \frac{2}{3}\pi r_i^3$, avec r_i le rayon de la goutte indice i .

Dans les expériences, l'impact se traduit comme nous l'avons vu par une augmentation transitoire de l'aire de contact des gouttes et donc de leurs rayons. Dans la simulation, cela se traduit par une augmentation du rayon des gouttes, d'un facteur δ au moment de l'impact t_{impact} . En première approximation, nous considérons que la dépendance entre δ et β^* est linéaire en l'absence d'hystérésis ou bien non-linéaire en prenant en compte l'hystérésis (voir Figure 2.21) telle que :

$$\begin{cases} \delta = 0 & \text{si } \beta^* < \beta_c^* \\ \delta = \alpha(\beta^* - \beta_c^*) & \text{si } \beta^* \geq \beta_c^* \end{cases}$$

avec α un coefficient ajustable et β_c^* un nombre de Bond effectif critique. En d'autres termes, l'hystérésis se traduit par le fait que les gouttes restent immobiles jusqu'à une valeur β_c^* .

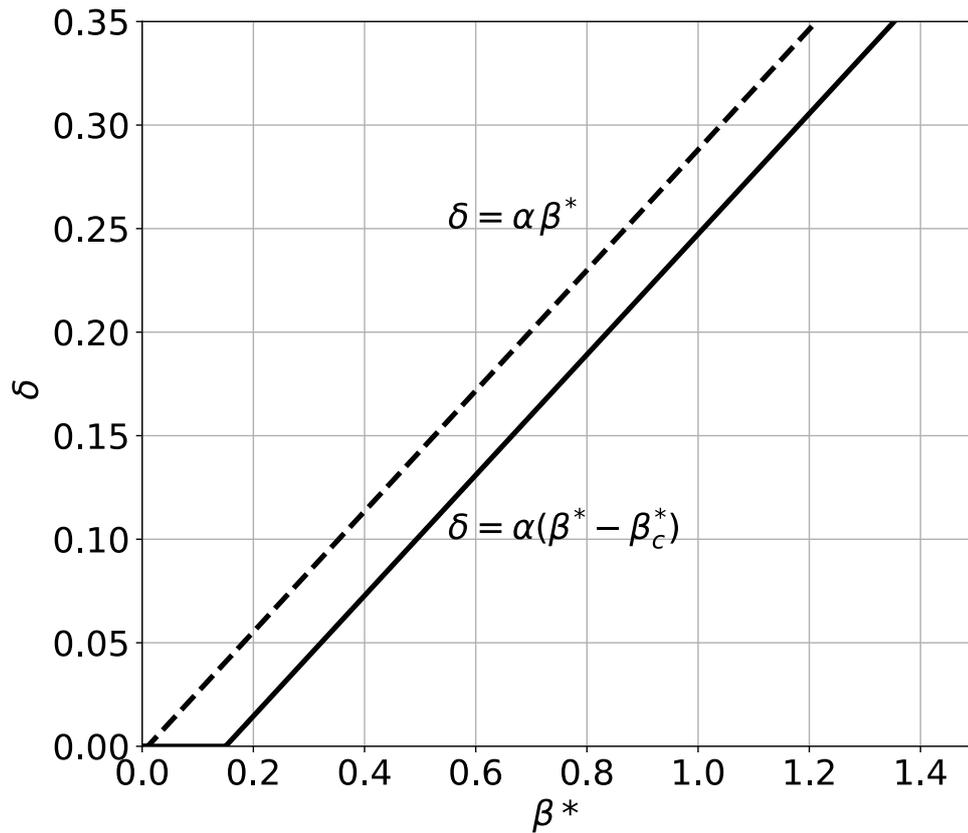


FIGURE 2.21 – Relation entre δ et β^* dans le cas avec et sans hystérésis de l'angle de contact.

L'évolution du rayon est définie par :

$$\begin{cases} r(t) = r(t=0) & \text{si } t < t_{\text{impact}} \\ r(t) = r\delta(\beta^*)\cos(\omega(t - t_{\text{impact}}))e^{-(t-t_{\text{impact}})/\tau} & \text{si } t \geq t_{\text{impact}} \end{cases}$$

La distance entre les gouttes est calculée à partir des coordonnées (X_i, Y_i) par $d = \sqrt{(X_2 - X_1)^2 + (Y_2 - Y_1)^2}$. Afin de réduire le temps de calcul, on utilise les propriétés du diagramme de Voronoi [113]. Celui-ci permet de délimiter et de retrouver les plus proches voisins de chaque goutte et de calculer la distance d entre eux. En rajoutant une condition pour qu'une distance ne soit pas calculée deux fois, on diminue grandement le temps de calcul. La condition de coalescence entre deux gouttes est obtenue lorsqu'elles se touchent ou se chevauche, cela se traduit par la condition suivante :

$$d \leq r_1 + r_2 \quad (2.7)$$

Si la condition est vérifiée, les gouttes mères 1 et 2 sont éliminées et une nouvelle goutte fille apparaît. Le volume et les nouvelles coordonnées de la goutte fille sont :

$$V = V_1 + V_2 \quad (2.8)$$

$$X = \frac{X_1\rho V_1 + X_2\rho V_2}{V_1 + V_2} \quad (2.9)$$

$$Y = \frac{Y_1 \rho V_1 + Y_2 \rho V_2}{V_1 + V_2} \quad (2.10)$$

Ce calcul est ensuite généralisé pour prendre en compte le cas où n gouttes sont en contact par :

$$X = \rho \frac{\sum X_n V_n}{\sum V_n} \quad (2.11)$$

$$Y = \rho \frac{\sum Y_n V_n}{\sum V_n} \quad (2.12)$$

2.3.2 Résultats.

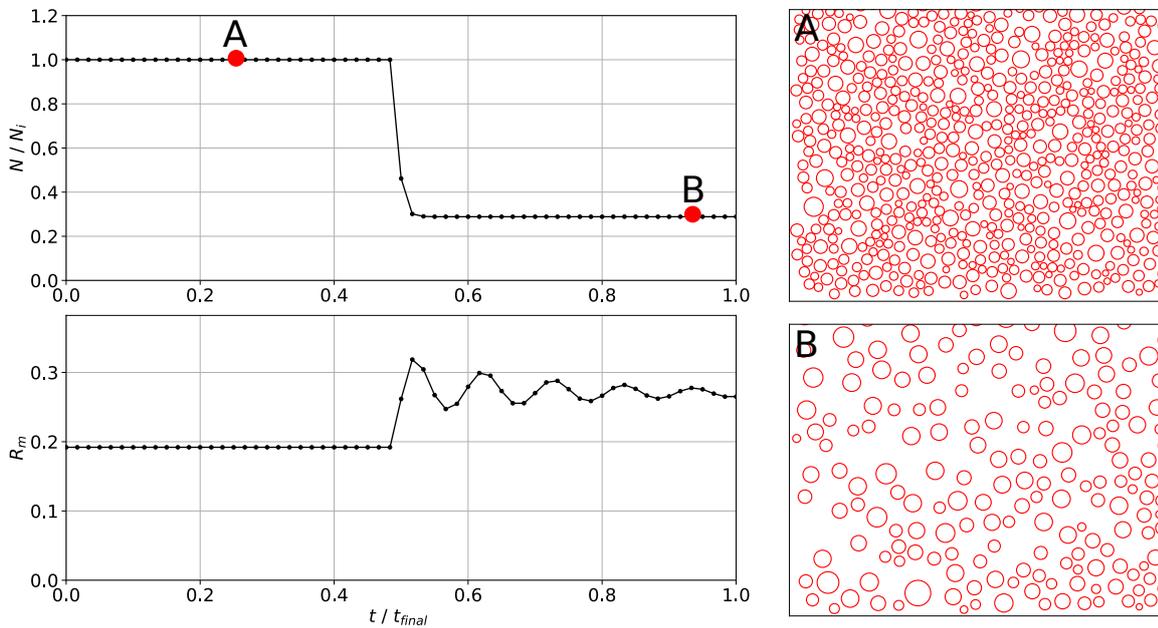


FIGURE 2.22 – Haut gauche : Evolution du nombre de gouttes sur le nombre initial en fonction du temps. Bas gauche : Evolution du rayon moyen des gouttes. Droite : image des gouttes au point A et B.

La Figure 2.22 illustre un exemple de simulation d'impact. Sur la figure A, on voit la figure de souffle numérique dans l'état initial et B dans l'état final après impact. Sur la figure, est représentée l'évolution du nombre de gouttes normalisé ainsi que la valeur du rayon moyen en fonction du temps normalisé t/t_{impact} . En faisant varier δ , nous avons pu explorer les différentes situations rencontrées expérimentalement lorsque l'on faisait varier l'accélération à l'impact. Le domaine de variation de δ est estimé à partir de la variation du rayon des gouttes au moment de l'impact dans nos expériences. Nous avons donc décidé de faire varier ce paramètre delta entre 0 et 0.35 Grâce à la relation entre δ et β^* on peut ainsi venir simuler l'influence de l'accélération sur la coalescence. La Figure 2.23 présente l'évolution du DNR en fonction de β^* . Les pointillés représentent le cas sans hystérésis. Comme on s'y attend, il n'y a pas de seuil observé, dès les plus petits rayons, un $\%DNR$

non nul est observé. La courbe augmente avec une pente très proche des expériences avant de saturer lentement. On observe, en tenant compte de l'hystérésis de l'angle de contact un meilleur accord encore entre les simulations et les mesures expérimentales. Cette fois-ci, le seuil est bien pris en compte. On observe un meilleur accord entre les simulations et les mesures.

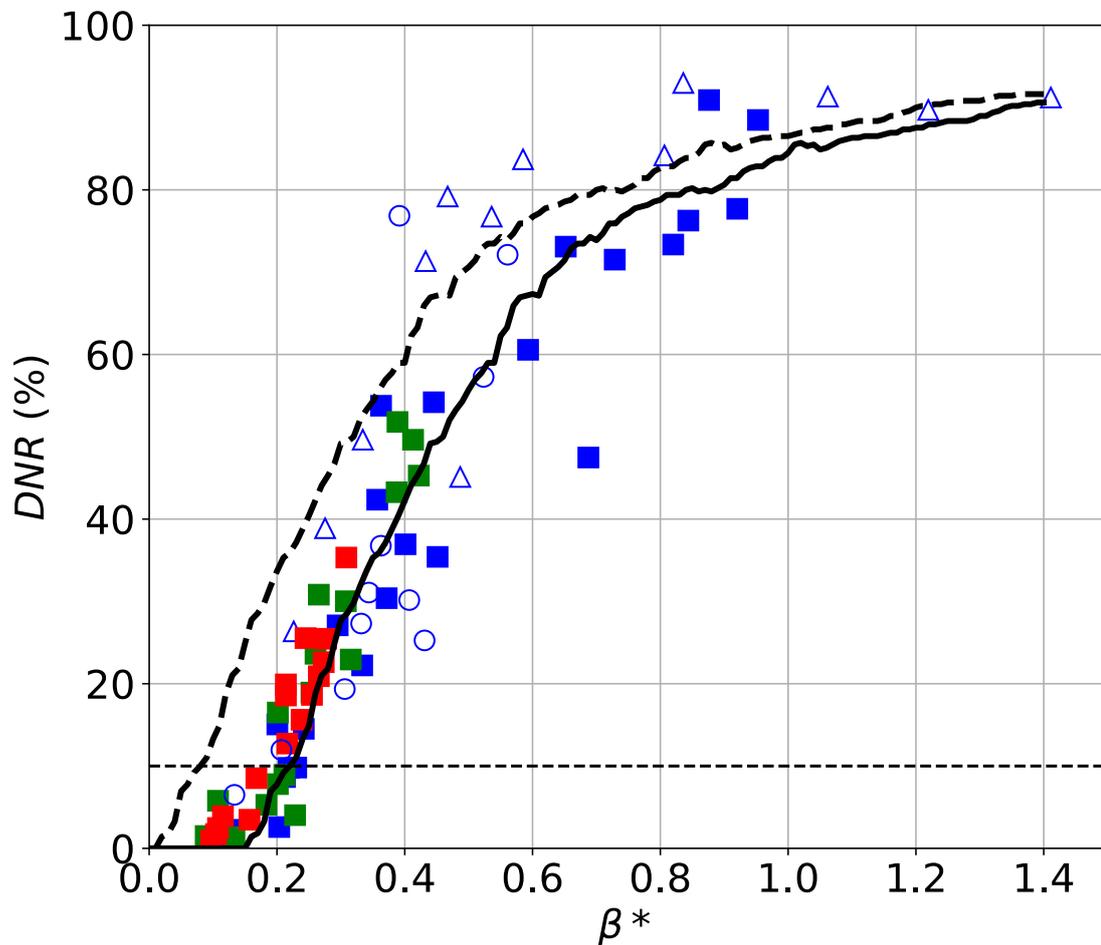


FIGURE 2.23 – Comparaison entre les expériences et les simulations pour le DNR. La courbe continue en noir prend en compte l'hystérésis et la courbe en pointillés non.

2.4 Conclusions et Perspectives.

Dans ce chapitre, nous avons étudié l'effet des vibrations verticales induites par l'impact d'un projectile solide sur la population de gouttes qui compose une figure de souffle. On a observé que l'impact peut engendrer la coalescence d'un grand nombre de gouttes dans un temps extrêmement court. L'impact permet ainsi de réduire le nombre de gouttes, de diminuer la surface mouillée et d'obtenir des gouttes plus grosses ce qui s'avère très utile pour des applications où l'on cherche à retrouver la transparence de la surface ou encore à récupérer l'eau. Nous avons montré que ce phénomène est régi par la mise en mouvement de la ligne de contact grâce aux vibrations du substrat.

En faisant varier l'accélération du substrat et la taille moyenne des gouttes initiales, nous avons défini l'efficacité du phénomène en termes de réduction du nombre de gouttes total ($\%DNR$). Nous avons ainsi montré que l'efficacité commence à augmenter avec la taille moyenne des gouttes à partir d'une taille minimale de gouttes. Cette taille seuil décroît lorsque l'accélération augmente. De plus, pour une taille donnée, l'efficacité augmente avec l'accélération. En définissant un nombre de Bond effectif β^* , calculé avec l'accélération maximale du substrat, nous avons montré le caractère universel du phénomène, car les différentes courbes se retrouvent sur une courbe maîtresse.

Par ailleurs, nous avons proposé une simulation de ce phénomène en considérant seulement l'étalement maximal des gouttes lors de l'impact. Ces simulations qui sont fondées sur des arguments simples, sont en très bon accord avec nos résultats expérimentaux.

Nous avons également mis en évidence un effet notable des propriétés de mouillage sur la réduction du nombre de gouttes en comparant les résultats obtenus pour deux surfaces de nature chimique différente. Enfin, la figure de souffle passe par différents états transitoires sous la forme d'un réseau liquide plus ou moins percolé ou de simples coalescences isolées suivant le nombre de Bond effectif. Cette « transition de percolation dynamique » n'a pas été précisément étudiée dans le cadre de cette thèse mais présente un intérêt fondamental.

En perspective de ce travail, il serait intéressant d'étudier plus en détail l'influence des propriétés de mouillage et en particulier le rôle de l'hystérésis sur ce phénomène. Des résultats préliminaires réalisés dans le cadre d'un stage de M1 qui sont présentés en annexe A, mettent en évidence un rayon d'étalement maximal de la goutte plus petit lorsque celle-ci est initialement proche de son angle de reculée par rapport à l'étalement maximal lorsqu'elle forme un angle plutôt proche de l'angle d'avancée. De plus, il serait intéressant d'étudier l'influence de la déformabilité du substrat sur ce phénomène en utilisant par exemple des membranes élastiques de PDMS tendues permettant ainsi de jouer sur les vibrations du substrat en faisant varier le module élastique, l'épaisseur ou bien la tension de la membrane. Enfin, il serait intéressant de quantifier l'intérêt de ce phénomène pour la récupération de la rosée pour développer un dispositif d'intérêt sur le plan écologique et industriel.

Vibration et Coalescence

Dans le chapitre précédent nous avons étudié comment les vibrations générées par l'impact d'un projectile peuvent engendrer un grand nombre de coalescences dans une figure de souffle. Nous avons montré que l'efficacité de l'impact dépend de l'accélération du substrat et de la taille des gouttes. Pour encore mieux comprendre ce phénomène, un nouveau dispositif expérimental a été mis en place afin de contrôler les vibrations des gouttes et d'isoler le cas de deux gouttes individuelles. Dans ce chapitre, nous décrivons la coalescence entre deux gouttes vibrées en fonction de la distance qui les séparent, de leur taille, des paramètres de vibration et enfin des propriétés de mouillage de la surface. En particulier, nous avons établi un diagramme d'état des événements de coalescences et de non-coalescences qui met en évidence une zone de coexistence de ces deux régimes pour toute une gamme d'amplitudes, de tailles de goutte et de nature du substrat. La dynamique de la coalescence a également été étudiée en fonction de ces paramètres.

3.1 Dispositif expérimental.

3.1.1 Surfaces étudiées.

Pour étudier l'influence des propriétés de mouillage, nous avons utilisé trois substrats de nature différentes. Chaque substrat a la forme d'une petite plaque circulaire de diamètre $\varnothing = 50mm$. Une plaque de polycarbonate identique au chapitre précédent, et deux wafers de silium recouvert respectivement d'un film de PDMS et de Teflon. La surface en PDMS est réalisée à l'aide d'un mélange classique de Sylgard 184 de ratio 10 : 1 déposé au spincoater à 3000 *rpm* pendant 40s puis cuit à 70°C pendant $\sim 210 min$. La surface en Teflon est réalisée en spincoatant un mélange de Teflon AF1600 et de solvant Fluorinert FC-75 de ratio 1 : 2, à 1500 *rpm* pendant 40 s. Les angles d'avancée et de reculée pour les systèmes Eau/PC, Eau/PDMS et Eau/Teflon sont mesurés en vue de coté et reportés dans le Tableau 3.1 avec la méthode décrite dans le chapitre précédent.

Substrat	Angles de contact		
	θ_a	θ_r	$\Delta\theta$
PC	88 ± 2	60 ± 2	28 ± 4
PDMS	107 ± 2	91 ± 2	16 ± 2
Teflon	121 ± 2	109 ± 2	12 ± 4

TABLE 3.1 – Angles d’avancée et de reculée et hystérésis pour une goutte d’eau déposée sur les trois substrats (PC / PDMS / Teflon).

3.1.2 Génération des vibrations.

Le dispositif expérimental mis en place est schématisé sur la Figure 3.1. Pour générer les vibrations, on utilise un pot-vibrant LDS V201 (Bruel & Kjaer) sur lequel est fixé le substrat à l’aide d’une vis collée sous celui-ci et vissée sur l’axe mobile du pot. Le pot-vibrant est connecté à un amplificateur (NF HSA 4011) qui permet un meilleur contrôle du gain du signal. Le signal est transmis à l’amplificateur via un générateur de fonctions digital (Tektronix AFG 31000 Séries), puis de l’amplificateur vers le pot-vibrant. Un oscilloscope est connecté en sortie du générateur et du pot-vibrant afin de vérifier le signal envoyé. L’éclairage est réalisé par une fibre optique (Edmundoptics) fixée verticalement au dessus du substrat. Le faisceau lumineux est collimaté par une lentille, puis rendu homogène par un diffuseur avant de traverser une lame semi-réfléchissante maintenue à 45° . L’observation se fait via une caméra rapide montée d’un objectif 18-108 mm et positionnée perpendiculairement au faisceau lumineux grâce à la lame semi-réfléchissante. Elle offre une vue du dessus des gouttes.

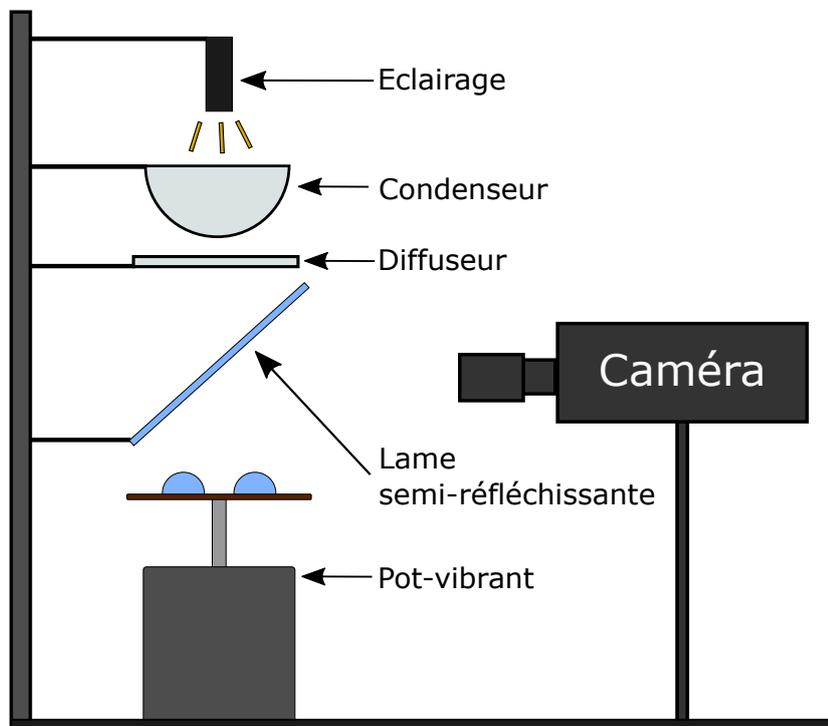


FIGURE 3.1 – Présentation du dispositif expérimental de vibration de gouttes.

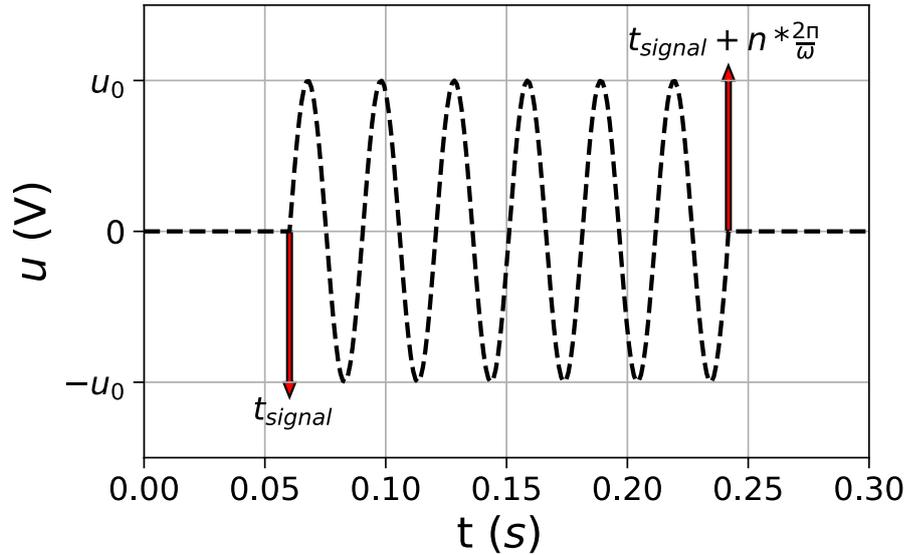


FIGURE 3.2 – Signal transmis au pot-vibrant.

Le signal utilisé dans cette étude est sinusoïdal, tel que :

$$\begin{cases} 0 & \text{si } t < t_{signal} \\ u_0 * \sin(\omega t) & \text{si } t_{signal} + n * \frac{2\pi}{\omega} > t > t_{signal} \\ 0 & \text{si } t > n * \frac{1}{\omega} \end{cases}$$

avec u_0 , l'amplitude du signal en volt et $f = \omega/(2\pi)$, la fréquence en Hz . Ce signal est répété sur n périodes pendant chaque cycle grâce à la fonctionnalité "burst" du générateur de fonctions (Figure 3.2). Le déplacement vertical du substrat est mesuré avec un laser. Une diode laser Thorlabs 635 nm, envoi un faisceau sur la surface du substrat avec un angle de 45° . Ce faisceau est réfléchi sur le substrat. Il continue vers un détecteur de position rectangulaire Hamamatsu PSD S3932.1x12 mm de longueur $L = 12mm$ placé verticalement, à une position z sur celui-ci. Les déplacements verticaux du substrat se traduisent directement au laser par une variation similaire de la position z sur le détecteur. La position z est enregistrée au cours du temps. Le fonctionnement du détecteur se rapproche de celui d'une double photodiode. En fonction de la position du faisceau laser sur le détecteur, il génère deux courants I_A et I_B aux extrémités. Un montage électronique converti les courants en tensions A et B qui sont mesurées par un oscilloscope numérique USB (Picoscope 3000 Séries). En réalisant l'opération suivante on remonte à la position du faisceau exacte :

$$z = \frac{L * (A - B)}{2(A + B)} \quad (3.1)$$

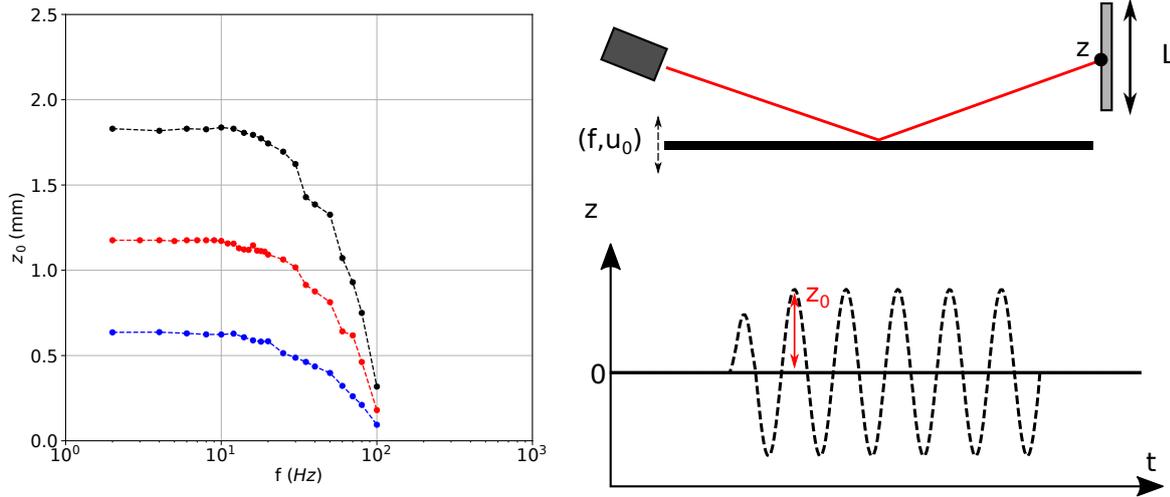


FIGURE 3.3 – Mesure du mouvement vertical du pot-vibrant en fonction de la fréquence, pour 3 amplitudes du signal.

La position du faisceau est acquise à 10kHz en continu par le logiciel de l'oscilloscope numérique USB (Picoscope) sur plusieurs oscillations. L'amplitude z_0 et la pulsation ω de la position sont déduites à partir de leurs moyennes respectives sur plusieurs oscillations à partir de la seconde oscillation. Le premier pic n'est pas pris en compte car celui-ci est moins important que les suivants à cause de la réponse non instantanée lors de la mise en mouvement du fait de la dissipation dans la fonction de transfert électromécanique en particulier. Cela produit un retard dans le mouvement, c'est pourquoi le nombre de périodes est fixé à $n = 6$ afin d'avoir suffisamment d'oscillations.

On mesure l'amplitude des vibrations z_0 du substrat en fonction de l'amplitude u_0 appliquée et de la pulsation ω imposée par le générateur de fonction. La Figure 3.3 présente les mesures des amplitudes de vibrations z_0 pour u_0 qui vaut 1, 2 et 3 volts. Le comportement du pot-vibrant correspond à celui d'un filtre passe-bas avec une fréquence de coupure de l'ordre de $\sim 50\text{Hz}$. Au-delà de cette fréquence de coupure, l'amplitude du mouvement décroît. Cette décroissance ne nous permet donc pas tout à fait d'étudier des gouttes de la taille de celle présentes dans une figure de souffle.

Par ailleurs, l'accélération du substrat, dans le cas d'un signal sinusoïdal, vaut : $a(t) = -\omega^2 z_0 \cos(\omega t) = -\Gamma \cos(\omega t)$, et la variation de gravité effective vue par le liquide sera donc : $g^* = g - \Gamma \cos(\omega t)$.

3.1.3 Protocole expérimental.

On décrit ici une expérience typique. Deux gouttes de mêmes volumes sont déposées sur le substrat, espacées d'une certaine distance, à l'aide d'une seringue fixée à une platine de translation micrométrique verticale. Le volume est piloté par un pousse seringue Harvard Apparatus, qui contrôle le volume de liquide. Les gouttes sont remplies avec un débit constant de sorte qu'à la fin du dépôt elles forment un angle de contact compris entre l'angle d'avancée et l'angle d'équilibre. Le signal est appliqué au pot vibrant à une fréquence et une amplitude suffisante pour mettre en mouvement les gouttes. Les gouttes oscillent.

Protocole de traitement des données.

La visualisation des oscillations des gouttes et de leur coalescence est réalisée avec la caméra rapide par le dessus. La Figure 3.4 décrit une image obtenue avec la caméra pour une goutte (1) et les différentes étapes du traitement d'image que nous réalisons avec ImageJ (2-4). Premièrement, on détecte le bord de la goutte en utilisant la fonction "find edges" (2). Puis, l'image est binarisée pour ne garder que le contour (3). Le contour est ensuite rempli avec la fonction "fill holes" pour obtenir une particule pleine représentant parfaitement la goutte (4).

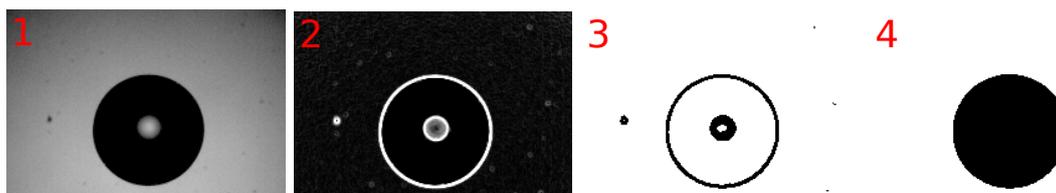


FIGURE 3.4 – Différentes étapes du traitement d'images

On peut alors mesurer sur ces images, avec la fonction "analyse particles" l'aire de contact des particules A_i qui correspond à l'aire projetée des gouttes lorsque l'angle de contact $\theta > 90^\circ$. L'aire projetée est convertie en rayon par $R_i = \sqrt{A_i/\pi}$. La Figure 3.5 décrit les oscillations du rayon R pour une seule goutte, ainsi que la variation maximale du rayon $\Delta R = R_m - R_0$ où R_m est le rayon maximal et R_0 le rayon initial, en fonction de la fréquence f pour 3 amplitudes. La variation de rayon ΔR est maximale pour une fréquence proche de $f = 22\text{Hz}$ et diminue avec l'augmentation de l'amplitude. Cette variation est de plus en plus grande lorsque l'amplitude augmente. On note par ailleurs une plage relativement large de fréquences présentant une valeur non négligeable de variation de rayon. Cependant, à cette fréquence nous avons observé un déplacement important de la goutte ainsi que des éjections de liquide lors des oscillations, nous avons donc choisi une fréquence toujours un peu plus grande.

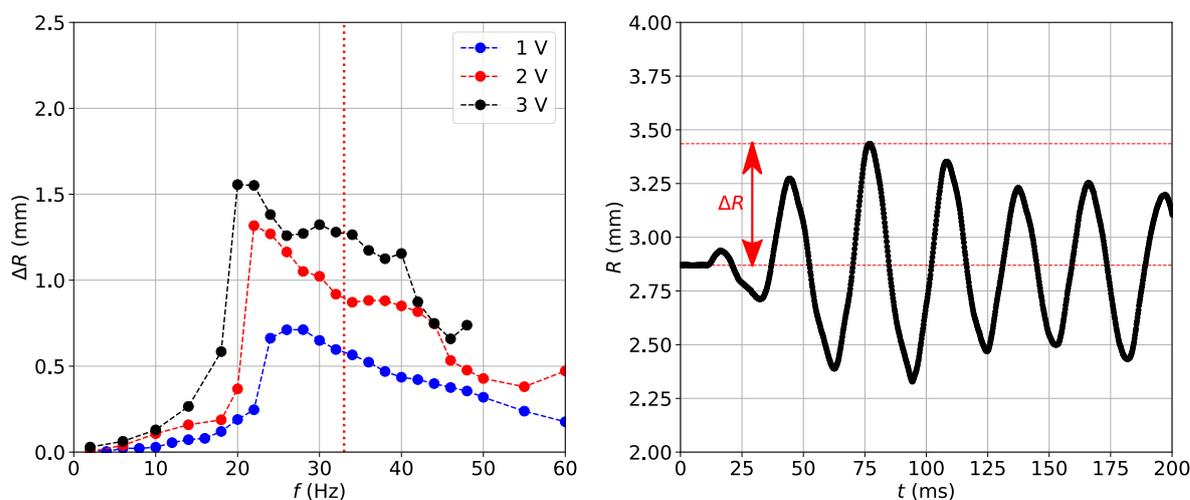


FIGURE 3.5 – Evolution du rayon maximal d'oscillation d'une goutte de $V = 60\mu\text{L}$ en fonction de la fréquence pour différentes amplitudes du signal.

La fréquence de résonance d'une goutte dépend du volume de celle-ci comme vu au Chapitre 1 section 1.3. Pour cela, nous avons réalisé le même procédé pour les trois volumes de liquide utilisés dans cette étude : 20, 60 et $90\mu L$, et les différentes amplitudes imposées.

Lorsqu'on s'intéresse à la coalescence entre deux gouttes, on mesure en plus les positions des centres de masse (x_i, y_i) de celles-ci au cours du temps. On calcule la distance entre les centres de masse D au cours du temps par : $D = \sqrt{(x_2 - x_1)^2 + (y_2 - y_1)^2}$. La vitesse moyenne des lignes de contact est obtenue par : $v_{l,i}(t) = \frac{dR_i(t)}{dt}$. La dernière grandeur mesurée est la distance bord à bord entre les gouttes d définie par :

$$d(t) = D(t) - (R_1(t) + R_2(t)) \quad (3.2)$$

On notera $d_0 = D_0 - (R_{0,1} + R_{0,2})$, avec $R_{0,i}$ le rayon initial de la goutte i à $t = 0$, et D_0 la distance initiale entre les gouttes. Les rayons maximaux des gouttes sont notés $R_{m,i}$. La Figure 3.6.a) illustre les différents paramètres. La Figure 3.6.b) présente le cas où $d = 0$. Lorsque les gouttes sont très proches l'une de l'autre, lors de l'expansion de leurs rayons, on définit ε le chevauchement virtuel des gouttes (Figure 3.6.c).

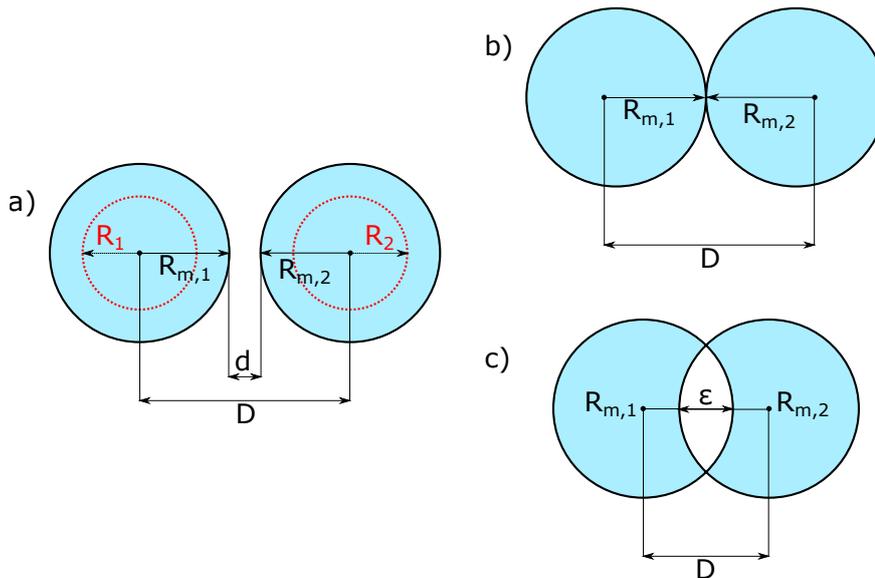


FIGURE 3.6 – a) variation maximale du rayon des gouttes lors des oscillations. b) la condition de contact entre les deux gouttes. c) le chevauchement virtuel entre deux gouttes.

La Figure 3.7 présente un exemple de courbe typique obtenue pour deux gouttes qui oscillent sans se toucher sur une surface très hystérétique. A cause du retard du pot vibrant pour la première oscillation, l'aire va d'abord diminuer puis augmenter fortement. A chaque maxima et minima, l'aire est constante pendant un temps, à cause de l'hystérésis de l'angle de contact. Le mouvement est de type "stick-slip" [66]. Les parties d'extension maximale de l'aire sont faites de paliers (parties "stick"). Lorsqu'on fixe la fréquence du signal et qu'on augmente l'amplitude, l'aire maximale des gouttes augmente et la vitesse maximale V_l des interfaces liquide aussi.

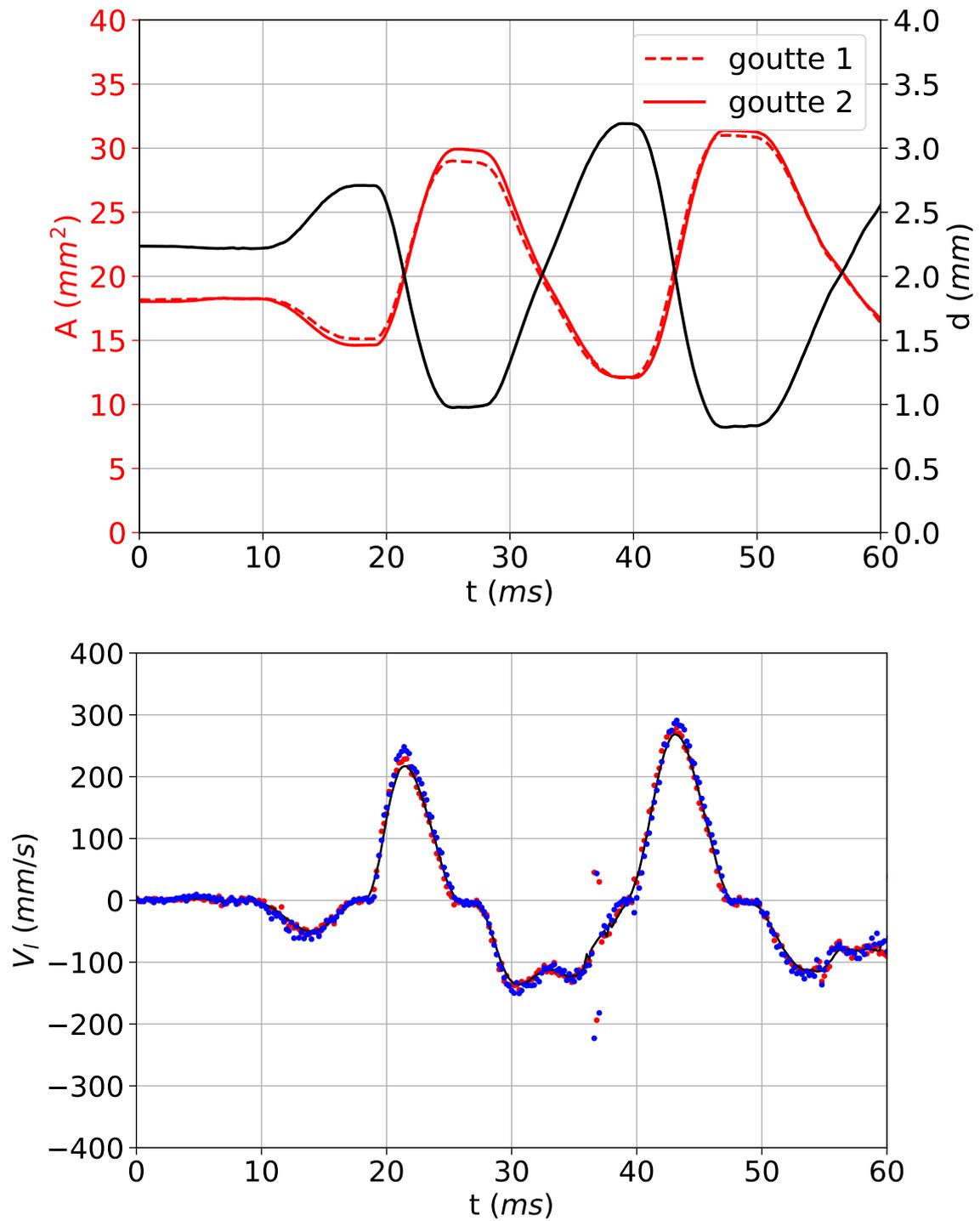


FIGURE 3.7 – Haut : Aire projetée des gouttes 1 et 2 en fonction du temps ainsi que la distance entre les bords des gouttes en fonction du temps. Bas : Vitesses des interfaces des gouttes 1 (rouge) et 2 (bleu).

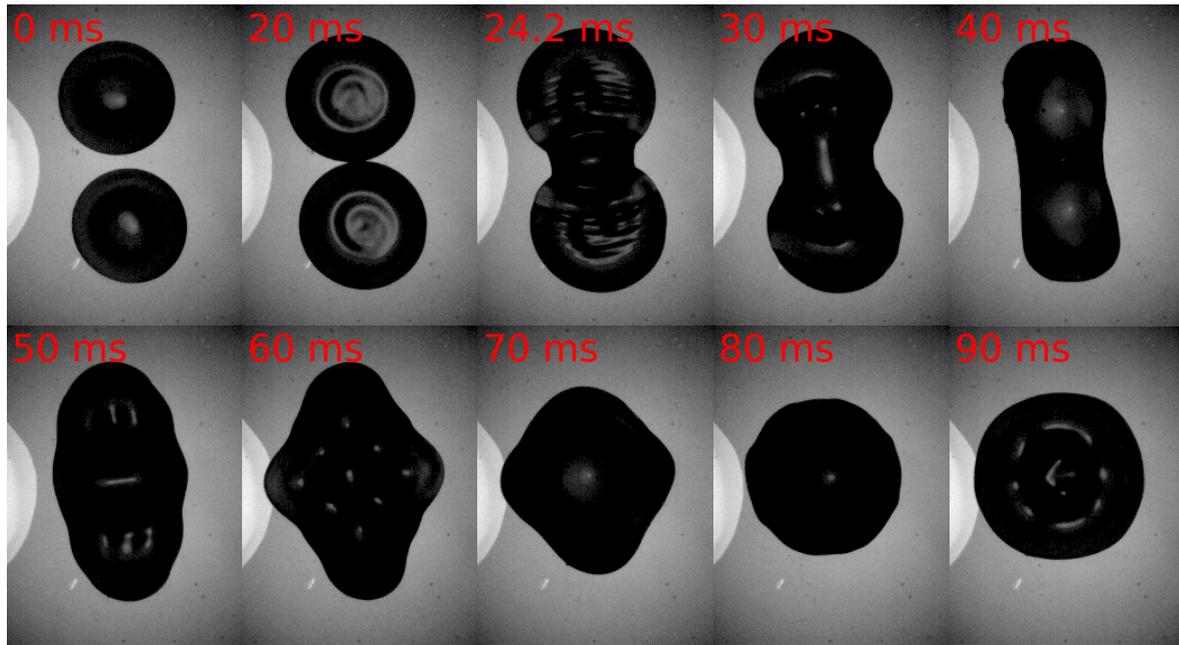


FIGURE 3.8 – Coalescence entre deux gouttes.

Lorsque les gouttes ont des rayons qui s'interpénètrent, trois scénarios sont possibles.

1. La Figure 3.8 présente le premier cas où la coalescence se produit instantanément entre les gouttes. Lorsque le signal est appliqué, les gouttes commencent à osciller et rentrent en contact. Puis, un pont liquide se forme, dénommé "cou". Lors de la formation du pont, des ondes capillaires se propagent depuis le point de contact de part et d'autre des gouttes [69, 114]. Le rayon du cou croît dans la direction transverse à l'alignement des gouttes initiales jusqu'à une certaine taille puis s'arrête. La nouvelle goutte adopte à cet instant une forme de "cacahuète". Puis une seconde augmentation du cou survient et le liquide tend à retrouver (petit à petit) une forme plus ou moins axisymétrique et donc hémisphérique. Au final, on a bien deux gouttes mères qui deviennent une seule goutte fille.
2. La Figure 3.9 présente le second cas où la coalescence est retardée. Les gouttes paraissent en contact. Les interfaces liquides se déforment et une onde de choc se propage à la surface du liquide. Après un certain temps où les interfaces des deux gouttes sont très proches, un pont fini par se former et les gouttes coalescent de la même manière que dans la Figure 3.8.
3. Enfin, la Figure 3.10 présente le dernier cas où les gouttes rebondissent (dans le plan horizontal) et après un temps relativement long où les interfaces sont très proches. Comme dans le scénario précédent, les gouttes en entrant en contact voient leurs interfaces déformées pendant un certain temps. Puis, les interfaces liquides s'éloignent l'une de l'autre. En continuant d'osciller la goutte peut alors coalescer ou non par la suite. Nous verrons que dans certains cas il est possible d'observer plusieurs rebonds consécutifs. Dans l'étude, on s'intéresse principalement à la coalescence instantanée et aux rebonds (scénario 1 et 3).

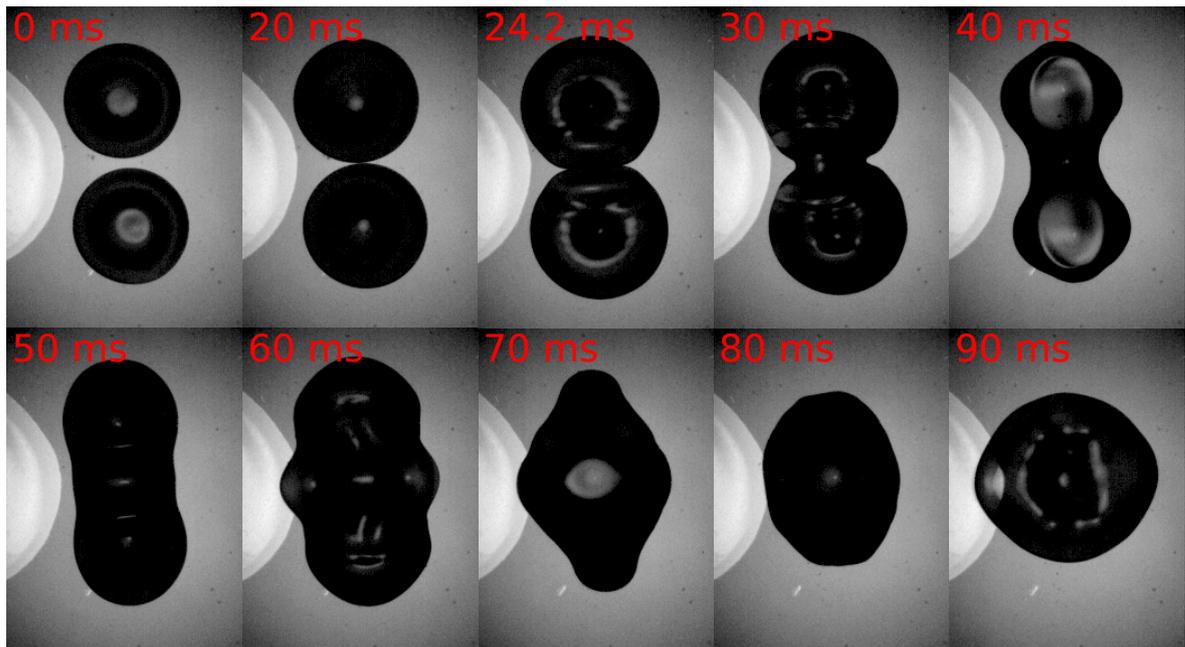


FIGURE 3.9 – Coalescence retardée entre deux gouttes

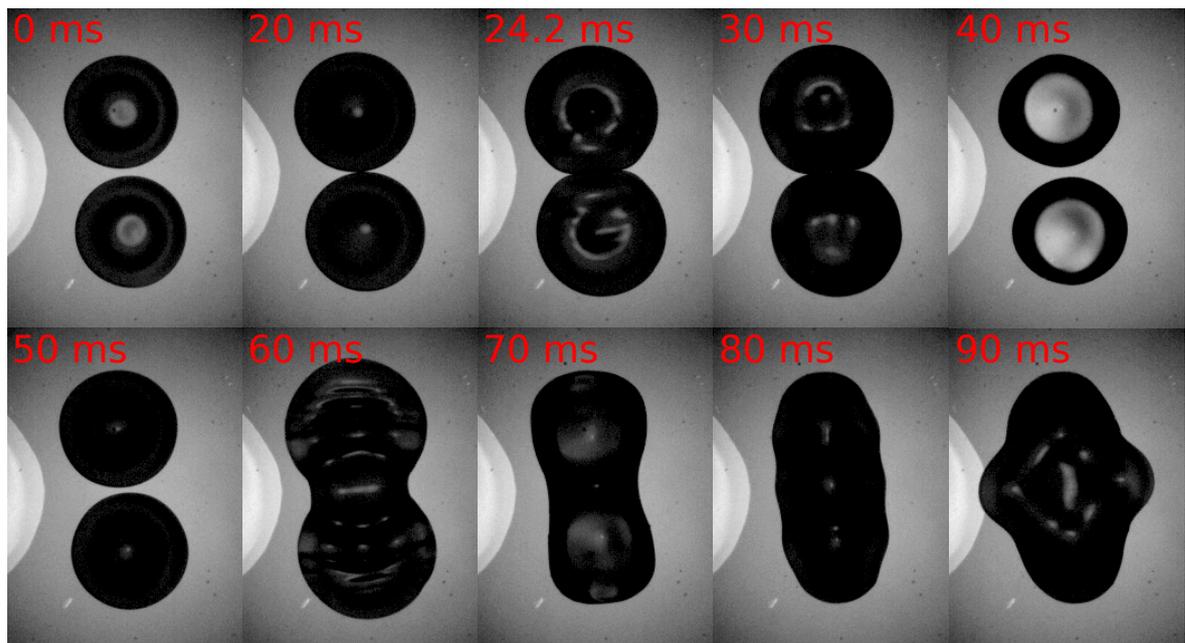


FIGURE 3.10 – Rebond entre deux gouttes.

3.2 Résultats : domaines de coalescence et non-coalescence.

Dans cette section, on se focalise sur l'étude des différents comportements observables entre deux gouttes proches soumises à des vibrations à l'aide de diagrammes de phases. Les propriétés de mouillage du substrat sont changées pour étudier leurs effets sur le phénomène.

3.2.1 Polycarbonate.

Le premier substrat étudié est la plaque de polycarbonate (hydrophile $\theta_a = 88^\circ$ et $\theta_r = 60^\circ$). On fixe le volume des gouttes à $20\mu L$ et la fréquence du signal à $45Hz$. Pour quatre amplitudes du signal qui sont respectivement 2, 2.5, 3 et 4 volts, on fait varier la distance initiale entre les gouttes déposées. Puis, on fait de même pour un volume de $60\mu L$, à une fréquence de $33Hz$ et trois amplitudes 1, 2, 3 volts. Dans un premier temps, on récupère la distance d_0 initiale entre les bords des gouttes. On mesure ensuite la somme des rayons maximaux d'étalement des gouttes pour chaque amplitude qu'on note : $\Delta_{1,2} = (R_{m,1} - R_{0,1} + R_{m,2} - R_{0,2})$. On reporte les résultats de chaque expérience dans un diagramme $\Delta_{1,2} - d_0$, présenté sur la Figure 3.11 où on indique si une coalescence est observée par un symbole noir et rouge dans le cas contraire.

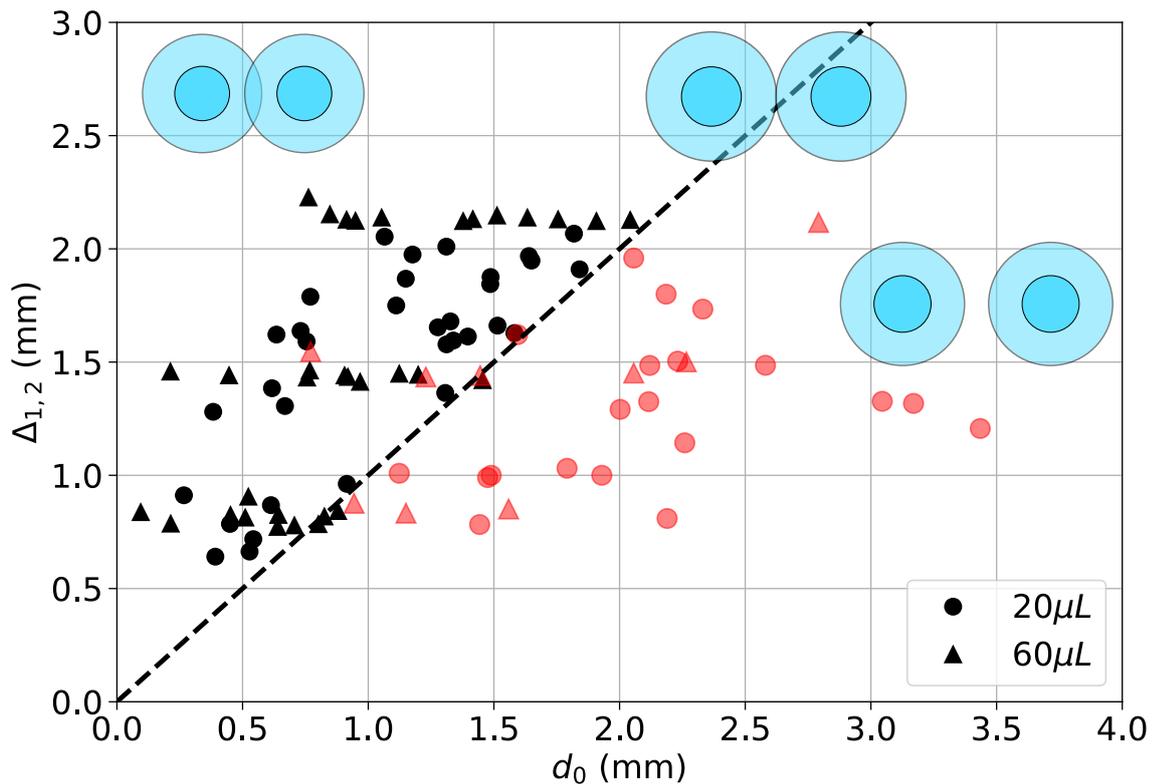


FIGURE 3.11 – Diagramme de phase (coalescence/non coalescence) entre deux gouttes d'eau, sur une plaque de polycarbonate (PC). Les symboles noirs représentent les événements de coalescence et les symboles rouges les événements de non-coalescence. La droite en pointillés représente la délimitation théorique entre les domaines de recouvrement ou non des gouttes.

On observe que pour un même volume et même fréquence, l'étalement maximal des gouttes augmente bien lorsque l'amplitude du signal augmente. La droite en pointillés représente le cas limite où les gouttes commencent à se recouvrir, donc pour que la coalescence puisse avoir lieu (c'est une condition nécessaire mais pas suffisante), c'est-à-dire lorsque $d = 0$ et que les gouttes se touchent. Cette droite délimite les deux domaines théoriques. Le domaine de coalescence à gauche de la droite en pointillés et le domaine de non-coalescence à droite de celle-ci. Les événements de coalescence sont symbolisés par les symboles noirs et la non-coalescence par les symboles rouges. On observe que chaque symbole est bien dans son domaine respectif à l'exception de trois points. Ces trois points correspondent à des événements de rebond. Dans le cas du Polycarbonate, l'évènement qui prédomine est la coalescence pour deux gouttes qui se touchent.

La Figure 3.12 illustre la coalescence directe entre deux gouttes. Lors du contact, il y a formation instantané d'un pont liquide entre les gouttes. Ce pont grandit et le liquide adopte une forme de "cacahuète". Le liquide se rétracte puis oscille dans des modes plus complexes avant de retrouver une forme quasi-circulaire.

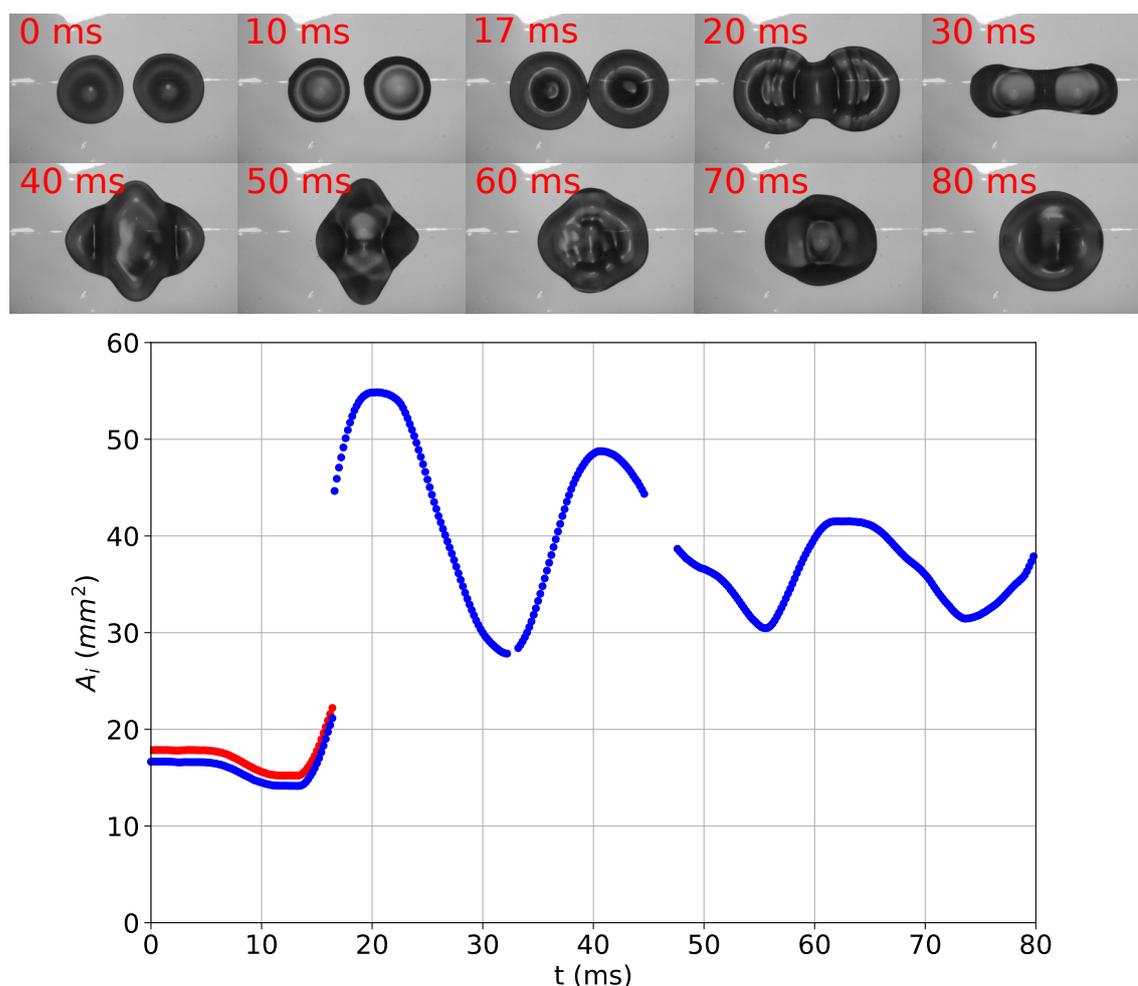


FIGURE 3.12 – Haut : Séquence d'images illustrant la coalescence entre deux goutte de $20\mu L$ sur du polycarbonate. Bas : aire mesurée des deux gouttes mères (rouge et bleu) puis de la goutte fille (bleu) en fonction du temps.

3.2.2 PDMS.

Le second substrat étudié est une surface de PDMS (hydrophobe $\theta_a = 107^\circ$ et $\theta_r = 91^\circ$). On fixe cette fois le volume des gouttes à $60\mu L$ et la fréquence du signal à $33Hz$. On applique trois amplitudes du signal qui sont respectivement 1, 2 et 3 volt. Puis, on fait de même pour un volume de $90\mu L$, à une fréquence de $23Hz$ et trois amplitudes 2.5, 3 et 4 volt. Sur la Figure 3.13 sont reportés les événements observés dans un diagramme $\Delta_{1,2} - d_0$. Les événements de coalescence sont toujours symbolisés par les symboles noirs et la non-coalescence par les symboles rouges. A la différence de la plaque de polycarbonate, on observe d'avantage d'évènements de non-coalescence. On observe également se dessiner une zone de coexistence entre coalescence et rebond pour les volumes étudiés.

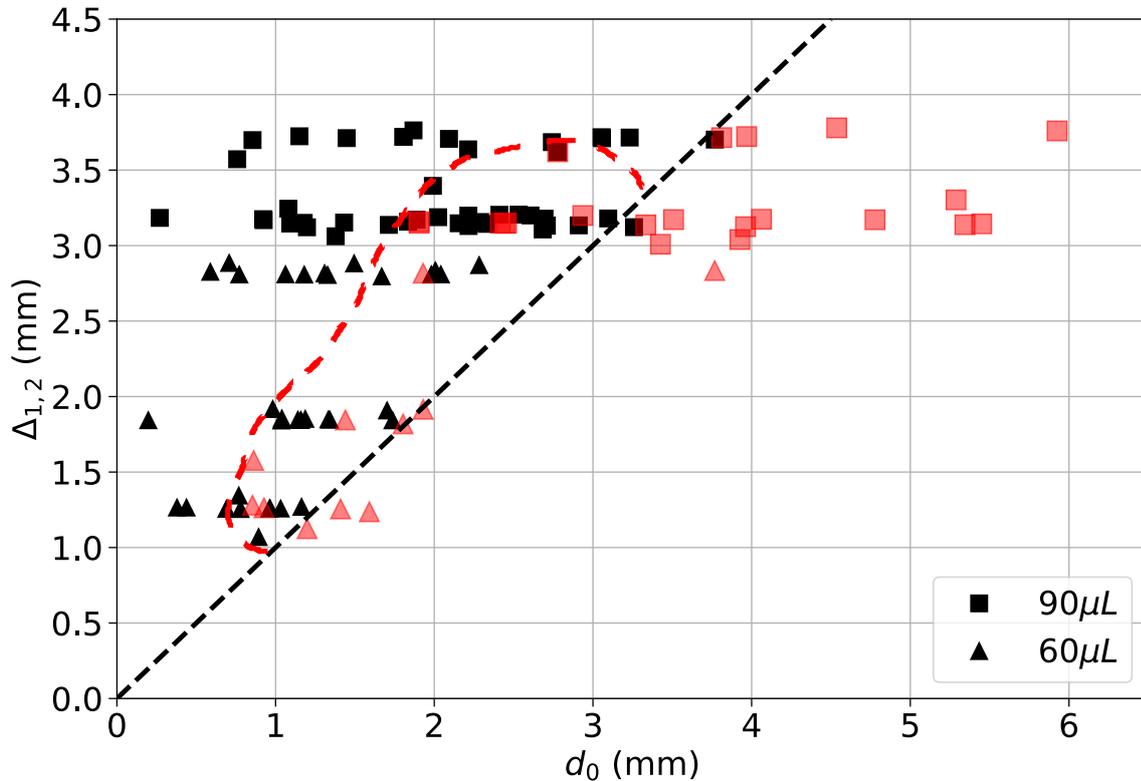


FIGURE 3.13 – Diagramme de phase entre deux gouttes d'eau, sur une surface de PDMS. Les symboles noirs représentent les événements de coalescence et les symboles rouges les événements de non-coalescence. La droite en pointillé représente la délimitation théorique de recouvrement des gouttes.

La Figure 3.14 illustre les deux scénarios observés dans le diagramme de phase. Dans le premier cas (Figure 3.14.a) la coalescence se déroule de façon identique au cas du substrat de polycarbonate. On retrouve les mêmes étapes pour la croissance du pont et la présence d'ondes capillaires lors de la formation. Cependant, à même volume et signal appliqués on observe que le temps avant de retrouver une forme circulaire est plus élevé. Cette différence provient de l'hystérésis plus faible de la surface. La ligne de contact peut se mouvoir plus facilement et présente de plus nombreux cycles d'oscillations. Dans le cas du rebond (Figure 3.14.b), les interfaces restent très proches (à l'image, elles semblent en

contact) pendant un certain temps, se déforment, puis s'éloignent l'une de l'autre sans coalescer. Sur le substrat en PDMS, il est possible d'observer de multiples rebonds lors de l'oscillation des gouttes contrairement à la surface en polycarbonate où le rebond est très rarement observé et en général unique.

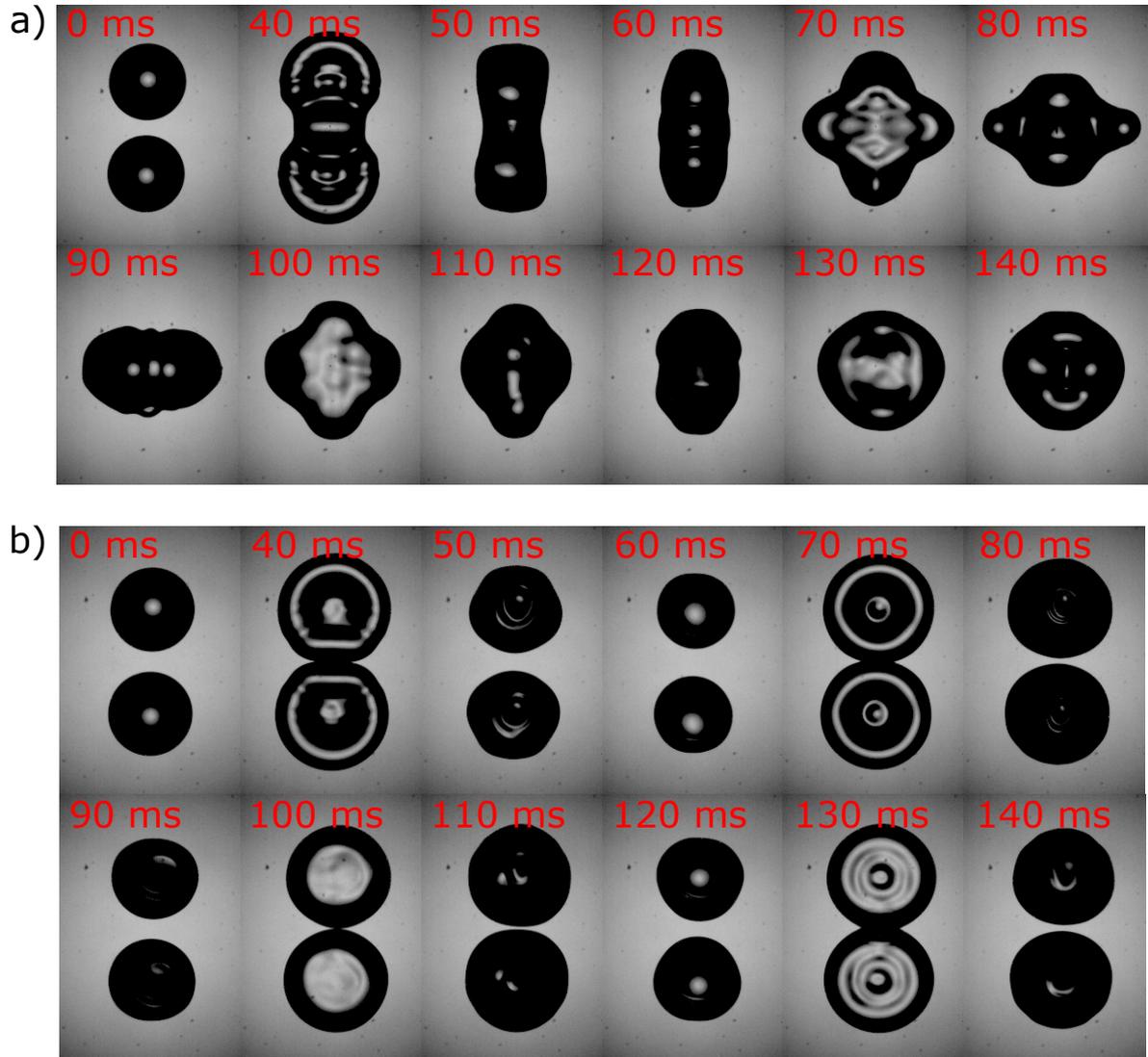


FIGURE 3.14 – a) Séquence d'images illustrant la coalescence entre deux gouttes sur du PDMS. b) Séquence d'images illustrant le rebond entre deux gouttes sur du PDMS.

3.2.3 Téflon.

Le troisième substrat étudié est une surface en Téflon (hydrophobe $\theta_a = 121^\circ$ et $\theta_r = 109^\circ$). Le volume des gouttes est fixé à $60\mu L$, et la fréquence à $33Hz$. Pour trois amplitudes du signal qui sont respectivement 1, 2 et 3 volts. Puis, pour un volume de $90\mu L$, à une fréquence de $23Hz$ pour des amplitudes de 3 et 4 volts. Sur la Figure 3.15 sont reportés les événements observés dans un diagramme $\Delta_{1,2} - d_0$.

Les événements de coalescence sont toujours symbolisés par les symboles noirs et la non-coalescence par les symboles rouges. A la différence de la plaque PC et du PDMS, on observe une inversion de la tendance entre les événements de rebond et de coalescence. En effet, on observe que les événements de rebonds sont prédominants. Dans certaines conditions, on est capable d'observer uniquement des rebonds. Cependant dans d'autres cas la coalescence est observable aussi. Les événements de coalescences sont observés pour les amplitudes de vibration les plus grandes et pour les tailles de gouttes les plus grandes.

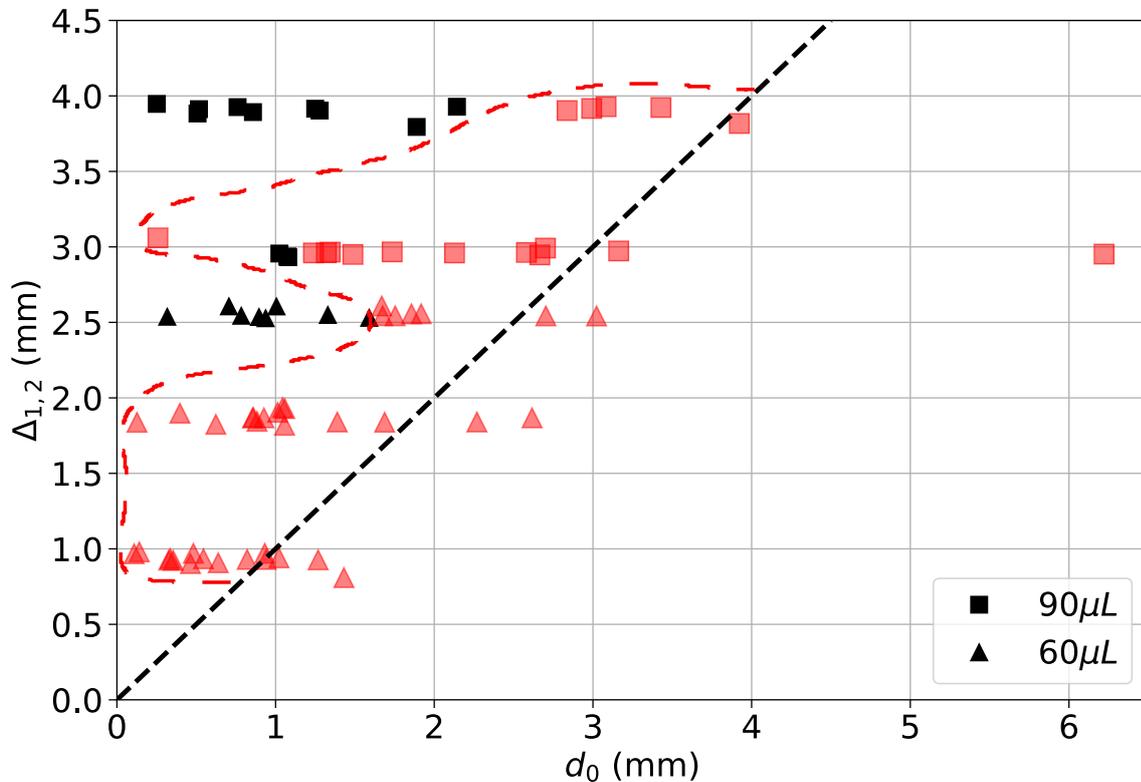


FIGURE 3.15 – Diagramme de phase entre deux gouttes d'eau, sur une surface de Téflon. Les symboles noirs représentent les événements de coalescence et les symboles rouges les événements de non-coalescence. La droite en pointillés représente la délimitation théorique du recouvrement des gouttes.

La Figure 3.16 illustre les deux scénarios observés sur la surface en téflon. La Figure 3.16.a) illustre le rebond semblable à celui observé sur le PDMS. La Figure 3.16.b) illustre la coalescence. Lors de la coalescence on retrouve les mêmes étapes initiales, cependant, les différences apparaissent lors des oscillations du liquide qui suivent la formation du pont. Après avoir atteint la forme de "cacahuète", la goutte va osciller dans un mode

différent que précédemment. Elle oscille en alternant entre extension maximale dans l'axe initial puis selon l'axe transverse avant de retrouver une forme sphérique après l'arrêt des vibrations.

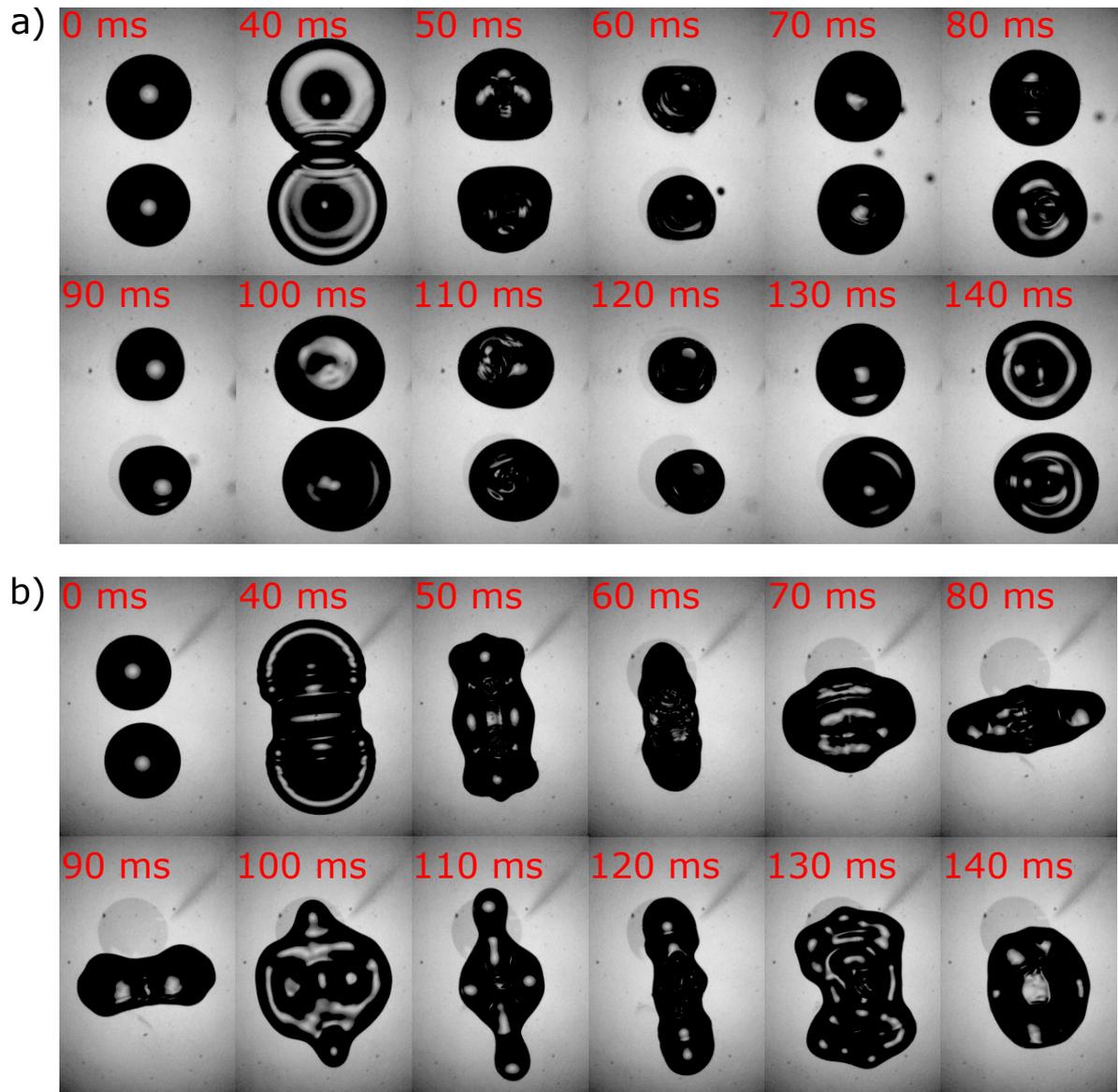


FIGURE 3.16 – Sequence d'images illustrant la coalescence entre deux goutte de $60\mu L$ sur du Teflon.

Nous résumons ici les statistiques d'évènements de coalescence et de non-coalescence sur la Figure 3.17. La Figure 3.17 représente les proportions (en %) des événements de coalescence et rebonds pour les trois substrats. On remarque que les événements de rebond sont de plus en plus important, quand l'angle de contact d'avancée augmente et que l'hystérésis diminue. On constate que les propriétés de mouillage du substrat ont donc une forte influence.

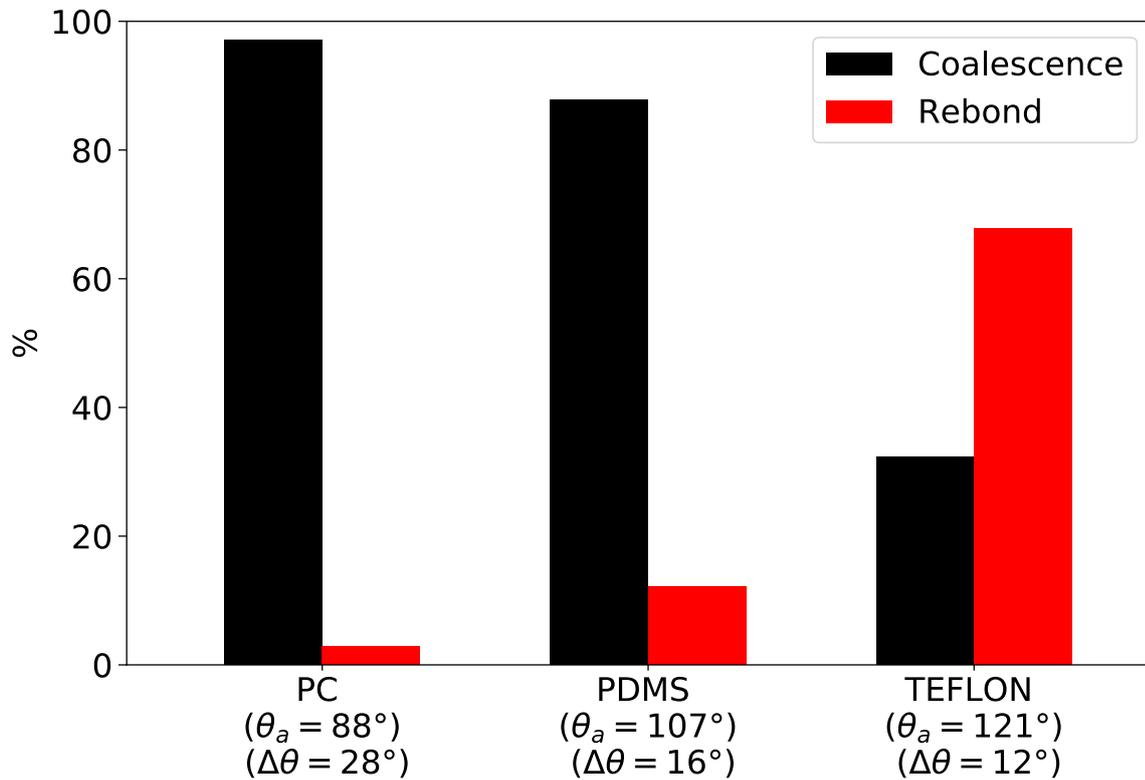


FIGURE 3.17 – Histogramme des événements de coalescence et de rebond pour les trois substrats.

3.2.4 Interprétation.

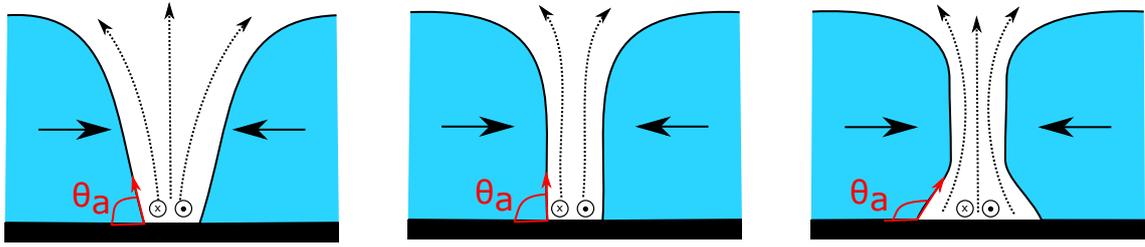


FIGURE 3.18 – Schematisation du contact entre les gouttes, pour $\theta_a < 90^\circ$ (gauche), $\theta_a = 90^\circ$ (milieu) et $\theta_a > 90^\circ$ (droite).

Les retards à la coalescence ou les événements de non-coalescence proviennent du fait que les interfaces liquides ne rentrent pas vraiment en contact et qu'un film d'air reste présent. De la même façon que pour les expériences de gouttes rebondissantes [79], la présence d'un film d'air empêche les interfaces liquides de se toucher. Pour qu'il y ait coalescence, il faut que ce film disparaisse ou s'amincisse suffisamment. Pour ce faire, un temps de drainage du film d'air est nécessaire. ce drainage s'opère du fait de la surpression liée aux mouvements des interfaces des deux gouttes l'une vers l'autre. L'explication des différences avec l'angle de mouillage provient de la géométrie puisque le film peut s'échapper verticalement pour des angles inférieurs à 90° , mais une partie se retrouve coincée sous les bords de goutte qui vont se toucher en premier pour des angles supérieurs à 90° (Figure 3.18). Ainsi, une petite poche d'air peut se retrouver piégée au niveau du substrat et ainsi alimenter le film d'air. Donc, plus l'angle est grand plus la quantité d'air piégé est importante. On peut supposer également que la mobilité de la ligne de contact joue un rôle important dans le processus.

La Figure 3.19 représente les proportions (en %) des événements de coalescence et rebond pour les trois substrats en fonction du chevauchement ε . En traçant de cette façon, on observe que les phénomènes de rebond sont observés principalement jusqu'à une valeur limite de ε . On observe que cette intervalle est d'autant plus grand que la surface est hydrophobe.

On note que quel que soit les substrats, au delà d'une valeur critique en epsilon, il n'y a plus de rebond. Le chevauchement virtuel des gouttes est tellement grand, la surpression tellement élevée que le film d'air se fait drainer dans tous les cas et une coalescence est observée. On verra dans la suite que les mesures des vitesses des interfaces sont cohérentes avec cette analyse.

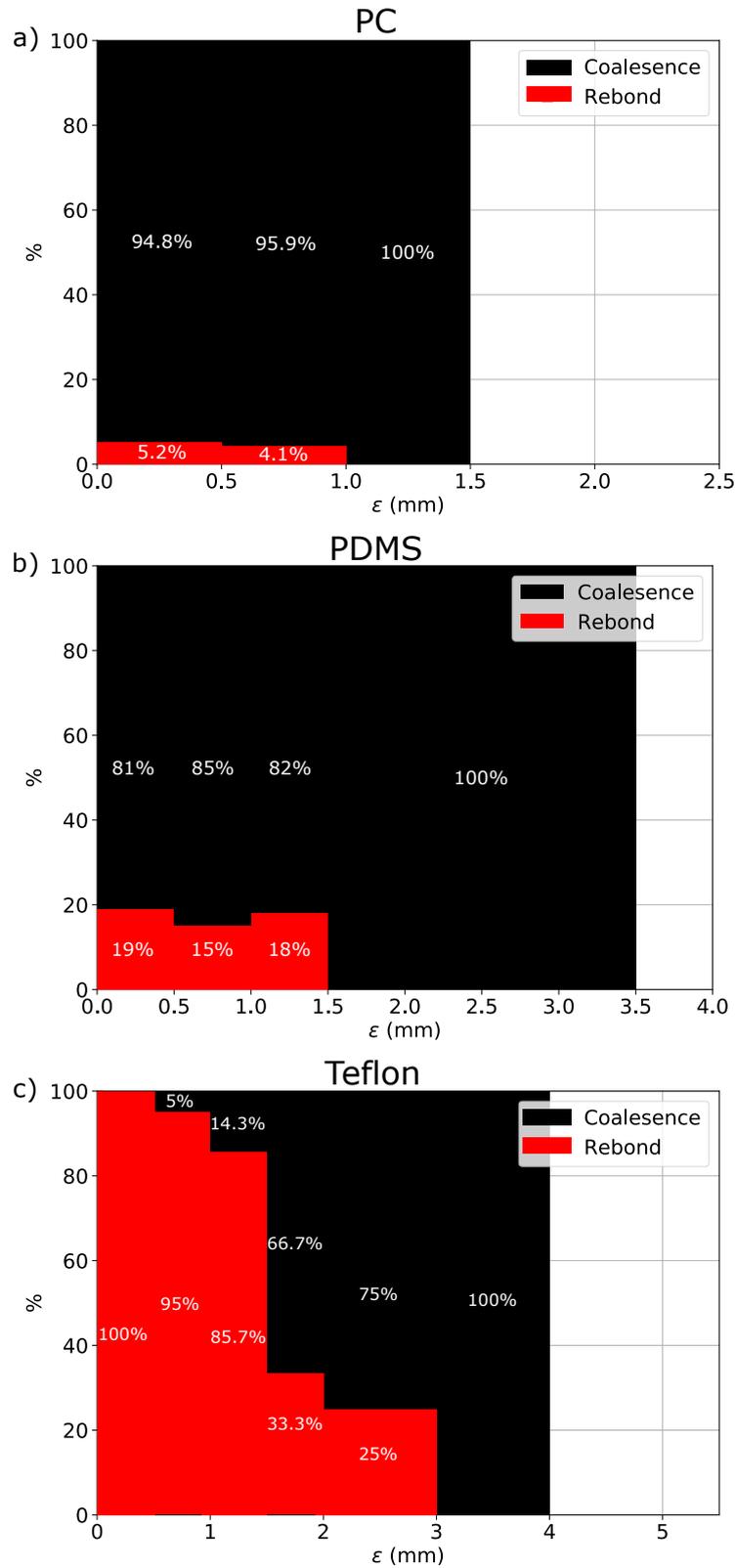


FIGURE 3.19 – Histogramme des événements de coalescence et de rebond (en %) pour les trois substrats en fonction du chevauchement ε . a) surface en polycarbonate, b) surface en PDMS et c) surface en Téflon.

drainage du film d'air.

La dynamique du film d'air dans la situation étudiée est très complexe. Il n'y a pas de caractère d'axisymétrie comme pour le rebond d'une goutte [79]. Ici, cela s'explique par la présence du substrat, des deux gouttes séparées horizontalement et non verticalement et du fait qu'il y a une fuite à la fois verticale et horizontale de l'air. Comme vu dans le chapitre 1, dans le cas des gouttes libres en collision, les paramètres influençant sont la tension de surface, la viscosité, la taille des gouttes et la vitesse des interfaces. Dans notre cas, le liquide est uniquement de l'eau déionisée, on ne varie donc pas la tension de surface ni la viscosité. En revanche, lors des vibrations, les gouttes oscillent et leur taille varie au cours du temps et la vitesse des interfaces aussi. Sur la Figure 3.20 sont reportés les diagrammes *vitesse - vitesse* pour les trois substrats a) polycarbonate, b) PDMS et c) Téflon. Sur cette figure on trace la vitesse de l'interface de la goutte 1 V_1 en fonction de la vitesse de l'interface de la goutte 2 V_2 , juste avant le contact. Le cas des rebonds est de nouveau symbolisé par des symboles rouges et la coalescence par des symboles pleins noirs. On observe que dans le cas du téflon il semble y avoir une vitesse critique (à ne pas dépasser) pour observer le rebond entre de 200 et 250mm/s. Dans le cas du PDMS, on observe la coexistence rebonds/coalescence entre 100 et 250mm/s. Pour le polycarbonate, les rares évènements de rebond se situent entre 50 et 150mm/s.

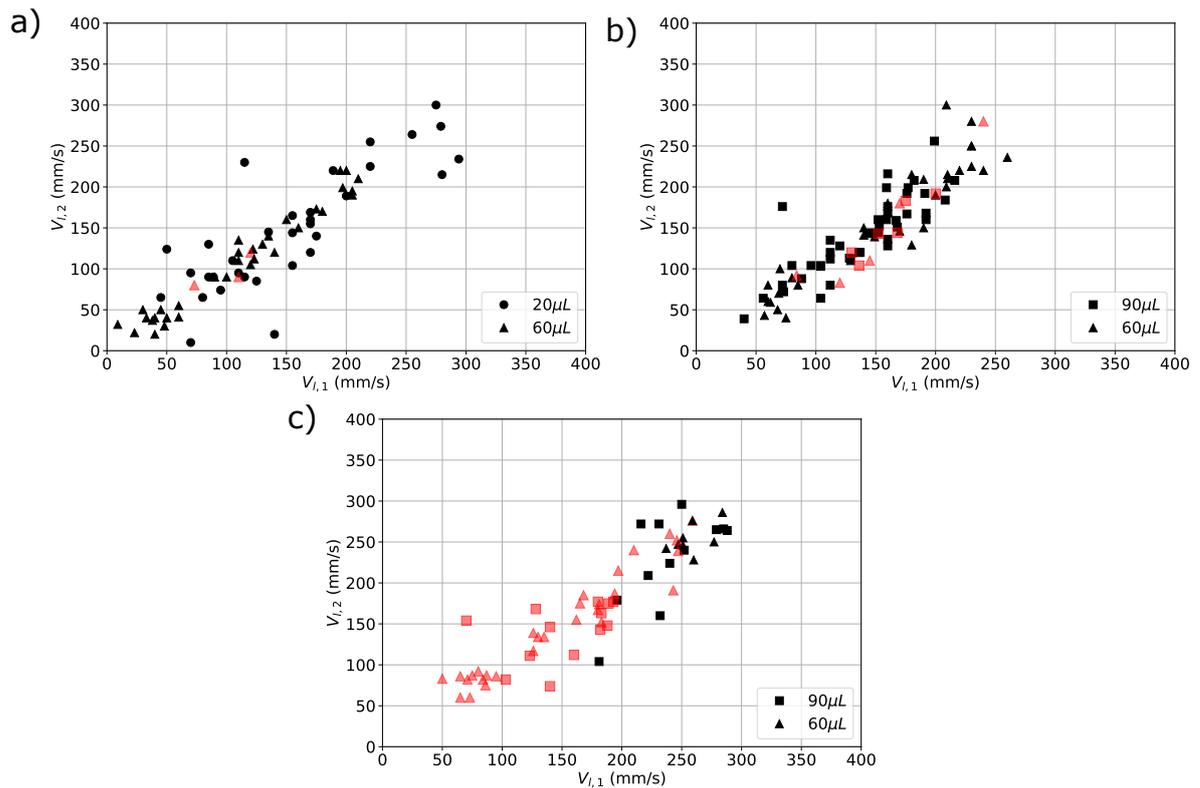


FIGURE 3.20 – Diagramme vitesse-vitesse pour les trois substrats a) polycarbonate, b) PDMS et c) Téflon. Les symboles noirs représentent les évènements de coalescence et les symboles rouges les évènements de non-coalescence.

Lors de la rencontre entre une goutte et une autre interface, un film d'air est piégé. L'interface du liquide va donc être déformée localement à cause de la pression du gaz piégé.

L'interface au niveau du contact adopte ainsi la forme schématisée sur la Figure 3.21. L'épaisseur du film d'air n'est donc pas constante le long du contact. On note $h_{m,f}$ l'épaisseur minimale du film d'air présent aux extrémités du contact [82, 115].

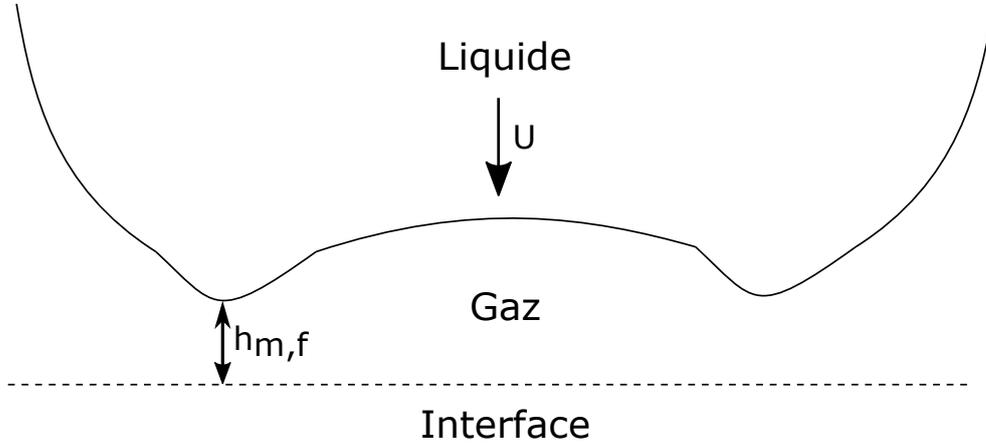


FIGURE 3.21 – Schéma de l'épaisseur minimal du film d'air $h_{m,f}$ lors du contact d'une goutte avec une interface.

Sur la Figure 3.22.a), on trace l'évolution de l'épaisseur minimale du film d'air $h_{m,f}$ en fonction du nombre de Weber We suivant le modèle de [85], pour trois rayons max de gouttes mesurés dans notre étude. L'expression de $h_{m,f}$ ainsi que le développement du modèle en détail sont décrits dans [85]. $h_{m,f}$ s'écrit tel que :

$$h_{m,f} = \frac{24Oh_{g,l}D\sqrt{We}}{4 + We - 8Oh_l\sqrt{We}} \quad (3.3)$$

où $Oh_{g,l}$ et Oh_l sont les nombres d'Ohnesorge des deux phases Gaz/Liquide et du Liquide respectivement.

Afin de comparer nos observations avec [85], on reporte l'épaisseur maximale accessible selon le modèle lorsque $h_{m,f}^* = \frac{dh_{m,f}}{dWe} = 0$, en fonction de la taille critique du film quand les forces de Van der Waals sont susceptibles d'engendrer la coalescence $h_{c,f} \sim 2R(A_H/(24\pi\gamma 4R^2))^{1/3}$ où A_H est la constante d'Hamaker, sur la Figure 3.22.b).

On compare ainsi nos mesures pour des gouttes d'eau avec les résultats issus de [85]. On constate que dans la gamme de taille de gouttes accessible dans nos expériences, elles se trouvent toutes dans le domaine de coalescence prédit par leur modèle. Nous avons vu que ce n'est pas toujours le cas en fonction de la surface. On peut donc supposer que le mouillage joue bien un rôle important sur le phénomène et que le comportement est différent du cas de rebond entre deux gouttes libres dans l'air. Il serait intéressant d'approfondir cette étude dans le cas de gouttes posées pour évaluer l'influence de la géométrie sur le phénomène. Il serait aussi plus intéressant d'estimer non pas l'épaisseur du film mais plutôt le temps de drainage du film. Puis de comparer ce temps avec le temps de contact et la fréquence d'oscillation des gouttes.

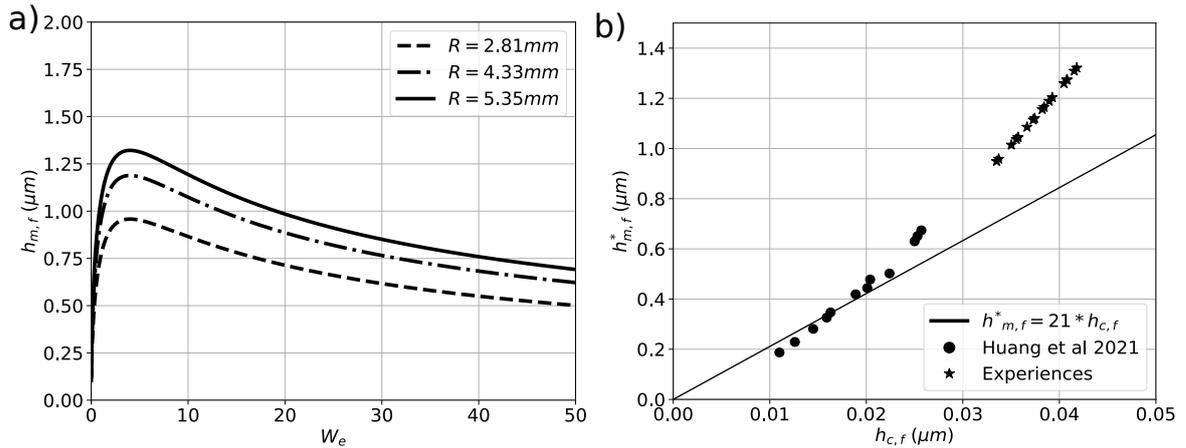


FIGURE 3.22 – a) Epaisseur minimale du film d'air $h_{m,f}$ en fonction du nombre de Weber W_e pour des gouttes de rayon 2.81mm, 4.33mm et 5.35mm. b) Epaisseur maximale de $h_{m,f}(W_e)$ en fonction de la taille critique du film $h_{c,f}$.

3.3 Résultats : dynamique de la coalescence.

Dans cette section, on s'intéresse à la dynamique de coalescence, c'est-à-dire à l'évolution du pont liquide formé. On appellera ce pont liquide "cou" dans la suite du chapitre. La dynamique correspond à l'étude de la croissance du rayon du cou au cours du temps. La Figure 3.23 illustre un exemple de croissance du cou au cours du temps. Sur la courbe, on observe deux grandes parties. Dans la première partie, le contact se fait entre les gouttes et le cou grandit jusqu'à une certaine taille qu'on appelle $R_{n,m1}$. Dans la seconde partie, au-delà de cette valeur, le rayon du cou diminue, puis ré-augmente jusqu'à un second maximum $R_{n,m2}$. Dans cette partie, le cou n'existe plus vraiment, on observe plutôt l'élongation transverse du liquide qui a coalescé. Dans la suite, on s'intéresse donc uniquement aux premiers instants de la coalescence. Pour chaque événement de coalescence, on mesure la valeur de $R_{n,m1}$ et on regarde l'évolution au cours du temps du cou jusqu'à cette valeur.

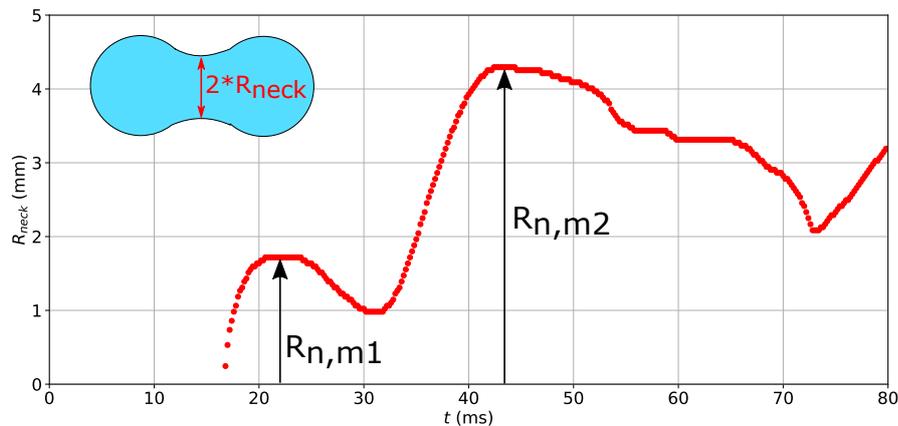


FIGURE 3.23 – Exemple de croissance du cou en fonction du temps.

3.3.1 Croissance du rayon du cou au cours du temps.

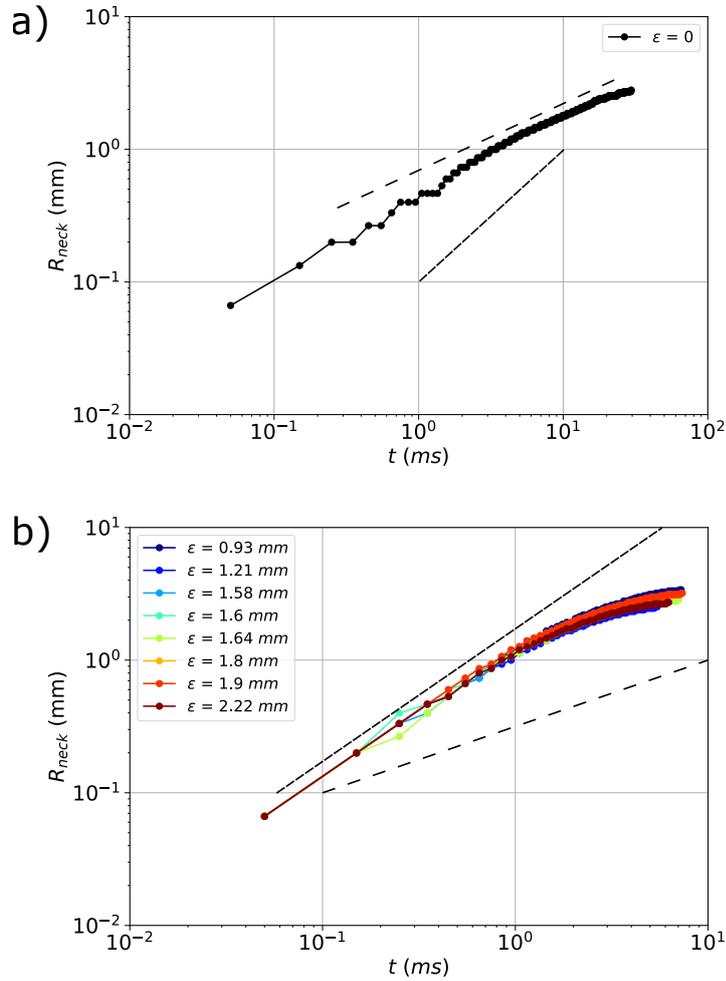


FIGURE 3.24 – Croissance du rayon du cou R_{neck} en fonction du temps en échelle logarithmique. En haut pour deux gouttes très proches avant la mise en vibration (cas quasi-statique), en bas couples de gouttes dont le recouvrement est grand (epsilon). Les courbes en pointillés représentent des pentes de 1 et 1/2.

Nous avons étudié l'évolution du rayon du cou en fonction du temps. En mesurant cette évolution pour chaque événements de coalescence instantanée, nous avons observé une dynamique de croissance qui diffère du cas quasi-statique. La Figure 3.24.a) présente ainsi une courbe dans le cas quasi-statique sur une surface en téflon pour deux gouttes de $60 \mu L$. La Figure 3.24.b) présente les courbes typiques de la croissance du cou, en échelle logarithmique, sur la surface en Teflon pour des grandes valeurs de chevauchement ϵ (goutte de volume $60 \mu L$). On observe, en comparant les deux graphiques que la dynamique de croissance du cou est différente lorsque la coalescence est induite par les vibrations du substrat. En effet, dans le cas quasi-statique on retrouve bien une dépendance de la croissance du cou en : $R_{neck} \sim \sqrt{t}$ comme reportée dans la littérature [?, 69, 74, 75]. En revanche, dans le cas où la coalescence est induite par vibration, pour des grandes valeurs de chevauchements, on observe dans un premier temps une dépendance en $R_{neck} \sim t$, puis ensuite une partie très rapide où l'exposant est changeant entre la valeur 1 et la

saturation. Il n'y a pas d'exposant bien clair pour ce régime.

3.3.2 Rayon maximal du cou.

On mesure le rayon maximal du cou $R_{n,m1}$, sur les trois surfaces (PC, PDMS et Téflon) de l'intégralité des événements de coalescence observé. Les points expérimentaux comprennent ainsi les cas de coalescence instantanée et retardée. On reporte les valeurs de $R_{n,m1}$ en fonction du chevauchement virtuel ε , pour les différentes surfaces sur la Figure 3.25.

La Figure 3.25.a) correspond à la surface en polycarbonate (PC) pour les volumes $20 \mu L$ et $60 \mu L$ de gouttes. Les Figure 3.25.b) et 3.25.c) correspondent respectivement aux surfaces en PDMS et en Téflon pour les volumes $60 \mu L$ et $90 \mu L$. On observe que le rayon maximal $R_{n,m1}$ augmente de façon monotone lorsque le chevauchement virtuel augmente ε . On retrouve cette évolution sur les surfaces en polycarbonate et en PDMS. On note que le rayon maximal est en moyenne inférieur pour les gouttes de $20 \mu L$ par rapport aux gouttes de $60 \mu L$ sur la surface en polycarbonate. On observe cependant que sur la surface en Téflon le rayon maximal ne dépend pas du chevauchement à priori.

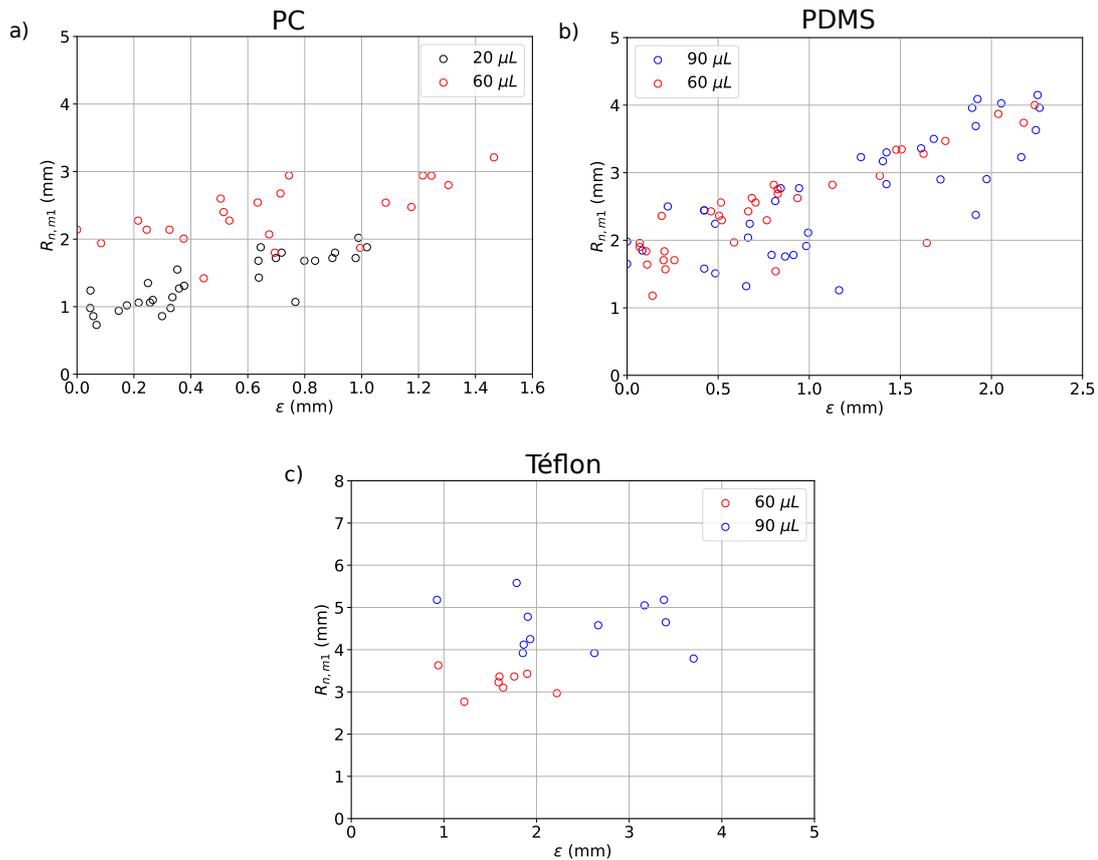


FIGURE 3.25 – Rayon maximal du cou $R_{n,m1}$ en fonction du chevauchement virtuel ε sur : a) la surface en polycarbonate, b) la surface en PDMS et c) la surface en Téflon.

3.3.3 Interprétations.

La dynamique d'ouverture du cou est donc modifiée quand on déclenche la coalescence à l'aide de vibrations du substrat. Comme on l'a vu précédemment, l'application des vibrations induit la mise en mouvement des interfaces liquides. Ces interfaces liquides entrent alors en contact avec une certaine vitesse. On peut alors supposer que la vitesse initiale du liquide lors de la création du cou peut être à l'origine de ce changement de comportement. Cette dynamique soulève davantage de questions car, outre l'effet de la vitesse du liquide, les mouvements du substrat et l'hystérésis doivent également jouer sur ce phénomène.

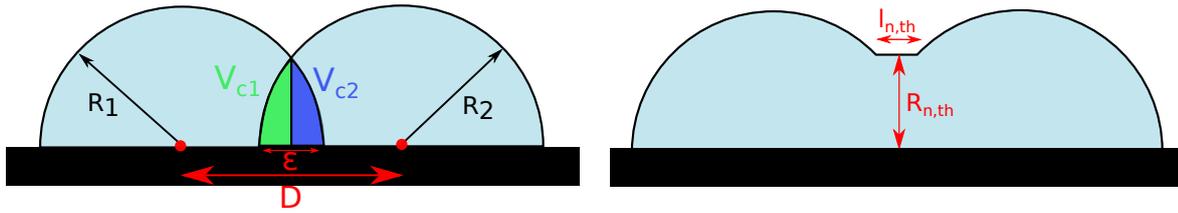


FIGURE 3.26 – Schématisation du calcul géométrique du cou.

Nous avons observé que le rayon maximal du cou dépend du chevauchement virtuel ε . Dans une première approximation, on estime le rayon maximal du cou en fonction du volume de liquide qui se chevauche d'un point de vue géométrique. Pour cela, on fait l'hypothèse que le cou a la forme d'un cylindre tronqué dans sa longueur. On suppose que les gouttes restent hémisphériques avec un angle de contact de 90° , car il s'agit d'un état temporaire. La Figure 3.26 schématise le système considéré. Ce calcul permet d'avoir une idée sur l'ordre de grandeur des dimensions du cou. Le volume de liquide qui se chevauche correspond au volume des portions de calotte sphérique délimitées par l'intersection des deux demi-sphères ($V_{c,1}$ et $V_{c,2}$). Le volume total s'écrit alors :

$$V(\varepsilon) = V_{c,1} + V_{c,2} = \frac{\pi \varepsilon^2}{6} \left(3R_1 - \frac{\varepsilon}{2} \right) + \frac{\pi \varepsilon^2}{6} \left(3R_2 - \frac{\varepsilon}{2} \right) \quad (3.4)$$

À partir de ce volume, on calcule les dimensions du cou en minimisant l'aire A du cylindre de volume V . On obtient ainsi une expression pour le rayon maximal théorique $R_{n,th}$ et la longueur maximale théorique $l_{n,th}$ du cylindre tel que :

$$V = \pi R_{n,th}^2 l_{n,th} \quad (3.5)$$

$$A = 2\pi R_{n,th}^2 + 2\pi R_{n,th} l_{n,th} \quad (3.6)$$

L'aire est minimale lorsque :

$$\frac{dA}{dR_{n,th}} = 0 \quad (3.7)$$

on obtient ainsi :

$$R_{n,th} = \left(\frac{V(\varepsilon)}{2\pi} \right)^{1/3} \quad (3.8)$$

$$l_{n,th} = \frac{V(\varepsilon)}{\pi} \left(\frac{V(\varepsilon)}{2\pi} \right)^{-2/3} \quad (3.9)$$

Afin de comparer nos points expérimentaux, on normalise le rayon maximal du cou par le rayon initial des gouttes $R_{n,th}/R_0$ et le chevauchement par la distance entre les centres de masse des gouttes ε/D . La Figure 3.27 présente les rayons du cou normalisés en fonction du chevauchement normalisé, en échelle logarithmique. Sur cette figure, on reporte ainsi les valeurs du rayon maximal du cou mesurées expérimentalement et calculées théoriquement. On observe que les points expérimentaux se regroupent, avec une certaine dispersion. On note que le rayon augmente bien avec le chevauchement. On distingue deux régimes. Un premier, lorsque $\varepsilon/D \lesssim 10^{-1}$, où le rayon normalisé est plus grand que le rayon calculé par le modèle géométrique. Cependant, lorsque $\varepsilon/D \gtrsim 10^{-1}$, on trouve un bon accord entre les dimensions du rayon calculé et mesuré. On suppose alors que la modification de la dynamique de croissance du cou peut être à l'origine de ces régimes.

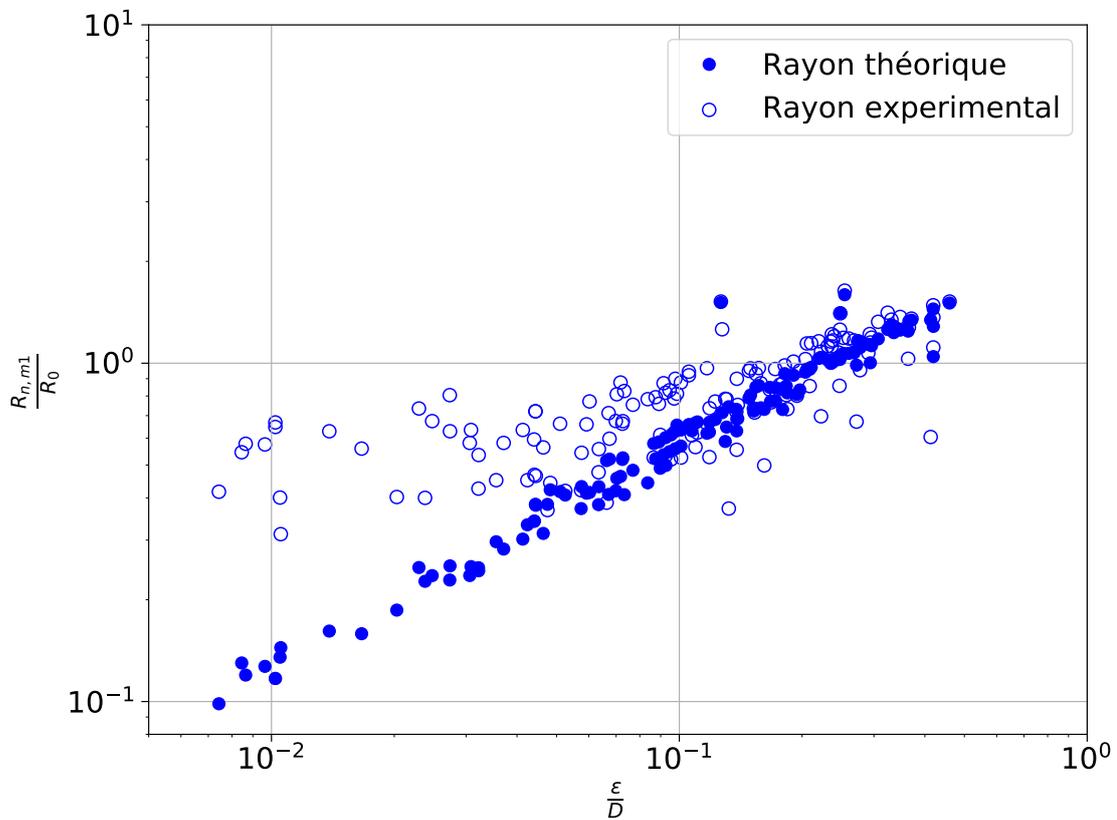


FIGURE 3.27 – Comparaison entre le rayon maximale du cou théorique $R_{n,th}$ et expérimentale $R_{n,m1}$ normalisé, en fonction du chevauchement virtuel normalisé ε/D , en échelle log-log.

3.4 Conclusions et Perspectives.

En conclusion, dans ce chapitre nous avons étudié la coalescence entre deux gouttes dans un régime dynamique. A l'aide de vibrations contrôlées, nous avons fait se rencontrer deux gouttes qui oscillent et nous avons observé leur coalescence.

- En faisant varier le volume des gouttes, l'amplitude de vibration, la distance entre les gouttes et les propriétés de mouillage, nous avons pu observer différents phénomènes : la coalescence, la coalescence retardée et le rebond. Les phénomènes de coalescence retardée et de rebond, dans le cas de l'eau ne sont pas classiques, cependant nous l'avons observé. Nous avons montré que ce phénomène est observable dans le cas de gouttes en mouillage partiel mais qu'il semble dépendre des propriétés de mouillage, couplées à la vitesse des interfaces liquides. L'existence de ces régimes semble dépendre de la dynamique de drainage du film d'air qui est influencée par la géométrie particulière de deux gouttes posées. La présence du substrat et d'une ligne de contact mobile modifient la dynamique de drainage de ce film d'air. L'effet de l'angle de contact, en particulier pour des valeurs au dessus de 90° est très important puisqu'un coin d'air peut être coincé en plus du film d'air sous les interfaces en jonction.
- En étudiant l'évolution du cou au cours du temps, nous avons pu observer que la dynamique de celui-ci est modifiée par la mise en mouvement des interfaces liquides via les vibrations. On montre qu'il est possible d'observer un régime de croissance différent du régime inertiel classique en $t^{1/2}$ généralement observé pour de l'eau.

En perspective, il serait intéressant d'étudier plus en détail ce régime, mais aussi l'effet de tensio-actif sur la coalescence. De plus, il serait intéressant, d'étendre l'étude à des surfaces plus complexes comme des surfaces superhydrophobes et d'observer en détail la ligne de contact par la vue du dessous au cours de la coalescence sur des substrats transparents difficilement accessibles à grand angles de contact. On pourrait ainsi observer la forme de l'interface déformée par l'air piégé.

Pont capillaire : Angles de contact dynamique

Dans les chapitres précédents nous avons montré que la vitesse de la ligne de contact et l'hystérésis jouaient un rôle déterminant sur les phénomènes qui impliquent la mise en mouvement de la ligne, comme les vibrations et la coalescence dynamique de gouttes. Dans la dernière partie de cette thèse, nous avons cherché à comprendre plus précisément la relation entre l'angle de contact et la vitesse. Le cas qui nous a intéressé est celui des surfaces superhydrophobes qui a été très peu exploré jusqu'ici pour ces surfaces, et pas du tout pour de l'eau. Pour ce faire, on a choisi d'utiliser un montage appelé "méthode du pont capillaire" qui permet de forcer la vitesse et le sens de déplacement de la ligne de contact. Cette méthode permet de mesurer les angles d'avancées et de reculées pour des grandes surfaces de contact (centimétriques) sans effets de bord. Dans ce chapitre, nous présentons en détail la méthode du pont capillaire employée ainsi que le traitement des données pour une expérience de tirage typique. Les résultats sont ensuite présentés, pour enfin mettre en avant les différences significatives du comportement de l'angle de contact dynamique suivant la texturation de la surface pour de l'eau.

4.1 Fabrication des surfaces courbes.

Les surfaces étudiées pour les expériences de pont capillaire sont courbes et transparentes. Nous décrivons ici la méthode de fabrication de ces surfaces développée récemment par C. Cohen *et al* [22]. La Figure 4.1 représente un schéma de la pièce de serrage qui permet de poser une couche d'épaisseur régulière sur la surface. Le principe de cette méthode est d'utiliser un moule déformable en PDMS pour déposer une couche de résine photosensible (NOA81, Norland Optical Adhesive, Cranbury, NJ, USA) sur la surface courbe à traiter.

4.1.1 Surface lisse.

Les surfaces lisses utilisées sont : une surface en Téflon et une surface en NOA. La surface en Téflon est une lentille de verre sur laquelle est spin-coatée une fine couche de Téflon AF1601 dans du Fluorinert FC 75 de ratio (1 :2) à 100 *rpm* pendant 6 *s* puis 1000 *rpm* pendant 40 *s*.

La Figure 4.1 schématise le dispositif de serrage et la fabrication des surfaces lisses en

NOA. Pour obtenir la surface courbe en NOA, un plat de PDMS suffisamment fin pour être déformé est fabriqué au ratio (1 :10). Une fois le plat de PDMS réalisé, on le place dans le dispositif de serrage. Il épouse la forme d'une lentille de verre. Une goutte de NOA est déposée au centre de la lentille à traiter, puis cette dernière est placée dans le dispositif. Les deux lentilles séparées par le PDMS sont serrées afin que la colle "NOA" recouvre la surface du verre. Le dispositif de serrage est alors mis sous une lampe UV pendant 35s pour que la NOA réticule. Enfin, on retire le dispositif et on démoule le plat de PDMS, obtenant ainsi une surface courbe en NOA lisse.

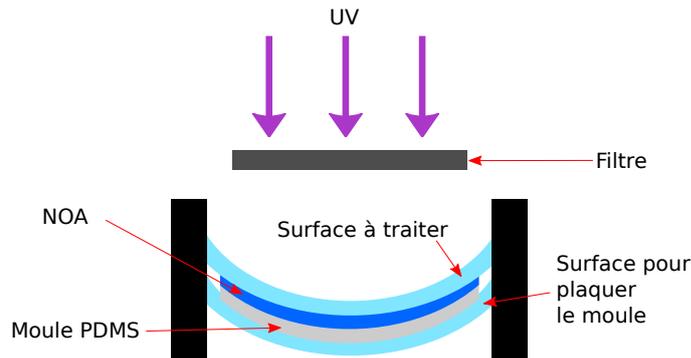


FIGURE 4.1 – Schéma du dispositif de serrage utilisé pour la fabrication des surfaces courbes.

4.1.2 Surface micro-texturée.

Pour obtenir des surfaces texturées on utilise la même méthode mais avec un moule en PDMS à la place du plat. La fabrication de ces surfaces se décompose donc en plusieurs étapes successives décrites ci-dessous.

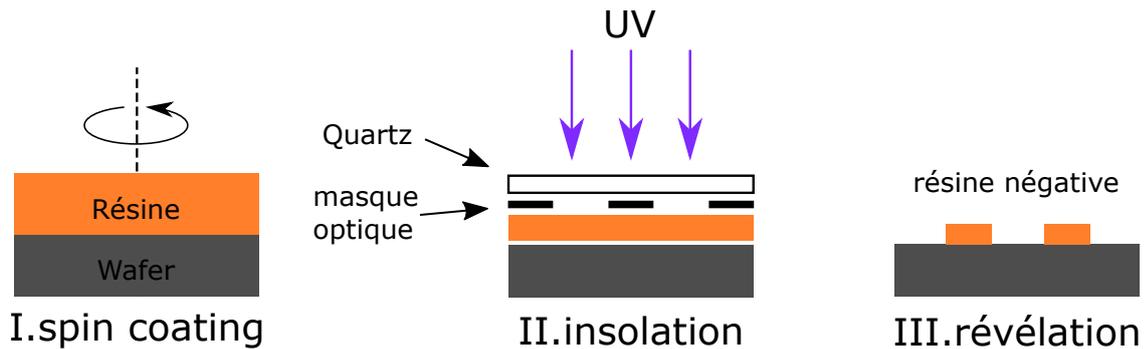


FIGURE 4.2 – Fabrication du moule en SU-8.

Étape 1 : fabrication du moule en SU-8 (Figure 4.2) - La première étape consiste à créer un moule négatif en SU-8 de la texturation voulu sur un wafer de silicium. Le SU-8 est une résine photosensible couramment utilisée pour la fabrication de systèmes micrométriques par photolithographie [116]. Un wafer de silicium est chauffé à 100°C pendant quelques minutes. La surface du wafer est ensuite activée au plasma pendant une minute afin de favoriser l'adhésion de la résine.

Une première couche de quelques microns de SU-8 2002 est déposée par spin-coating puis cuite en respectant les indications présentes dans la documentation du fournisseur de la résine. Cette première couche permet de consolider l'adhésion des futurs piliers.

Une seconde couche de SU-8 est déposée. L'épaisseur de cette seconde couche détermine la hauteur des futurs piliers. Une première cuisson est réalisée en chauffant sur une plaque le wafer à 65°C (2min) puis à 95°C (5min) avant de laisser refroidir. Le wafer est ensuite insolé sous une lampe UV à travers un masque optique qui définit le réseau et le diamètre des piliers. La surface est insolée pendant un temps calculé qui dépend de l'épaisseur et de la puissance de la lampe UV. Lors de l'insolation seuls les piliers réticulent. Une seconde cuisson est réalisée identique en température, mais avec des temps plus courts. Enfin, la résine non réticulée entre les piliers est retirée dans un bain de PGMEA (Propylène glycol methyl ether acetate) puis avec un rinçage à l'isopropanol. Le moule négatif obtenu est ensuite silanisé afin de faciliter le démoulage du PDMS lors de la prochaine étape.

La silanisation est réalisée en chauffant le substrat à 100°C pendant 2 minutes puis il est passé au plasma pendant une minute. Le substrat est placé ensuite dans une boîte de pétri remplie de cristaux (absorbant l'humidité) et d'une capsule contenant quelques gouttes de silane (1H,1H,2H,2H-Perfluorooctyl-trichlorosilane, N° CAS : 78560-45-9). La boîte est fermée hermétiquement pendant une nuit. Le silane volatil se dépose sur le substrat et s'adsorbe. L'excédent de couche de silane est retiré par plusieurs rinçages successifs de chloroforme/toluène et d'eau distillée.



FIGURE 4.3 – Création du moule en PDMS.

Étape 2 : création du moule en PDMS (Figure 4.3) - Un mélange de PDMS à base de sylgard 184 et de réticulant, de ratio 10 :1 est préparée puis dégazé. Le PDMS est ensuite coulé sur le moule négatif de SU-8 et cuit dans une étuve à 70°C pendant plusieurs heures. Une fois la cuisson terminée, le PDMS est démoulé délicatement puis silanisé avec le même protocole décrit à l'étape précédente.

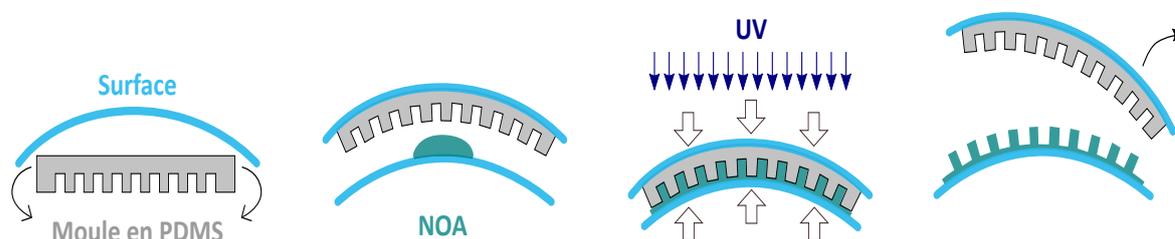


FIGURE 4.4 – Impression de la texturation en NOA sur la lentille de verre.

Étape 3 : impression de la texturation en NOA (Figure 4.4) - Le moule en PDMS est placé sous vide pendant 20 minutes pour retirer les possibles résidus d'eau qui peuvent se former dans la structure par condensation. Pendant ce temps, la future surface (lentille de verre) est nettoyée à l'éthanol, rincée à l'eau distillée et séchée avec de l'air sec. Une

fois l'humidité complètement retirée, la surface en verre est activée au plasma pendant une minute.

Comme expliqué plus haut, le moule PDMS déformable est utilisé pour imprimer le motif souhaité sur la surface incurvée en confinant une goutte de NOA entre deux surfaces similaires, le moule déformable adopte la forme de la surface courbe souhaitée et la NOA remplit les interstices du moule comme le montre la Figure 4.4. Après insolation UV, on obtient les piliers en NOA sur la surface courbe. La Figure 4.5 présente des images typiques passées au MEB des surfaces courbes obtenues.

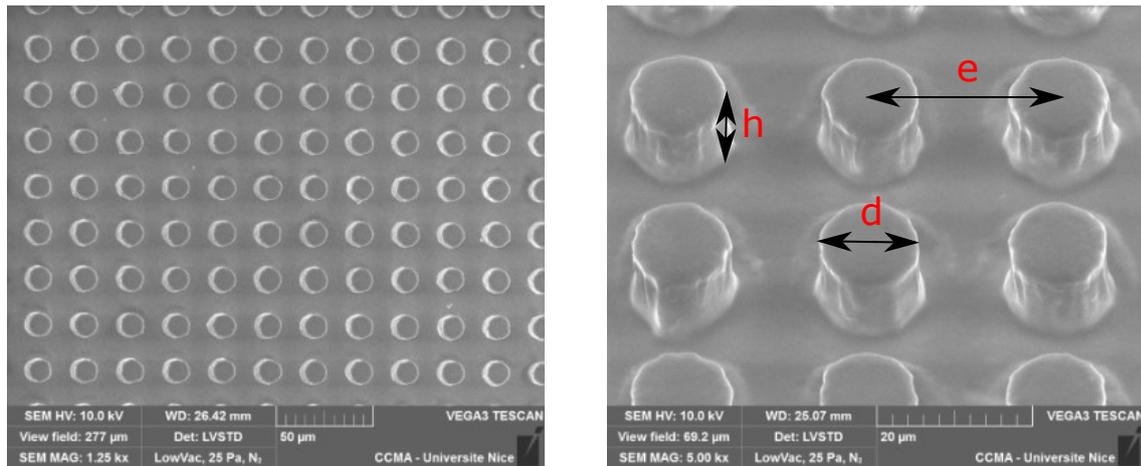


FIGURE 4.5 – Images MEB d'une surface micro-texturée courbe.

Traitement chimique - L'étape finale de fabrication des surfaces superhydrophobes consiste en l'application d'un traitement chimique. Pour cela, une couche de Téflon est déposée à l'aide du spin-coater avec un mélange 1 :2 de Téflon AF1601 / Fluorinert FC75 sur les surfaces texturées et une surface en verre lisse. Une surface lisse en NOA est silanisée avec le même protocole décrit plus haut.

Le Tableau 4.1 suivant présente les propriétés géométriques des surfaces réalisées, avec d le diamètre des piliers, e l'espacement centre à centre des piliers, h la hauteur des piliers et Φ la fraction surfacique.

Caractéristiques des surfaces				
Dénomination	d (μm)	e (μm)	h (μm)	Φ
Lisse	0	0	0	1
C-d10e25h25	10	25	25	0.32
C-d20e70h100	20	70	100	0.2

TABLE 4.1 – Dimensions caractéristiques de la texturation des surfaces.

4.2 Méthode du pont capillaire.

Le principe général de la méthode du pont capillaire a été développé initialement au LPS à Orsay, dans l'équipe de L. Léger pour caractériser différents traitements de surface faiblement adhésifs [117]. Elle consiste à mettre en contact une surface courbe à

caractériser avec un bain liquide, engendrant la formation d'un pont liquide nommé pont capillaire. Le verre est choisi courbe pour stabiliser la position du pont liquide [8, 118]. Une fois le pont capillaire formé, on met en mouvement la ligne triple en déplaçant la surface verticalement.

4.2.1 Dispositif expérimental.

Pour étudier la dynamique de l'angle de contact, nous avons choisi d'utiliser la technique du pont capillaire, car elle permet d'étudier des grandes surfaces de contact avec une bonne précision, à vitesse contrôlée et sans effets de bord.

La Figure 4.6 représente un schéma du dispositif expérimental. Le substrat courbe est maintenu fermement sur son périmètre par une pièce métallique circulaire de serrage. Cette pièce est ensuite fixée au système de déplacement vertical. La translation verticale est assurée par une vis sans fin reliée à un moteur pas-à-pas contrôlé par une interface LabView développée dans le laboratoire en collaboration avec G.Sauder. Le dispositif permet ainsi de contrôler les mouvements verticaux de la platine sur une distance de 10cm avec une précision de quelques micromètres pour des vitesses de translation comprises entre 1 et 5000 $\mu\text{m}/\text{s}$.

L'observation du pont capillaire est réalisée selon deux points de vue à l'aide de deux caméras Pixelink PL-B776 monochromes de résolution 1024 \times 1024, munies d'objectifs zoom NAVITAR de focales 18-108 mm à monture C. L'une des caméras est positionnée verticalement et alignée au-dessus du centre du verre. Elle permet le suivi de l'aire de contact projetée du liquide sur le verre courbe. La seconde caméra est positionnée horizontalement afin de permettre l'observation du profil du pont capillaire. Cette seconde caméra peut être remplacée par une caméra rapide (Phantom V7.11) pour les grandes vitesses de tirage.

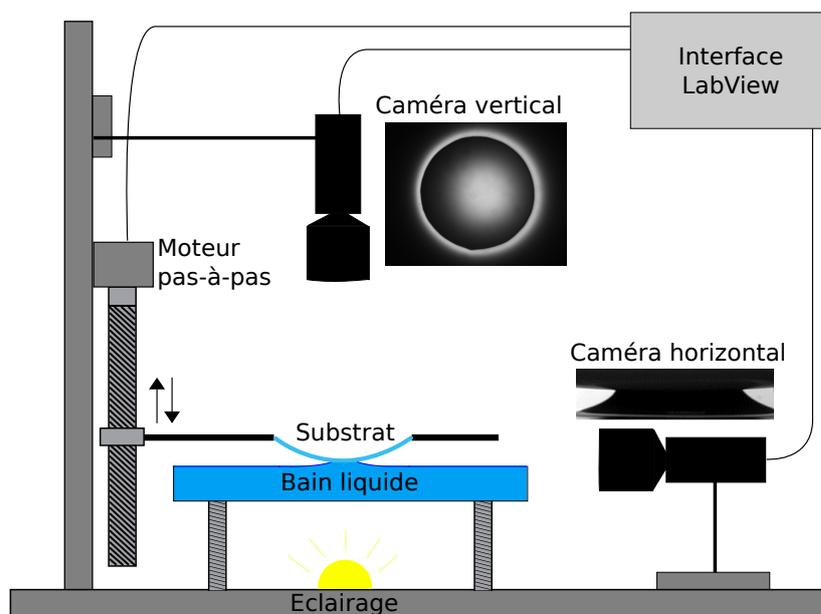


FIGURE 4.6 – Dispositif expérimental de la méthode du pont capillaire.

Un réservoir cylindrique en verre, rempli d'eau déionisée, est placé sous le substrat.

Il est choisi suffisamment grand en dimension, pour réduire les effets de bord sur le pont capillaire. Le choix de l'éclairage est important pour faciliter l'analyse des images. Deux types d'éclairages sont utilisés pour nos expériences :

- Un éclairage ponctuel anisotrope (une LED), positionné sous le réservoir permet l'observation de l'aire de contact en tirant profit de la courbure de l'interface liquide. En effet, ayant une source anisotrope, la réflexion et la réfraction permettent de créer un contraste au niveau de la ligne de contact dont l'intensité varie en fonction de l'angle de contact. Cet éclairage donne aussi accès aux déformations locales de la ligne de contact qu'on ne peut pas distinguer correctement avec l'utilisation d'un éclairage diffus et d'une grille comme dans [22].
- Une source de lumière diffuse (un panneau LED), disposée face à la caméra horizontale. Elle permet l'observation du profil du pont capillaire et du substrat. Un cache rectangulaire est positionné devant le panneau LED afin de concentrer l'éclairage au niveau du pont liquide.

4.2.2 Protocole expérimental.

La Figure 4.7 schématise le protocole expérimental d'une expérience typique. Il se décompose en quatre étapes principales. Dans un premier temps, la surface solide est approchée verticalement de la surface libre du bain liquide jusqu'au contact, à une vitesse (lente) de $1\mu\text{m}/\text{s}$, pour ne pas faire un contact brutal. Un pont capillaire se crée (A). Cette hauteur est définie comme $h_0 = 0$, l'origine des distances verticales. Elle représente la hauteur du bain liquide à l'infini. L'incertitude sur h_0 est donc de l'ordre de $\Delta h = 1\mu\text{m}$ pour le moteur, mais elle sera discutée plus tard dans le manuscrit. La distance entre l'apex du verre et la surface du bain à l'infini, noté h est arbitrairement choisie positif au-dessus de la surface du bain et négatif sous la surface.

Le verre est ensuite enfoncé dans le bain à vitesse constante V jusqu'à une hauteur $-h_m$ (B). Une fois le substrat enfoncé, le verre est tiré vers le haut à vitesse constante jusqu'à une certaine distance h_m (C). À vitesses de tirage modérées, il est possible d'arrêter le mouvement avant la cassure du pont. Lorsque la cassure survient, une goutte peut rester accrochée au substrat (D). Au cours de ces étapes, la hauteur h est enregistrée par le logiciel LabView. L'aire de contact et le profil du pont liquide sont enregistrés par les deux caméras.

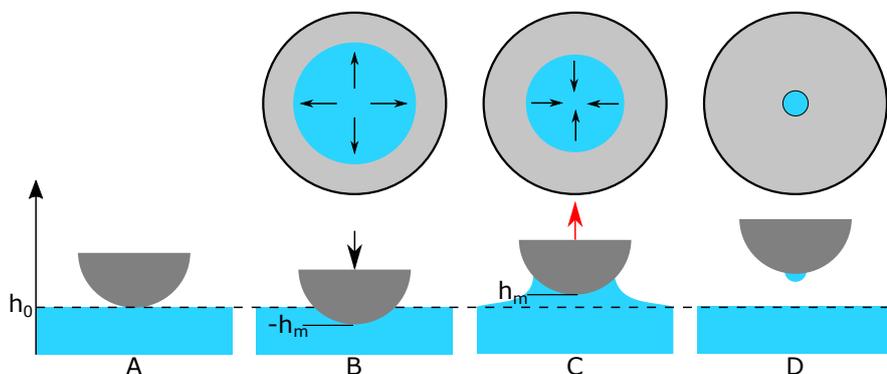


FIGURE 4.7 – Schéma du protocole expérimental.

Lorsque la surface est enfoncée dans le bain, quand on atteint l'angle d'avancée θ_a la ligne de contact avance et l'aire de contact augmente. Lorsque la surface s'éloigne du bain liquide, quand on atteint l'angle de reculée θ_r , la ligne de contact recule et l'aire de contact diminue jusqu'à la rupture du pont liquide.

La surface est bien rincée avant chaque série d'expériences avec de l'éthanol et de l'eau distillée puis séchée avec de l'azote en salle blanche. Trois cycles enfoncement/tirage à vitesse constante de $20\mu m/s$ sont réalisés avec chaque surface car il a été observé que le premier cycle était toujours différent des suivants. L'objectif de ces cycles préliminaires est donc d'atteindre un état d'équilibre pour notre surface et notre bain liquide.

4.2.3 Analyse d'images.

Vue de côté.

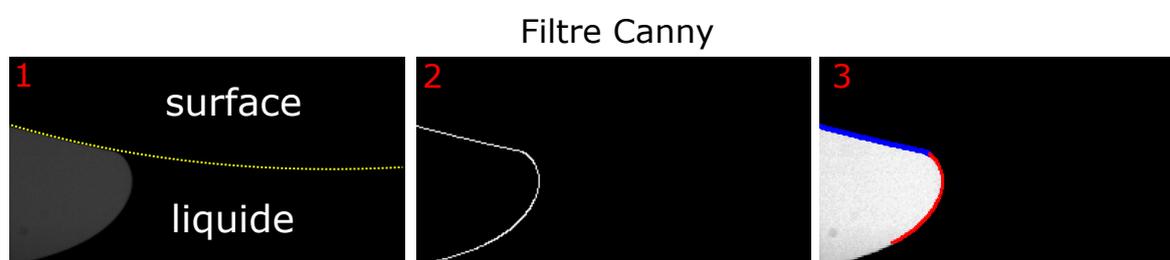


FIGURE 4.8 – Étapes du traitement d'image du profil du pont capillaire

La Figure 4.8 présente les différentes étapes du traitement d'images du profil du pont capillaire en vue de côté. Dans un premier temps, on découpe l'image pour n'avoir qu'un côté du profil. On réalise une soustraction d'une valeur fixe à tous les niveaux de gris afin de retirer les différents reflets présents dans la partie centrale du pont capillaire. Ces reflets peuvent perturber les étapes suivantes de détection et de mesure. L'image 1 illustre le pont capillaire après soustraction. Nous avons délimité à titre informatif la position du substrat solide et celle du liquide pour une meilleure compréhension. On applique ensuite un filtre Canny [119] pour détecter le contour qui sépare l'air de notre système. On obtient alors le contour représenté sur l'image 2. Enfin, l'image 3 présente les contours détectés associés à la partie du substrat (bleue) et au profil du pont liquide (rouge).

Vue du dessus.

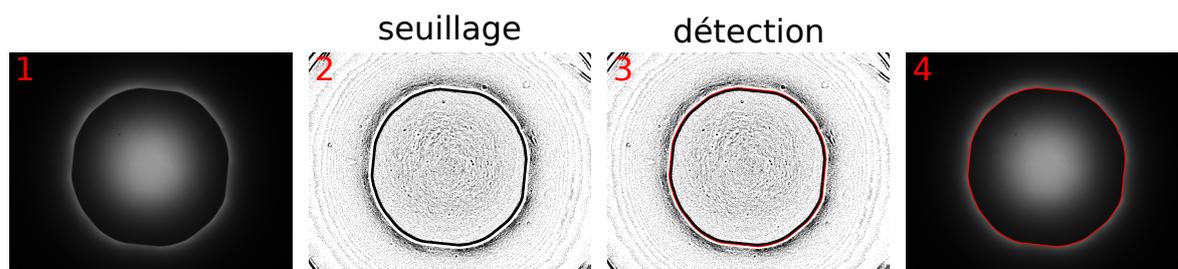


FIGURE 4.9 – Étapes du traitement d'image de l'aire de contact.

La Figure 4.9 illustre les étapes du traitement d'images pour mesurer l'aire de contact du liquide sur le substrat. Sur l'image 1, on a l'image brute de l'aire de contact. Comme expliqué dans la section "dispositif expérimental", la ligne de contact se trouve au niveau du second halo lumineux. Les grandes différences de contraste proviennent de la source lumineuse utilisée. L'intensité lumineuse n'est pas homogène sur l'image, mais aussi d'une image à l'autre lorsque la ligne de contact se déplace. Nous avons alors décidé d'utiliser une méthode de seuillage locale pour chaque image. La méthode choisie est la méthode de Otsu locale [106]. Elle permet de s'affranchir des variations du contraste localement en analysant par petites zones l'image. L'image est donc subdivisée en petites zones et pour chaque zone, un seuillage est appliqué localement. Il est possible de choisir la dimension des zones d'analyses. L'image 2 présente l'image binarisée par la méthode de seuillage locale décrite. Sur l'image binarisée on récupère tous les contours fermés présents à l'aide des fonctions présentes dans la bibliothèque OpenCV de Python. En appliquant des conditions sur la taille et la circularité des contours fermés, on retrouve celui qui correspond à la ligne de contact. La ligne de contact est représentée en rouge sur l'image binarisée 3 et sur l'image brute 4.

A partir de cette détection, on mesure l'aire de contact projetée A_p , le centre de masse et le périmètre de la ligne de contact. Les déformations locales de la ligne de contact peuvent également être récupérées en traçant la distance r entre le centre de masse et chaque pixel de la ligne de contact pour différentes valeurs de l'angle Φ , l'angle formé entre l'axe d'origine et la position sur la ligne. La Figure 4.10 présente $r(\Phi)$ pour une expérience de tirage. On peut donc suivre les conformations de la ligne au cours du mouvement. L'utilisation de l'éclairage choisi permet ainsi de pouvoir suivre l'aire de contact, mais aussi permet de pouvoir étudier l'influence de défauts sur la ligne de contact [120], qui en fait une particularité intéressante de cette méthode pour l'étude du mouillage.

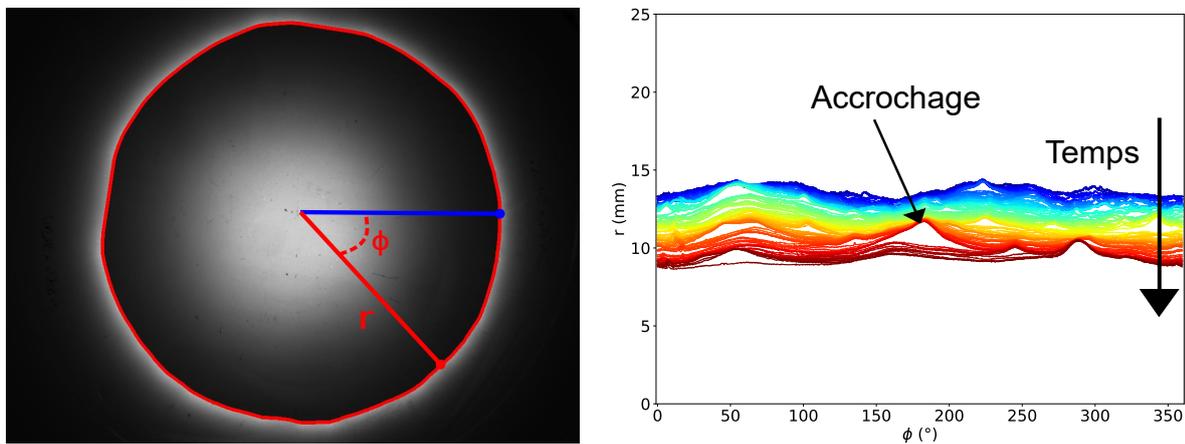


FIGURE 4.10 – Analyse radiale de la ligne de contact, à droite : courbes $R(\Phi)$, à différents temps donné par la couleur.

Sur la Figure 4.11, on trace la mesure de l'aire de contact en fonction de h . L'évolution de $A(h)$ se décompose en trois régimes. Dans un premier temps, lorsque le substrat est enfoncé dans le bain, l'aire mouillée augmente linéairement avec h (courbe en noir). Puis, quand le tirage commence, l'aire mouillée reste constante jusqu'à une certaine hauteur. Enfin passé cette hauteur, l'aire diminue linéairement avec h avec une pente proche

de celle pour l'enfoncement. Dans les derniers instants, la cassure survient et A décroît brusquement.

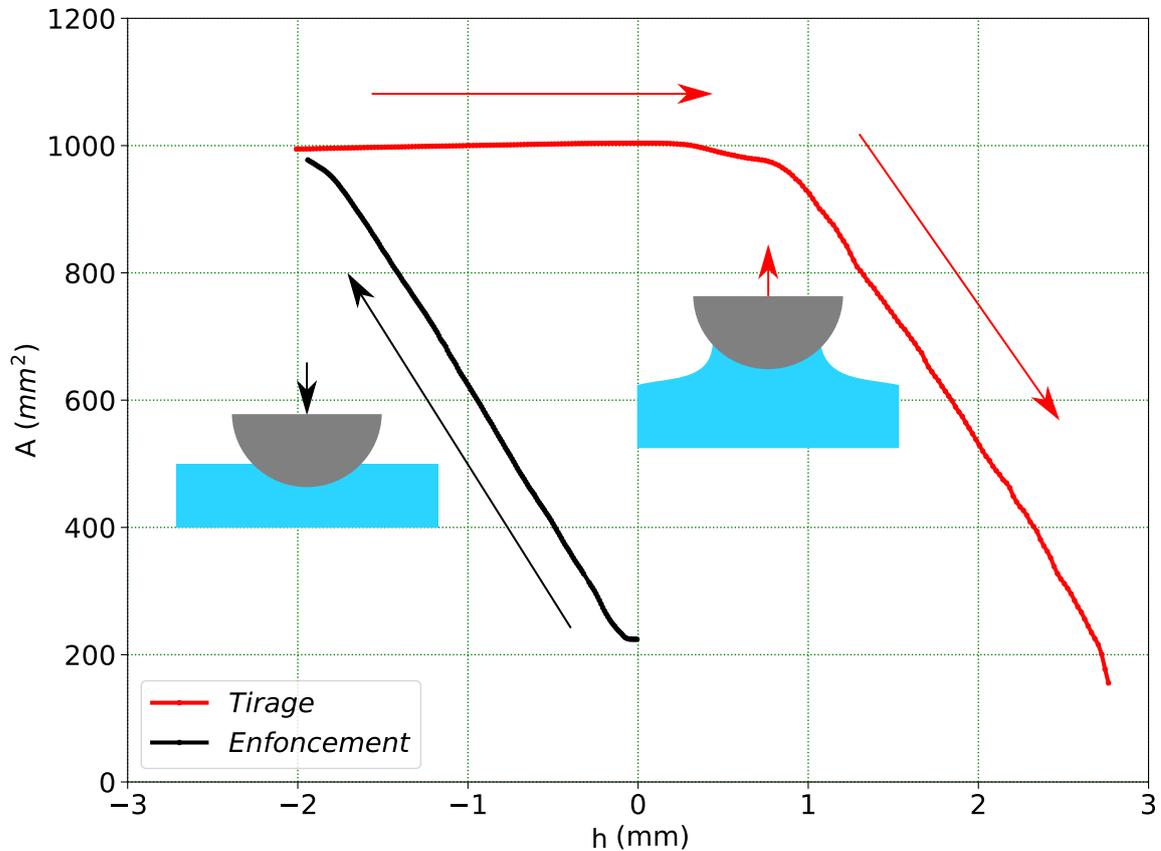


FIGURE 4.11 – Mesure de l'aire de contact en fonction de la hauteur h au cours d'une portion de cycle.

4.2.4 Mesure de l'angle de contact.

Deux méthodes ont été développées pour mesurer les angles de contact : Soit par visualisation de côté et mesure directe en un point, soit par visualisation de dessus et mesure indirecte par calcul d'une valeur moyenne. Nous présentons les deux méthodes.

Vue de côté.

On mesure l'angle de contact à partir du profil détecté par l'analyse d'image. Le profil détecté se présente sous la forme d'un vecteur contenant les positions de tous les pixels du contour. Dans un premier temps on délimite à la main les pixels associés au substrat et ceux associés au profil du pont liquide comme sur dernière image de la Figure 4.8. La principale difficulté et source d'erreur réside dans la détermination du point triple. A cause de la résolution de l'image et la présence d'ombres, la position exacte du point triple ne peut pas être connue avec exactitude. La position du point triple est donc estimée à plus ou moins 4 pixels. Cette estimation induira une incertitude d'environ $\pm 7^\circ$ sur la mesure

de l'angle de contact. Une fois les zones délimitées, on ajuste les points du substrat et ceux d'une partie du pont liquide proche de la ligne par deux cercles d'équations :

$$R_{\text{cercle,surface}}^2 = (x_1^2 - x)^2 + (y_1^2 - y)^2 \quad (4.1)$$

$$R_{\text{cercle,pont}}^2 = (x_1^2 - x)^2 + (y_1^2 - y)^2 \quad (4.2)$$

La différence entre ces deux équations donne une équation de la forme $Ax^2 + Bx + C$ dont les racines sont les points d'intersection des deux cercles. On redéfinit alors la position de la ligne triple par le point d'intersection qui convient. L'angle de contact θ est estimé en calculant l'angle formé entre les tangentes de chaque cercle au point d'intersection. La Figure 4.12 illustre la mesure de l'angle de contact. L'angle de contact mesuré est un angle de contact local.

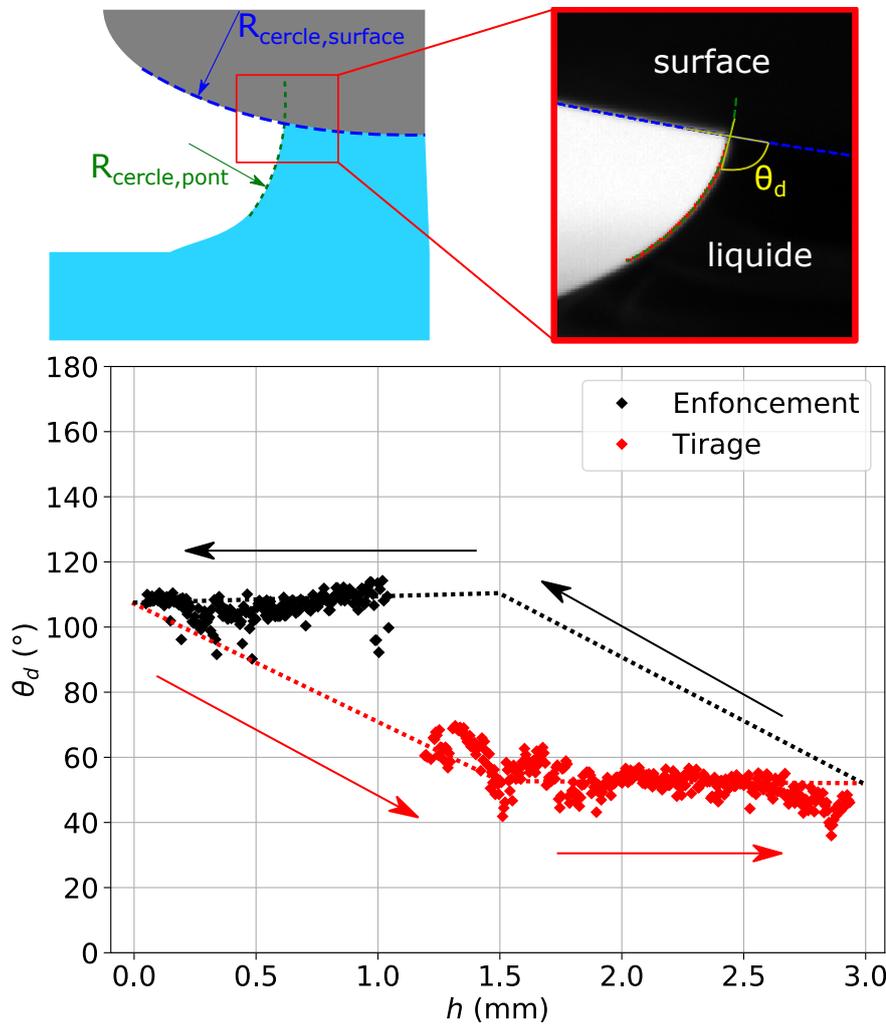


FIGURE 4.12 – Angle de contact en fonction de la hauteur au cours d'un cycle.

La mesure de l'angle de contact a été automatisée lorsque la ligne de contact est en mouvement. Tout d'abord, on repère à la main la position de la ligne comme décrit précédemment. Puis l'algorithme réalisera les mêmes étapes décrites en se basant à chaque

fois par rapport à l'image précédente. Le suivi de la ligne de contact est l'élément le plus complexe à mettre en place, qui a posé le plus gros problème. On cherche la position du point triple à partir de l'ajustement circulaire du substrat. Pour cela, on mesure l'écart de chaque pixel par rapport à l'ajustement. Quand l'écart passe au-delà d'une limite fixé à 5 pixels alors on considère que le point triple se trouve dans les pixels précédents. Il s'ensuit alors les étapes classiques de la mesure de l'angle de contact. Il arrive que le programme n'arrive pas à mesurer l'angle de contact ou qu'il mesure un angle de contact aberrant, dans ce cas les points sont identifiés et supprimés. Une dernière vérification visuelle est réalisée en observant une vidéo en temps réel de la détection par le programme.

Vue du dessus.

Il est possible de déterminer le profil du pont liquide à partir de la mesure de l'aire de contact du liquide sur le substrat A et de la hauteur h entre l'apex du verre et la surface du bain. En résolvant l'équation de Laplace pour cette interface Liquide/air, avec les conditions aux limites de raccordement du pont sur le verre et à l'infini [118], on peut déterminer indirectement l'angle de contact à partir des mesures de $A(h)$. Pour un couple $(A - h)$ donné, il existe un seul profil stable pour le pont capillaire formant un angle de contact unique avec la surface. L'équation de Laplace pour rappel s'écrit :

$$\delta P = \gamma C \quad (4.3)$$

avec δP la différence de pression et C la courbure de l'interface. Cette résolution est complexe et non analytique. Afin de simplifier le problème, nous ferons les hypothèses suivantes :

- Le pont est toujours axisymétrique.
- Le liquide se raccorde à l'horizontale à l'infini.
- Le régime est quasi-statique.

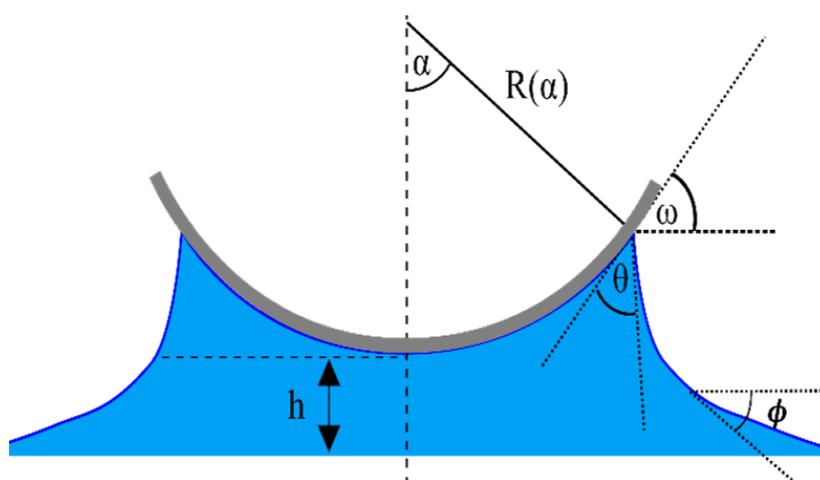


FIGURE 4.13 – Schéma du pont capillaire numérique tirée de [22].

Avec ces hypothèses, la forme du pont est pilotée uniquement par la pression capillaire et la tension de surface du liquide. En fonction des dimensions du pont celui-ci sera dominé

soit uniquement par la capillarité (petit pont) soit par la capillarité et la gravité (grand pont). Lorsque le pont est considéré dynamique, des effets inertiels et visqueux font leur apparition et compliquent grandement les équations ce pourquoi on se restreindra au cas quasi-statique pour l'utilisation de cette méthode.

La Figure 4.13 schématise la géométrie du pont capillaire. Le problème est résolu numériquement via un algorithme développé par Yann Bouret similaire à celui utilisé dans [22]. Il résout les équations intrinsèques pour remonter à angle de contact. Dans un premier temps, on définit les paramètres géométriques de notre substrat tel que :

$$\begin{cases} X(\alpha) = R(\alpha)\sin(\alpha) \\ Y(\alpha) = h + R(0) - R(\alpha)\cos(\alpha) \\ \omega(\alpha) = \alpha - a\sin\left(\frac{R'(\alpha)}{\sqrt{R^2(\alpha)+R'^2(\alpha)}}\right) \end{cases} \quad (4.4)$$

avec h la distance entre la surface liquide et l'apex du verre, $R(\alpha)$ le profil du substrat et $\omega(\alpha)$ l'angle tangent à la surface de la lentille avec l'axe r . Dans le cas où le substrat est parfaitement sphérique $R(\alpha) = R_0$ et $R'(\alpha) = 0$. On définit les coordonnées réduites telles que :

$$\begin{cases} u = r/R_0 \\ v = z/R_0 \\ \tau = s/R_0 \end{cases} \quad (4.5)$$

L'angle de contact θ dépend de deux angles $\omega(\alpha)$ et de φ_0 l'angle tangent au profil du pont liquide et l'axe r . Pour cela, le profil du pont liquide est décrit par l'abscisse curviligne s du pont ($ds = dr + dz$) et $\phi(s)$. En combinant les équations intrinsèques et la loi de Laplace, on obtient le couple d'équations pour le profil ci-dessous :

$$\begin{cases} \frac{\partial\varphi}{\partial\tau} = \frac{R_0}{\kappa-1} v(\tau) - \frac{\sin(\phi(\tau))}{u(\tau)} \\ \frac{\partial u}{\partial\tau} = \cos(\phi) \\ \frac{\partial v}{\partial\tau} = \sin(\phi) \end{cases} \quad (4.6)$$

avec comme conditions aux limites :

$$\begin{cases} u(0) = \frac{R(\alpha)}{R_0}\sin(\alpha) \\ v(0) = \frac{h}{R_0} + 1 - \frac{R(\alpha)}{R_0}\cos(\alpha) \\ \phi(0) = [\omega(\alpha) + \theta] - \pi \end{cases} \quad (4.7)$$

La valeur de α est déduite de l'aire de contact A par la relation :

$$\alpha = \sin^{-1}\left(\sqrt{\frac{A}{\pi R(\alpha)^2}}\right) \quad (4.8)$$

Pour chaque mesure de l'angle de contact, l'intégration des équations est réalisée par la méthode de Dormand-Prince. Lors de l'intégration du profil, celui-ci peut se comporter de deux façons en fonction de l'angle θ . Il peut soit diverger et intercepter l'axe z , ou bien ne jamais intercepter l'axe. Pour parer à ces problèmes, un algorithme de vérification permet de faire converger la valeur de θ qui correspond à la solution physique avec une précision numérique de 0.1° . On peut donc à partir des mesures $A(h)$ calculer les valeurs de θ pour chaque hauteur, comme on peut le voir sur la Figure 4.14.

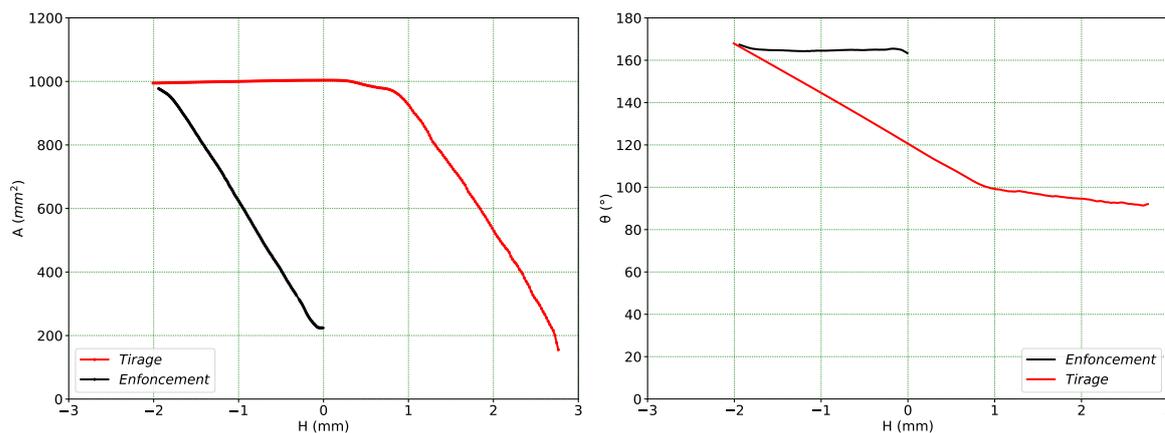


FIGURE 4.14 – Exemple de mesure d’angle de contact via le code a partir des mesures $A(h)$.

4.2.5 Mesure de la vitesse de la ligne de contact.

Vue de côté.

À partir de la vue de côté, on récupère la position de la ligne de contact X sur le substrat au cours du temps. La Figure 4.15.a) représente l’évolution de la position de la ligne en fonction du temps jusqu’à la rupture du pont capillaire.

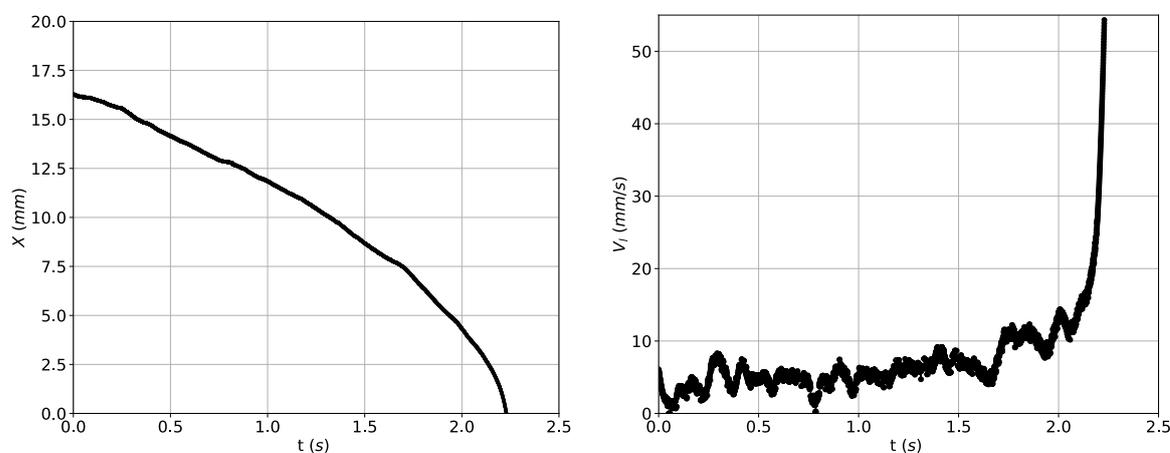


FIGURE 4.15 – Estimation de la vitesse locale de la ligne de contact lors d’un tirage ($V = 1000\mu\text{m/s}$) en vue de coté.

La vitesse instantanée de la ligne de contact s’obtient en dérivant la position X au cours du temps : $V_l = \frac{dX}{dt}$. La Figure 4.15.b) illustre la vitesse instantanée de la ligne de contact au cours du temps. On observe que la vitesse de la ligne n’est pas constante, mais se décompose en deux régimes. Un premier régime où la vitesse de la ligne augmente quasi-linéairement en moyenne, puis un régime où elle accélère rapidement. Cette évolution de la vitesse est induite à la fois par la géométrie courbe du substrat et la cassure du pont capillaire qui accélère le rétrécissement du rayon. Donc, une vitesse constante de tirage V ne correspond pas à une vitesse constante de ligne V_l . L’accélération brutale de la ligne

correspond alors au moment où le pont n'est plus stable et tend à la rupture. On note aussi la présence de petites variations de la vitesse au cours du temps. Ces variations sont dues à la résolution de l'image (pixels) et aux accrochages de la ligne de contact sur des défauts. Nous avons donc décidé d'ajuster les courbes $X(t)$ par partie avec des polynômes. En dérivant ces polynômes, on estime la vitesse moyenne de la ligne de contact V_l pour chaque portion. À noter que les images de côté nous permettent de mesurer la vitesse locale de la ligne.

Vue du dessus.

À partir de l'aire de contact du liquide sur le substrat A , mesurée sur les images de vue du dessus, on déduit le rayon moyen de contact $R = \sqrt{A/\pi}$. La Figure 4.16.a) présente l'évolution du rayon au cours du temps lors d'un tirage à $V = 1 \mu\text{m}/\text{s}$. On observe que le rayon est constant pendant un temps à cause de l'hystérésis puis diminue quand l'angle de recul est atteint. On mesure la vitesse de la ligne uniquement lorsque celle-ci est déjà en mouvement en dérivant le rayon au cours du temps : $V_l = \frac{dR}{dt}$. La Figure 4.16.b) représente la vitesse instantanée en fonction du temps. Comme pour la vue de côté, la vitesse se décompose en deux parties (une fois en mouvement) pour les mêmes raisons. Cependant, la faible vitesse d'acquisition de la caméra du dessus ne nous permet pas d'observer la cassure du pont, mais seulement le commencement. De ce fait, on mesure la vitesse seulement dans la partie délimitée par les pointillés noirs, en ajustant par un polynôme d'ordre 2. En dérivant ce polynôme, on estime la vitesse moyenne de la ligne de contact V_l (courbe en pointillés rouges).

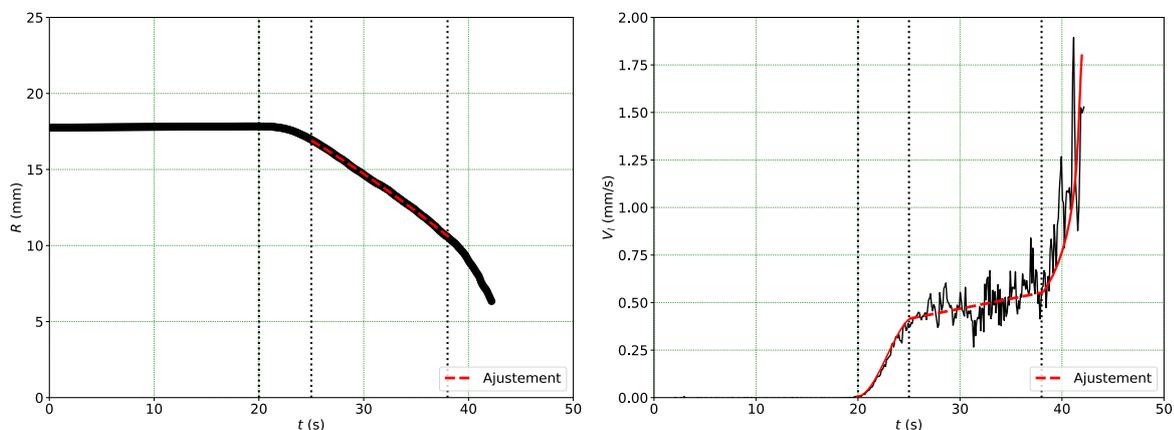


FIGURE 4.16 – Estimation de la vitesse moyenne de la ligne de contact lors d'un tirage ($V = 1 \mu\text{m}/\text{s}$) à partir de la mesure du rayon de contact.

4.2.6 Incertitude expérimentale et sensibilité aux paramètres.

Substrat et platine.

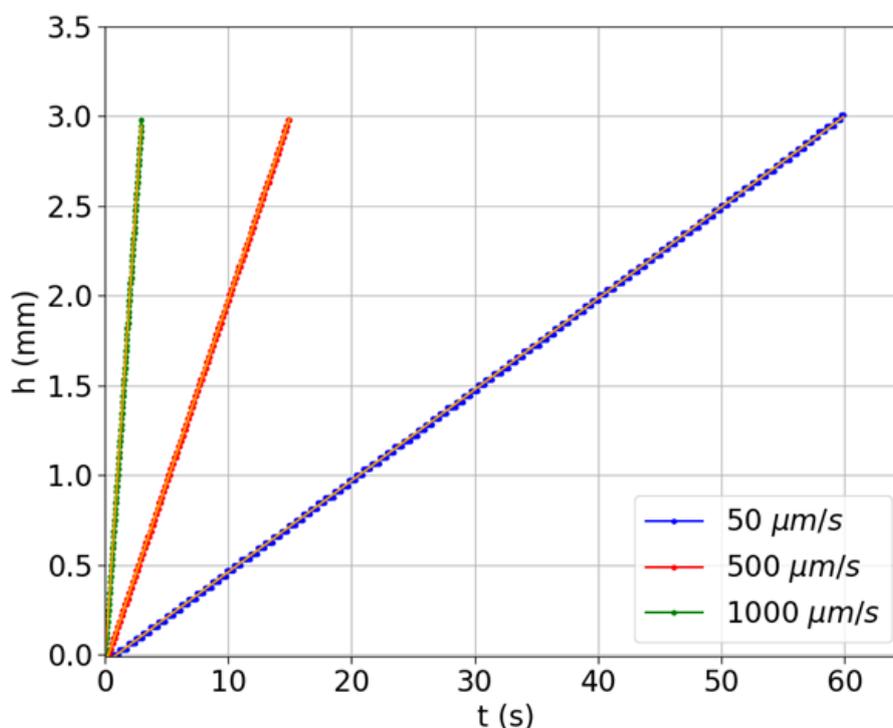


FIGURE 4.17 – Vitesse de translation verticale du substrat pour trois vitesses imposées.

Le substrat est déplacé verticalement par un moteur pas à pas, à vitesse constante. Dans un premier temps, on vérifie que c'est bien le cas, en mesurant ce déplacement en fonction du temps pour différentes vitesses imposées sur une distance de 3mm . Pour cela, on utilise la vue de côté et on vient suivre le déplacement relatif de l'apex du verre h au cours du temps. La Figure 4.17 présente la position verticale h en fonction du temps pour trois vitesses. Les courbes $h(t)$ sont des droites, dont la valeur finale est bien 3mm ce qui indique que les consignes appliquées au moteur sont bien respectées pour la distance. La pente des courbes $\frac{dh}{dt}$ donne la vitesse, qui est elle aussi en bon accord avec celle qui est appliquée au moteur.

Le deuxième point important est la mesure du rayon de courbure du substrat R_c , via la vue de côté. Pour ce faire, à l'aide d'un traitement d'image, le contour du verre est détecté, puis ajusté par un cercle pour mesurer le rayon de courbure (méthode 1, Figure 4.18.a). À noter que cette mesure est réalisée avec l'hypothèse que le verre soit bien sphérique. Afin d'éviter une erreur optique sur la mesure, le rayon est aussi mesuré à l'aide d'un microscope inversé (méthode 2, Figure 4.18.b). À différentes positions sur le verre, on réalise le focus, et on enregistre la position verticale de l'objectif du microscope. De cette manière, on peut également remonter au rayon de courbure à plusieurs endroits. Le tableau ci-dessous regroupe les rayons de courbure mesurés avec les deux méthodes.

Rayons de courbures		
	Méthode 1	Méthode 2
R_c (mm)	80.87 ± 0.05	81.2 ± 0.6

TABLE 4.2 – Mesure des rayons de courbure.

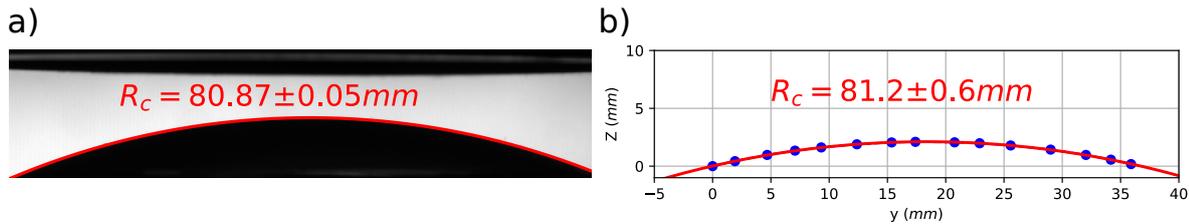


FIGURE 4.18 – a) Mesure du rayon de courbure (méthode 1). b) Mesure du rayon de courbure (méthode 2)

Sensibilité de l'analyse numérique du profil du pont aux paramètres d'analyse.

Ici, on s'intéresse à l'influence et à la sensibilité de la mesure indirecte aux différents paramètres d'entrée. La mesure de l'angle de contact avec la méthode numérique dépend des propriétés du liquide ainsi que de la géométrie du système. Les paramètres sont :

- La longueur capillaire κ^{-1} .
- La hauteur h entre l'apex du verre et la position verticale de la surface du bain liquide à l'infini.
- L'aire de contact A .
- Le rayon de courbure du substrat.

La longueur capillaire représente les propriétés du liquide. Pour étudier son effet sur les mesures de l'angle, nous avons tracé pour une courbe typique $A(h)$ l'équivalent $\theta(h)$ en faisant varier uniquement la longueur capillaire. On se base sur cette même courbe pour illustrer l'influence de tous les paramètres. La Figure 4.19.a) présente les courbes $\theta(h)$ pour cinq valeurs de longueur capillaire comprises entre 2.4 et 2.8 mm. Cette gamme de longueur correspond à une variation de la tension de surface de 56.10^{-3} à $76.10^{-3} \text{ N.m}^{-1}$. Sur la Figure 4.19.b), on trace la valeur de l'angle de contact pour trois hauteurs en fonction de κ^{-1} . L'angle de contact augmente bien quand la longueur capillaire augmente. On note qu'une variation de $\pm 5.10^{-3} \text{ N.m}^{-1}$ peut induire une différence sur l'angle de $\pm 4^\circ$. Cette variation constitue la première source d'incertitude sur la mesure de θ . Nous avons donc mesuré la tension de surface de l'eau utilisée qui vaut $\gamma = 70.10^{-3} \text{ N.m}^{-1}$.

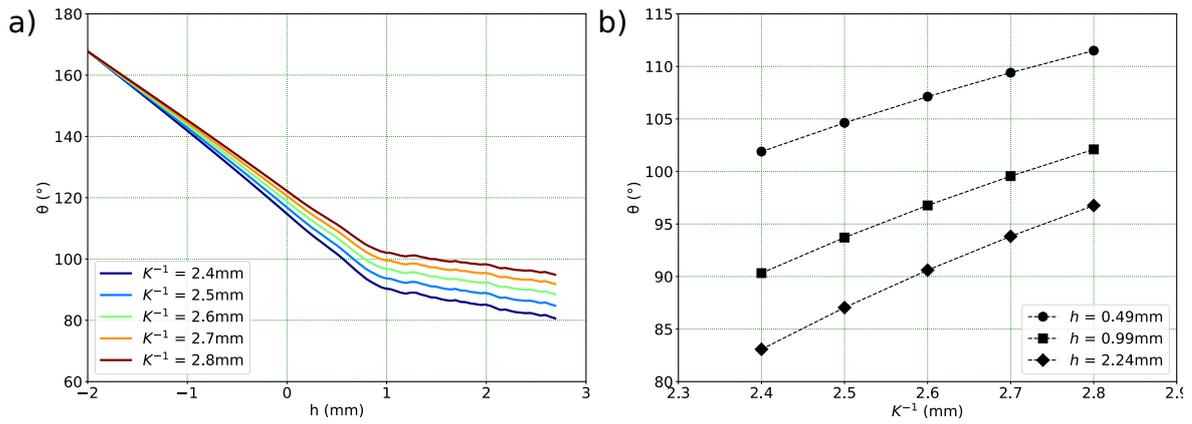


FIGURE 4.19 – Influence de la longueur capillaire sur la mesure numérique de l'angle de contact.

La mesure de l'aire de contact par la vue du dessus représente l'aire de contact projetée A_p sur le verre courbe. L'aire réelle est obtenue par :

$$A = \pi|OB|^2 = \pi \left(\frac{2\pi R_c}{360} \sin^{-1} \left(\frac{\sqrt{A_p/\pi}}{R_c} \right) \right) \quad (4.9)$$

où $A_p = \pi r^2$ et r le rayon projeté sur le schéma 2D de la Figure 4.20.a). La Figure 4.20.b) présente la variation de l'angle de contact pour les trois hauteurs en fonction de l'erreur sur la mesure de A en %. L'erreur estimée sur la mesure de l'aire de contact est $\sim 2.5\%$. Cela se traduit sur une incertitude de $\pm 1.2^\circ$ sur l'angle.

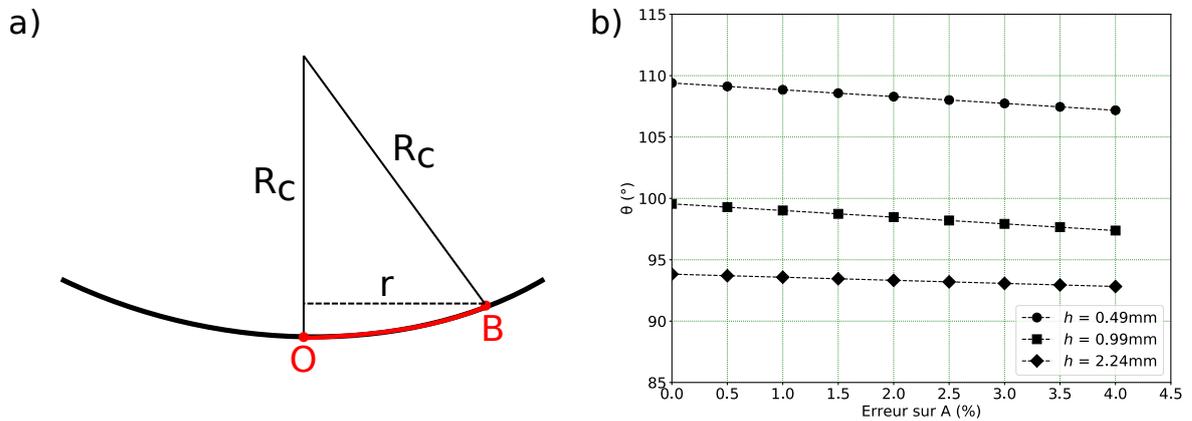


FIGURE 4.20 – Influence de l'incertitude sur l'aire de contact, sur la mesure numérique de l'angle de contact.

Avec la mesure indirecte, il est possible de prendre en compte différents profils pour le substrat (S'ils sont axisymétriques comme dans l'annexe C). Dans notre cas, on considère que le substrat est sphérique. Le rayon de courbure mesuré est $R_c \sim 81 \text{ mm} \pm 1 \text{ mm}$. La Figure 4.21 présente l'influence du rayon de courbure sur l'angle de contact pour les trois hauteurs. On note que l'incertitude de mesure du rayon de courbure (1mm), a un effet négligeable sur la mesure de l'angle de contact inférieur à $\sim 0.5^\circ$.

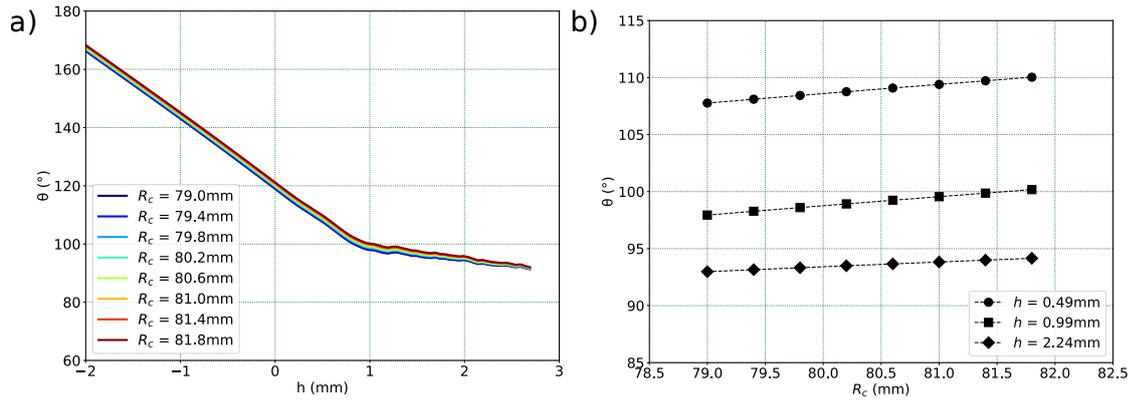


FIGURE 4.21 – Influence du rayon de courbure du substrat, sur la mesure numérique de l’angle de contact.

Enfin, le dernier paramètre influent est la hauteur h . Pour rappel, on détermine la hauteur d’origine lors du contact entre le substrat et le bain liquide avec une précision de $\pm 1\mu m$. Cependant, lors de la formation du pont capillaire, un volume de liquide est déplacé dans le pont. Cette variation de volume induit une variation de la hauteur du bain à l’infini. Nous avons mesuré cette variation de hauteur lorsqu’un pont capillaire quasi-statique est formé sur une surface mouillante. L’objectif est d’avoir une idée de l’ordre de grandeur du changement de la hauteur du bain qui en résulte. Pour cela, on a mesuré la variation de hauteur avec le même principe utilisé dans le Chapitre 3 pour caractériser le déplacement vertical du substrat. Dans ce cas, on fait réfléchir sur la surface du bain un laser jusqu’à un détecteur de position et nous mesurons la variation de hauteur en fonction de la taille du pont liquide. Nous avons mesuré une variation maximale de la hauteur du bain de $\sim 65\mu m$. La Figure 4.22 illustre l’influence d’une variation de hauteur allant de 0 à $90\mu m$ sur l’angle de contact. On note que la variation de hauteur a une forte influence sur la mesure numérique de l’angle de contact. A titre d’exemple, une variation de $60\mu m$ induit une variation de $\pm 2.5^\circ$.

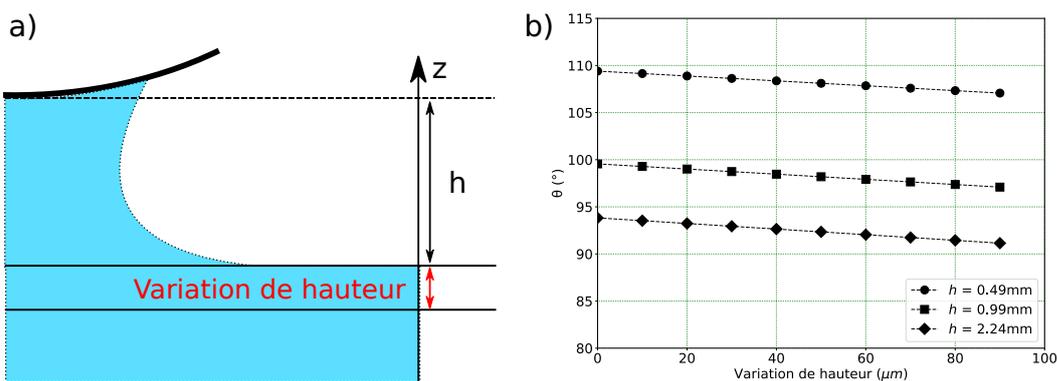


FIGURE 4.22 – Influence de la variation de hauteur du bain, sur la mesure numérique de l’angle de contact.

Au final, si on prend en compte l’influence de tous les paramètres, on obtient une incertitude sur la mesure de l’angle de contact comparable à la mesure direct en vue de côté $\pm 6.5^\circ$. De plus certaines des erreurs étant systématiques, si l’on s’intéresse seulement

à des variations d'angles, l'impact est moins important. Par contre la mesure faite avec la résolution numérique évalue l'angle de contact sur toute la ligne de contact et permet donc d'avoir une mesure moyennée sur un très grand nombre de points ce qui, confère à cette mesure une meilleure précision. Enfin, elle permet de mesurer les angles de contact même quand la visualisation du profil n'est pas possible expérimentalement (surface très enfoncée dans le bain par exemple).

4.3 Dynamique de l'angle de contact.

4.3.1 Surfaces lisses.

Dans un premier temps, nous avons réalisé des tirages à différentes vitesses sur des substrats sans texturation : une surface en NOA et une surface en Téflon avec de l'eau déionisée. Les vitesses de tirage V imposées au substrat sont comprises entre $1\mu\text{m}/\text{s}$ et $3500\mu\text{m}/\text{s}$. Pour faciliter la lecture des résultats, nous avons moyenné les courbes $\theta_{d,r}(V_i)$. Sur la Figure 4.23 sont reportés les angles dynamiques de reculée en fonction du nombre capillaire Ca pour les deux surfaces. Les points colorés et ouverts représentent les mesures en vue de côté et les symboles noirs les mesures en vue du dessus pour trois vitesses de tirage. On observe deux régimes pour l'évolution de l'angle de contact pour les deux surfaces. Dans les deux cas, on trouve une forte dépendance de l'angle de contact de reculée avec l'augmentation du nombre capillaire à partir d'une valeur seuil qui est d'autant plus grande que l'angle de contact est grand. Pour la surface en NOA, l'angle de contact est quasiment constant lorsque Ca est inférieur à 10^{-5} et vaut $\sim 57^\circ$, puis décroît fortement à mesure que Ca augmente. Sur la surface en Téflon, on observe le même comportement que sur la surface en NOA. L'angle est constant $\theta_{d,r} \sim 102^\circ$, pour des nombres capillaires Ca inférieurs à 10^{-4} et diminue fortement après.

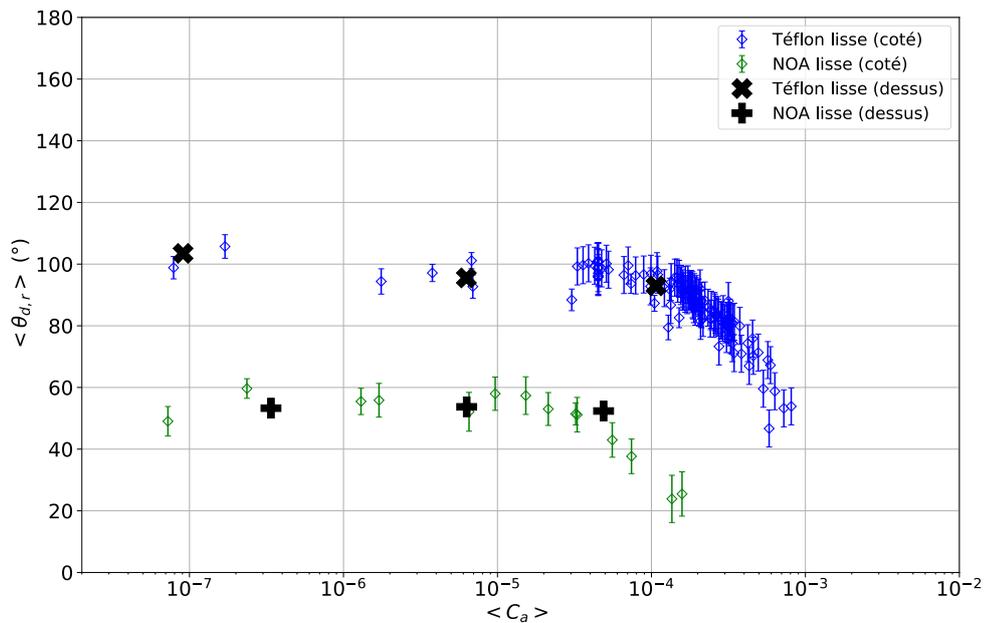


FIGURE 4.23 – Angles de contact dynamiques de reculée en fonction du nombre capillaire pour deux surfaces lisses.

On note aussi que les mesures calculées à partir des images en vue du dessus sont en bon accord avec la mesure de l'angle de contact à partir du profil du pont liquide. Cependant, la mesure en vue du dessus est fondée sur l'hypothèse que le mouvement de la ligne est quasi-statique. De plus, étant limité par la vitesse d'acquisition de la caméra, nous avons traité uniquement les mesures directes en vue de côté de l'angle de contact à la caméra rapide.

4.3.2 Surfaces micro-texturées.

Nous avons ensuite réalisé les mêmes vitesses de tirage avec des surfaces texturées superhydrophobes et de l'eau déionisée. Pour rappel, les caractéristiques des motifs de la texturation sont reportées dans le Tableau 4.1 de la Section 4.1.2. Les angles de contact dynamiques de reculée sont reportés sur la Figure 4.24 en fonction du nombre capillaire. On note que la dépendance avec le nombre capillaire est identique pour les deux surfaces superhydrophobes. On observe cependant que le comportement diffère de celui des surfaces lisses. On note que la décroissance de l'angle dynamique de reculée avec l'augmentation du nombre capillaire sur les surfaces superhydrophobes est significativement plus lente que celle observée pour les surfaces lisses. Dans la gamme de vitesses de tirage accessibles du dispositif, nous avons observé seulement une faible variation de l'angle de contact. On note néanmoins qu'à partir d'un nombre capillaire seuil la diminution de l'angle avec Ca devient plus importante comme pour les surfaces lisses.

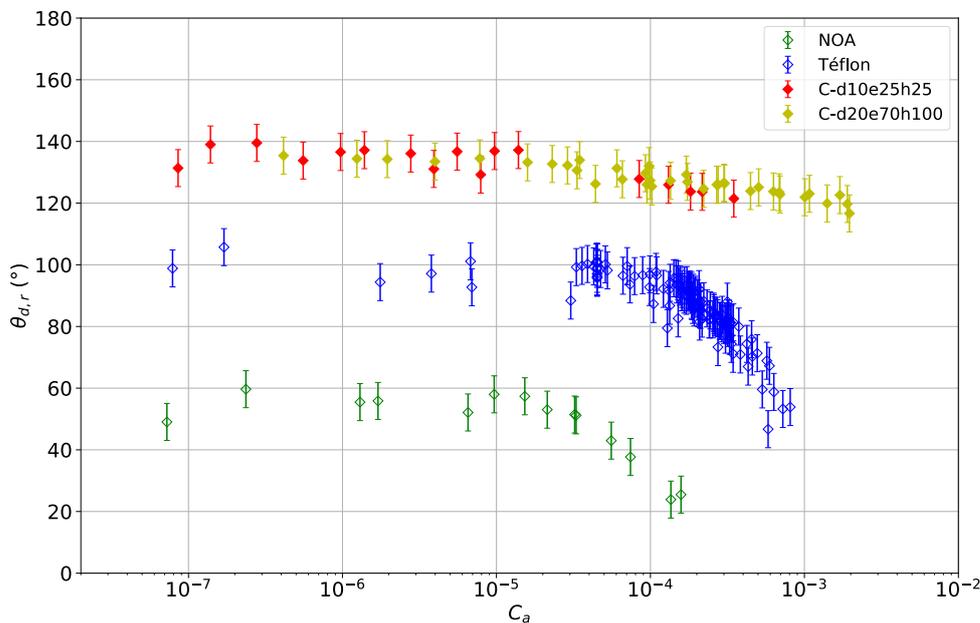


FIGURE 4.24 – Angles de contact dynamiques de reculée en fonction du nombre capillaire pour deux surfaces lisses et deux surfaces superhydrophobes.

Une seconde observation expérimentale est l'absence de goutte accrochée sur la surface après la cassure du pont, ce qui n'est pas le cas avec les surfaces lisses où une goutte était toujours présente après la cassure du pont. Ces observations ont été réalisées lors du stage de Léa Cailly-Brandstätter. La Figure 4.25 illustre la cassure du pont capillaire lors d'un

tirage à $V = 2500\mu\text{m}/\text{s}$ sur une surface texturée surperhydrophobe et deux surfaces lisses. Cette figure montre la différence de comportement du pont capillaire lors de la cassure du pont. On note, que même à grande vitesse de tirage, il n'y a pas de goutte accrochée sur la surface superhydrophobe. Sur cette surface, la cassure du pont survient au niveau de la surface avec un angle de contact constant, contrairement aux surfaces lisses où la cassure se passe au niveau du bain liquide.

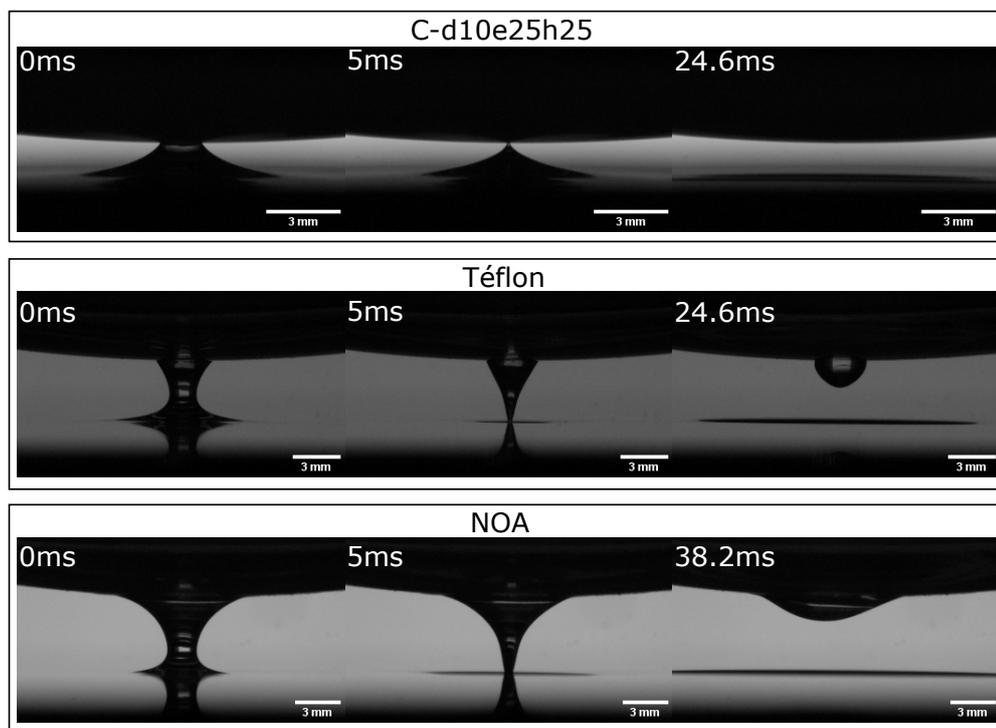


FIGURE 4.25 – Cassure du pont capillaire pour une surface superhydrophobe texturée (C-d10e25h25), et deux surfaces lisses (NOA et Téflon) (vitesse de tirage $V = 2500\mu\text{m}/\text{s}$).

4.4 Discussion.

Afin de mieux comprendre les résultats obtenus, nous avons comparé les mesures d'angles dynamiques avec les mesures issues de Kim *et al* [24]. Sur la Figure 4.26, nous avons reporté les courbes $\theta_{d,r}(Ca)$ issue de l'article, qui correspondent à de l'eau sur une surface lisse en Téflon (carré plein noir) et une solution d'eau plus glycérol sur une surface superhydrophobe en Téflon texturée (triangle plein noir).

Bien que l'angle de contact de reculée quasi-statique soit inférieur, on retrouve des résultats similaires pour le couple : eau sur substrat en Téflon lisse. La différence d'angle de reculée statique peut s'expliquer par la nature du Téflon utilisée et l'état micrométrique de la surface. Dans [24] le substrat est une plaque de Téflon fabriquée à partir d'une feuille de Téflon industrielle. Nous avons ajusté les courbes avec une loi puissance. On trouve que la dépendance de l'angle de contact de reculée de l'eau sur les surfaces lisses suit une loi $\theta_{d,r} \propto Ca^{1/3}$ en accord avec la loi hydrodynamique de Cox-Voinov [24, 46]. Par contre le paramètre $\ln(L/b)$ nécessaire pour ajuster les données avec le modèle hydrodynamique n'est pas d'un ordre de grandeur raisonnable. La dissipation du mouvement ne peut alors

pas s'expliquer par le frottement visqueux pour l'eau qui présente une faible viscosité.

Pour les surfaces superhydrophobes, on trouve une dépendance beaucoup plus faible $\theta_{d,r} \propto Ca^{1/10}$. On note que le comportement est semblable à celui observé par [24] avec une solution d'eau plus glycérol. On met alors en évidence que même avec un liquide très peu visqueux tel que l'eau nous observons aussi une dépendance avec la vitesse de la ligne.

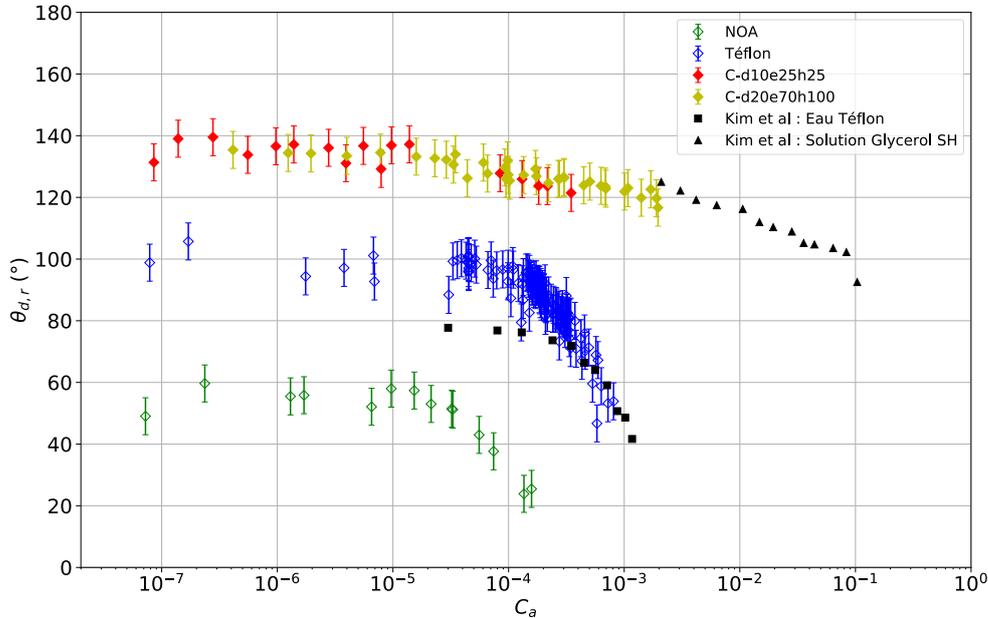


FIGURE 4.26 – Comparaison entre les angles de contact dynamiques de reculée mesurée et les mesures issues de Kim *et al* [24], en fonction du nombre capillaire. Les symboles carrés noirs correspondent aux mesures avec de l'eau sur une surface lisse en Téflon. Les symboles triangles noirs correspondent aux mesures avec un mélange d'eau plus glycérol sur une surface texturée en Téflon.

On note aussi que dans la gamme de nombres capillaires étudiée, nous n'avons pas observé de transition de mouillage de type Landau-Levich avec le dépôt d'un film de liquide. Cependant, nous avons observé dans le cas des surfaces superhydrophobes la présence de gouttes micrométriques présentes sur le sommet des piliers après le passage de la ligne qui s'évaporent rapidement après.

Il est intéressant de voir que malgré la différence de régime dans le mouvement de la ligne de contact expliqué dans la section 4.2.5, on retrouve des résultats similaires à la littérature. En effet, comme nous avons vu, le mouvement de la ligne n'est pas toujours à accélération constante. Lorsque qu'on se rapproche de la cassure du pont, la vitesse augmente rapidement et la ligne ne fait qu'accélérer. Malgré cette différence, l'angle de contact ne semble pas être affecté et évolue de la même manière qu'une ligne en mouvement permanent comme dans [24].

Nous avons essayé d'ajuster les mesures avec le modèle hydrodynamique sans succès pour les surfaces superhydrophobes et lisses. Cela se comprend bien au regard de la faible viscosité de l'eau. D'autres résultats de la littérature enoncent que le modèle hydrodynamique est valide pour des nombres capillaires $Ca > 10^{-3}$ [15, 121, 122]. En revanche,

nous avons ajusté les points expérimentaux avec le modèle moléculaire présenté dans le Chapitre 1 section 1.2 qui pour rappel s'écrit :

$$\theta_{d,r} = \cos^{-1} \left(\cos(\theta_{s,r}) \pm \frac{2k_B T}{\gamma \lambda^2} \sinh^{-1} \left(\frac{V_l}{2K_0 \lambda} \right) \right)$$

La Figure 4.27 présente l'ajustement du modèle moléculaire aux mesures d'angle de contact dynamique de recul en fonction de la vitesse de la ligne V_l . On note que le modèle moléculaire réussit à ajuster les points expérimentaux. Les paramètres obtenus de chaque ajustement sont reportés dans le Tableau 4.3, ainsi que certaines valeurs issues de la littérature à titre comparatif.

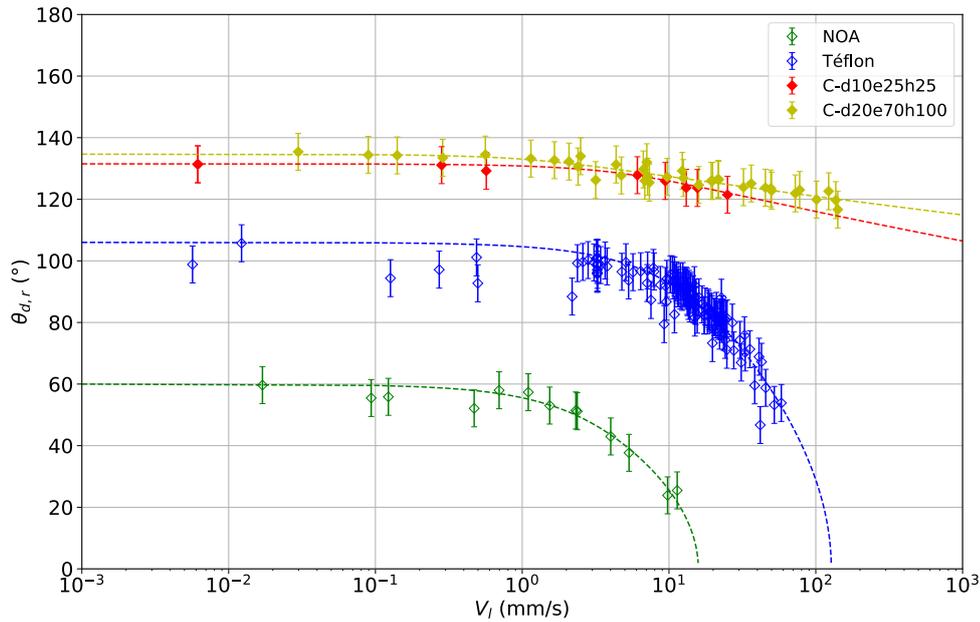


FIGURE 4.27 – Mesures des angles de contact dynamique de recul en fonction de la vitesse de la ligne, ajustées par le modèle moléculaire (ligne en pointillés de couleur).

Surface	$\theta_{s,r}$	λ (m)	K_0 (Hz)
NOA lisse	60°	$7.2 \cdot 10^{-10}$	$2.3 \cdot 10^6$
Téflon lisse	106°	$4.68 \cdot 10^{-10}$	$2.38 \cdot 10^7$
C-d10e25h25	131°	$1.3 \cdot 10^{-9}$	$2.8 \cdot 10^6$
C-d20e70h100	135°	$1.7 \cdot 10^{-9}$	$5.67 \cdot 10^5$
Eau/APTES [37]	30°	$2.5 \cdot 10^{-9}$	$1 \cdot 10^5$
Eau/APTES [37]	45°	$1.5 \cdot 10^{-9}$	$4 \cdot 10^5$
Eau+10%PEG/Téflon texturé (Wenzel) [25]	64°	$1.3 \cdot 10^{-9}$	$7.1 \cdot 10^4$
Eau+Glycérol/Téflon texturé (Cassie) [24]	144°	$1.41 \cdot 10^{-9}$	$3.1 \cdot 10^5$

TABLE 4.3 – Paramètres du modèle moléculaire. 4 première ligne : notre étude. 4 lignes suivantes : littérature.

On constate que les valeurs obtenues pour la distance moyenne entre les sites λ ainsi que pour la fréquence K_0 ont des ordres de grandeur cohérents avec la littérature.

Cependant, bien que le modèle moléculaire réussisse à ajuster les dépendances de l'angle de contact avec la vitesse, il reste néanmoins difficile de conclure sur les valeurs obtenues et principalement pour la fréquence K_0 . Ce modèle est très sensible aux différents paramètres d'ajustement. Le premier est la valeur de l'angle de contact statique $\theta_{s,r}$ où une variation de $\pm 3^\circ$ induit d'importantes variations de K_0 pouvant aller d'un facteur 5 à 100. La variation sur λ est négligeable et reste toujours dans le bon ordre de grandeur. Les courbes comparatives des ajustements pour trois valeurs de $\theta_{s,r}$ sont accessibles en l'Annexe D. En, fixant $\theta_{s,r}$ et $\lambda = 1.10^{-9} m$ nous avons regardé comment évolue K_0 , puis en fixant $\theta_{s,r}$ et $K_0 = 7.36.10^6 Hz$ nous avons regardé comment évolue λ . Nous avons observé que dans les deux cas, λ et K_0 augmentent d'autant plus que la surface est hydrophobe. Nous avons observé que fixer $\lambda = 1.10^{-9} m$ ne permet pas d'ajuster correctement les résultats pour la surface en Téflon lisse.

Le modèle moléculaire n'est donc pas suffisamment fiable pour décrire et expliquer la dépendance de l'angle de contact de recul de l'eau avec la vitesse, car beaucoup trop sensible aux différents paramètres. Le paramètre le plus sensible est l'angle statique de recul $\theta_{s,r}$. Comme nous l'avons vu, la mesure de cet angle de façon suffisamment précise n'est pas possible du fait de la présence de défaut sur toutes les surfaces. De plus, ce modèle ne prend pas en compte le mouvement particulier de la ligne de contact sur les surfaces superhydrophobes [5, 20]. Il ne considère pas les piégeages et dépiégeages successifs de la ligne sur chaque pilier du substrat. Au passage d'un pilier, lorsque la ligne se dépiège, de l'énergie est dissipée par le claquage de celle-ci. Cette source de dissipation n'est pas prise en compte dans le modèle moléculaire. Enfin, lorsque la vitesse de la ligne augmente, lors du dépiégeage de celle-ci sur un pilier, il est possible que toute une portion de la ligne saute plusieurs piliers, accélérant ainsi davantage la ligne. Ce phénomène est connu sous le nom d'avalanche et a été observé notamment par Moulinet *et al* [120], sur des surfaces comportant des défauts.

4.5 Conclusions et Perspectives.

Dans ce chapitre, nous avons étudié la dynamique de l'angle de contact de reculée de l'eau sur des substrats lisses et superhydrophobes microtexturés avec la méthode du pont capillaire qui permet l'étude de grandes surfaces mouillées sans effets de bords. Cette méthode permet de mesurer les angles de contact de deux façons : i) Une mesure indirecte fondée sur la résolution numérique de l'équation de Laplace du pont qui fixe le profil de l'interface fluide. Elle donne l'angle de contact qui est unique pour une valeur de l'aire de contact pour un couple liquide-solide donné ; ii) Une mesure directe des angles de contact réalisée à partir de la vue de côté du pont liquide. Dans la première partie de cette étude, nous avons amélioré les sources lumineuses en les adaptant à chaque besoin et nous avons étudié les limites de cette méthode pour l'étude des surfaces superhydrophobes présentant des grands angles de contact. En particulier, nous avons étudié la gamme de vitesses pour lesquelles les deux mesures sont similaires sachant que la mesure indirecte repose sur une résolution numérique du profil statique du pont capillaire. Nous avons étudié plus particulièrement la dynamique du mouillage de l'eau pour laquelle on ne trouve pas de mesures d'angles de contact en fonction de la vitesse de la ligne de contact sur des surfaces superhydrophobes dans la littérature. De manière générale, les liquides utilisés dans la littérature sont beaucoup plus visqueux. Nous avons comparé les mesures sur surfaces superhydrophobes avec celles des surfaces lisses.

Pour les surfaces lisses, nous retrouvons un angle de contact proportionnel à la vitesse de la ligne à la puissance $1/3$, mais le pré-facteur que nous obtenons pour ajuster la dépendance mesurée avec un modèle hydrodynamique de type Cox-Voinov n'est pas d'un ordre de grandeur physiquement acceptable. Cela suggère que dans le cas de l'eau qui présente une faible viscosité, la dissipation d'énergie lors du déplacement de la ligne de contact n'est pas réalisée via le frottement visqueux. De manière analogue aux mécanismes qui régissent l'hystérésis quasi-statique (« kink » de Rivetti *et al* [21].), nous pensons que l'origine de la déformation dans le cas de l'eau pourrait être due aux déformations locales de la ligne de contact sur les défauts de la surface qui ne sont pas pris en compte par les modèles existants.

Pour les surfaces superhydrophobes constituées de réseau régulier de piliers micrométrique, nous avons observé que la dépendance de l'angle de contact avec la vitesse de la ligne est très différente de celle d'une surface lisse de même nature chimique. En effet, dans ce cas, l'angle de contact est proportionnel à la vitesse de la ligne à la puissance $\sim 1/10$. En comparant nos résultats avec une étude récente [24], nous avons montré que les mesures faites avec de l'eau suivent une tendance proche de celle de mesures réalisées avec un mélange d'eau glycérol sur des surfaces texturées de même nature chimique. De plus, la texturation de la surface est légèrement différente puisque dans les manip de Kim *et al*, il s'agit de grille micrométrique et non de micropiliers ce qui suggère une déformation locale de la ligne de contact légèrement différente. Nous avons montré que le modèle moléculaire permet d'ajuster les données. Cependant, en étudiant l'influence des différents paramètres libres de ce modèle sur l'ajustement, nous pensons qu'il n'est pas possible de conclure que le modèle moléculaire rend bien compte de la dépendance des angles de contact. En effet, les paramètres libres du modèle peuvent changer de plusieurs

ordres de grandeur tout en ajustant correctement les données. N'ayant pas de valeurs physiques mesurées pour fixer ces paramètres, nous ne pouvons donc pas affirmer la validité du modèle pour expliquer nos données. Nous pensons en particulier que le glissement que peuvent présenter les surfaces superhydrophobes doit être pris en compte dans la modélisation de la dissipation de même que les déformations locales sur chaque pilier lors du mouvement pour expliquer les dépendances des angles de contact de l'eau sur les surfaces superhydrophobes.

En perspective, il serait donc intéressant d'étudier plus en détail l'influence de la fraction surfacique, de la forme des piliers et de leur disposition sur la surface (différents réseaux réguliers, aléatoirement) pour étudier l'effet des déformations locales de la ligne de contact. Par ailleurs, il serait également intéressant d'étudier plus précisément l'effet du glissement en utilisant par exemple des brosses de polymères avec des densités de greffage et des longueurs de chaînes variables afin de bien contrôler la longueur de glissement. Enfin, pour atteindre des dynamiques encore plus rapides, il serait intéressant d'étudier plus précisément la rupture du pont capillaire en comparant le cas des surfaces superhydrophobes à celui des surfaces lisses. Ce dernier point a été initié pendant la thèse au cours d'un stage de master.

Conclusion générale

Les phénomènes de mouillage sont d'une importance pratique considérable pour de très nombreuses applications de la plupart des secteurs industriels (dépôt de revêtement, réduction des frottements, promotion ou diminution de l'adhésion d'un liquide, etc.). Pour ces différents besoins, les lignes de contact sont soumises à diverses sollicitations, en régime permanent lors du dépôt d'une couche liquide par exemple ou encore en régime transitoire lors de l'impact ou de la vibration d'une goutte. Elles présentent alors un mouvement qui dépend des propriétés de la surface et du liquide. Dans ce manuscrit, nous avons étudié différents phénomènes liés à la mise en mouvement de la ligne de contact. Nous avons étudié la ligne de contact lorsque celle-ci est mise en mouvement dans un régime transitoire via les vibrations du support dans la première et seconde partie puis dans un régime permanent dans la dernière partie de la thèse avec un montage de type "dip-coating".

Dans la première partie de la thèse, nous avons étudié l'intérêt des vibrations pour piloter la coalescence de gouttes. En effet, dans l'idée de proposer une méthode d'évacuation de la buée d'une surface, nous avons utilisé les vibrations du support pour mettre en mouvement les gouttes d'une figure de souffle et ainsi forcer leur étalement afin de provoquer de nombreuses coalescences simultanément. Ceci permet en effet de réduire le nombre de gouttes et de faciliter leur récupération. Pour générer les vibrations du support en utilisant un apport énergétique peu coûteux, nous avons simplement impacté un projectile solide sur le dos de la surface supportant la figure de souffle. Nous avons fait varier la taille des gouttes et l'accélération du substrat en changeant la hauteur d'impact. En quantifiant l'efficacité de l'impact à engendrer des coalescences à l'aide du paramètre $\%DNR$ qui représente la réduction du nombre de gouttes total, nous avons mis en évidence que pour engendrer un nombre de coalescence significatif, une taille minimale pour les gouttes est nécessaire et que ce seuil dépend de l'accélération du support. Il est d'autant plus petit que l'accélération est grande. En traçant l'efficacité ($\%DNR$) en fonction d'un nombre de Bond spécifique qui tient compte de l'accélération du substrat, nous avons obtenu une courbe maîtresse pour toutes les tailles de gouttes et accélérations du substrat étudiées. De plus, nous avons montré que l'hystérésis est un paramètre clé pour ce phénomène dont le rôle précis reste à étudier de manière plus quantitative. Avec ce dispositif, il est possible de réduire le nombre de gouttes de plus de 90% en 20ms. Il s'avère donc particulièrement intéressant pour les applications liées à l'évacuation ou à la récupération de la buée.

Dans la seconde partie de la thèse, afin de mieux comprendre ce phénomène, nous

avons mis en place un second dispositif expérimental pour étudier plus en détail la coalescence entre deux gouttes vibrées. Ce second dispositif permet de faire vibrer deux gouttes de manière contrôlée pour engendrer leur coalescence, par la vibration imposée à la surface solide avec un pot vibrant. Ce dispositif nous a ainsi permis d'étudier plus en détail la dynamique de coalescence de deux gouttes vibrées, qui n'avait jamais été regardée auparavant. Grâce à cette méthode originale, nous avons montré que la dynamique d'ouverture du pont liquide lors de la coalescence diffère de celle observée pour la coalescence de deux gouttes en régime quasi-statique. Nous avons fait varier la taille des gouttes, la distance entre elles, la nature du substrat et l'amplitude de vibration. Nous avons observé trois événements possibles suivant le chevauchement "virtuel" des gouttes au cours de leur vibration. Les gouttes peuvent coalescer instantanément, de manière retardée ou encore pas du tout. Nous avons établi des diagrammes d'état de ces différents événements en fonction du chevauchement et de l'amplitude de vibration pour les différentes surfaces ce qui nous a permis de mettre en évidence que plus la surface est hydrophobe et peu hystérétique et plus il y aura des événements de non-coalescence. En effet, ce régime est piloté par le drainage d'un film d'air piégé entre les interfaces liquides qui entrent en contact, qui dépend de l'angle de contact, et de la vitesse des interfaces. Ce régime de coalescence dynamique est un nouveau phénomène complexe qui ouvre des questions fondamentales intéressantes, en particulier lors des premiers instants qu'il serait intéressant d'approfondir. De plus, ce nouveau dispositif permet en particulier de contrôler le temps de contact entre deux gouttes ce qui peut être une manière intéressante de solliciter les interfaces liquides, pour étudier par exemple la dynamique de tensio-actifs à l'interface.

Dans la dernière partie de cette thèse, nous avons étudié plus précisément la dynamique de la ligne de contact sur des surfaces superhydrophobes qui ont été peu étudiées du point de vue des lois angle de contact-vitesse de ligne de contact jusqu'ici. Nous nous sommes intéressés plus particulièrement à la dépendance de l'angle de contact de reculée qui est la valeur limitante pour les applications pratiques de dépôt de revêtement par exemple et qui présente des variations plus importantes que l'angle d'avancée. Bien que cette dépendance a été amplement étudiée dans la littérature pour les surfaces lisses, on trouve cependant très peu d'études sur des surfaces superhydrophobes microtexturées, en particulier avec des liquides peu visqueux. Ce manque d'étude et l'absence de mesure avec de l'eau nous a conduit à étudier cette dépendance sur ce type de surface avec ce liquide. Nous avons choisi d'utiliser la méthode du pont capillaire qui permet de mesurer des angles de contact sans effet de bord et sur des grandes surfaces de contact. Nous avons comparé les mesures réalisées sur des surfaces lisses et des surfaces superhydrophobes microtexturées, pour de l'eau. Les angles de contact ont été mesurés de deux façons : 1) Une mesure indirecte avec une résolution numérique de l'équation de Laplace à partir de l'aire de contact pour un couple liquide-solide donné ; 2) Une mesure optique directe des angles de contact à partir des images du pont liquide. Nous avons observé des dépendances très différentes entre ces deux types de surface. Sur les surfaces lisses, nous avons trouvé un angle de contact proportionnel à la vitesse de la ligne à la puissance $\sim 1/3$ mais le préfacteur à mettre pour expliquer cette dépendance avec le modèle hydrodynamique n'a pas de sens physique. De plus, sur les surfaces superhydrophobes nous avons trouvé une dépendance de l'angle de contact avec la vitesse beaucoup plus lente. La comparaison des résultats avec une étude récente de la littérature nous a permis de montrer que les mesures avec de l'eau sont en

accord avec celles réalisées avec des liquides plus visqueux sur ce type de surface. Enfin, en confrontant d'une part nos résultats au modèle hydrodynamique, nous confirmons que l'origine de la dissipation de l'énergie lors du déplacement de la ligne n'est pas réalisée par le frottement visqueux non plus pour les surfaces superhydrophobes avec de l'eau. D'autre part, bien que le modèle moléculaire réussisse à ajuster la dépendance de l'angle de contact sur les surfaces superhydrophobes, nous pensons qu'il n'est pas possible de conclure qu'il rende bien compte de la dépendance à cause de sa trop grande sensibilité aux différents paramètres ajustables. Au regard de nos résultats, nous pensons qu'il est nécessaire d'inclure dans les modèles, le glissement et la dissipation liée aux déformations locales de ligne de contact sur chaque pilier ou défaut de surface pendant le mouvement pour mieux rendre compte des données expérimentales. Ces observations offrent un grand nombre de perspectives d'étude qu'il serait intéressant d'explorer. Dans un premier temps, il faudrait approfondir l'effet des déformations locales de la ligne de contact en dynamique. Pour ce faire, il faudrait étudier l'influence de la fraction surfacique, de la forme des piliers ainsi que de leurs dispositions. Dans un deuxième temps, il faudrait s'intéresser plus particulièrement à l'effet du glissement en utilisant par exemple des surfaces couvertes de brosses de polymères. Enfin, il serait intéressant de mieux comprendre la dynamique de rupture du pont capillaire sur les surfaces lisses, mais aussi sur les surfaces superhydrophobes.

Bibliographie

- [1] M. Callies and D. Quéré, “On water repellency,” *Soft Matter*, vol. 1, no. 1, p. 55, 2005.
- [2] Bartolo, D., Bouamrène, F., Verneuil, E., Buguin, A., Silberzan, P., and Moulinet, S., “Bouncing or sticky droplets : Impalement transitions on superhydrophobic micropatterned surfaces,” *Europhys. Lett.*, vol. 74, no. 2, pp. 299–305, 2006.
- [3] C. Ybert, C. Barentin, C. Cottin-Bizonne, P. Joseph, and L. Bocquet, “Achieving large slip with superhydrophobic surfaces : Scaling laws for generic geometries,” *Physics of Fluids*, vol. 19, p. 123601, Dec. 2007.
- [4] M. Reyssat and D. Quéré, “Contact Angle Hysteresis Generated by Strong Dilute Defects,” *The Journal of Physical Chemistry B*, vol. 113, pp. 3906–3909, Mar. 2009. Number : 12.
- [5] A. Gauthier, M. Rivetti, J. Teisseire, and E. Barthel, “Finite Size Effects on Textured Surfaces : Recovering Contact Angles from Vagarious Drop Edges,” *Langmuir*, vol. 30, pp. 1544–1549, Feb. 2014. Number : 6.
- [6] C. Lee, Y. Nam, H. Lastakowski, J. I. Hur, S. Shin, A.-L. Biance, C. Pirat, C.-J. “CJ” Kim, and C. Ybert, “Two types of Cassie-to-Wenzel wetting transitions on superhydrophobic surfaces during drop impact,” *Soft Matter*, vol. 11, no. 23, pp. 4592–4599, 2015.
- [7] W. Barthlott and C. Neinhuis, “Purity of the sacred lotus, or escape from contamination in biological surfaces,” *Planta*, vol. 202, pp. 1–8, Apr. 1997.
- [8] G. Debregeas and F. Brochard-Wyart, “Nucleation Radius and Growth of a Liquid Meniscus,” *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 190, pp. 134–141, June 1997.
- [9] B. Khalil, J. Adamowski, A. Shabbir, C. Jang, M. Rojas, K. Reilly, and B. Ozga-Zielinski, “A review : dew water collection from radiative passive collectors to recent developments of active collectors,” *Sustainable Water Resources Management*, vol. 2, pp. 71–86, Mar. 2016.
- [10] D. Beysens, A. Steyer, P. Guenoun, D. Fritter, and C. M. Knobler, “How does dew form ?,” *Phase Transitions*, vol. 31, pp. 219–246, Apr. 1991. Number : 1-4.
- [11] D. Baratian, R. Dey, H. Hoek, D. van den Ende, and F. Mugele, “Breath Figures under Electrowetting : Electrically Controlled Evolution of Drop Condensation Patterns,” *Physical Review Letters*, vol. 120, p. 214502, May 2018. Number : 21.

- [12] L. Zhang, J. Shi, B. Xu, and Z. Chen, “Experimental Study on Distribution Characteristics of Condensate Droplets Under Ultrasonic Vibration,” *Microgravity Science and Technology*, vol. 30, pp. 737–746, Dec. 2018. Number : 6.
- [13] D. Gennes and F. Brochard-Wyart, *Gouttes, Bulles, Perles Et Ondes*. 01 2005.
- [14] T. Young, “Iii. an essay on the cohesion of fluids,” *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, vol. 95, pp. 65–87, 1805.
- [15] H.-J. Butt, J. Liu, K. Koynov, B. Straub, C. Hinduja, I. Roismann, R. Berger, X. Li, D. Vollmer, W. Steffen, and M. Kappl, “Contact angle hysteresis,” *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, vol. 59, p. 101574, June 2022.
- [16] H. B. Eral, D. J. C. M. ’t Mannetje, and J. M. Oh, “Contact angle hysteresis : a review of fundamentals and applications,” *Colloid and Polymer Science*, vol. 291, pp. 247–260, Feb. 2013. Number : 2.
- [17] J. F. Joanny and P. G. de Gennes, “A model for contact angle hysteresis,” vol. 81, p. 12, 1984.
- [18] D. L. Hu and J. W. M. Bush, “The hydrodynamics of water-walking arthropods,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 644, pp. 5–33, Feb. 2010.
- [19] G. S. Watson, L. Schwarzkopf, B. W. Cribb, S. Myhra, M. Gellender, and J. A. Watson, “Removal mechanisms of dew via self-propulsion off the gecko skin,” *Journal of The Royal Society Interface*, vol. 12, no. 105, p. 20141396, 2015.
- [20] A. Gauthier, M. Rivetti, J. Teisseire, and E. Barthel, “Role of Kinks in the Dynamics of Contact Lines Receding on Superhydrophobic Surfaces,” *Physical Review Letters*, vol. 110, p. 046101, Jan. 2013. Number : 4.
- [21] M. Rivetti, J. Teisseire, and E. Barthel, “Surface Fraction Dependence of Contact Angles Induced by Kinks in the Triple Line,” *Physical Review Letters*, vol. 115, p. 016101, June 2015. Number : 1.
- [22] C. Cohen, Y. Bouret, Y. Izmaylov, G. Sauder, E. Forestier, and X. Noblin, “Capillary bridge technique to study superhydrophobic surfaces,” *Soft Matter*, vol. 15, no. 14, pp. 2990–2998, 2019. Number : 14.
- [23] M. Kumar, R. Bhardwaj, and K. C. Sahu, “Wetting Dynamics of a Water Droplet on Micropillar Surfaces with Radially Varying Pitches,” *Langmuir*, vol. 36, pp. 5312–5323, May 2020. Number : 19.
- [24] J.-H. Kim, H. P. Kavehpour, and J. P. Rothstein, “Dynamic contact angle measurements on superhydrophobic surfaces,” *Physics of Fluids*, vol. 27, p. 032107, Mar. 2015. Number : 3.
- [25] A. Mohammad Karim, J. P. Rothstein, and H. P. Kavehpour, “Experimental study of dynamic contact angles on rough hydrophobic surfaces,” *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 513, pp. 658–665, Mar. 2018.
- [26] R. H. DETTRE and R. E. JOHNSON, *Contact Angle Hysteresis*, ch. 8, pp. 136–144.
- [27] R. N. Wenzel, “RESISTANCE OF SOLID SURFACES TO WETTING BY WATER,” *Industrial & Engineering Chemistry*, vol. 28, pp. 988–994, Aug. 1936. Number : 8.
- [28] A. B. D. Cassie and S. Baxter, “Wettability of porous surfaces,” *Transactions of the Faraday Society*, vol. 40, p. 546, 1944.

- [29] S. Shibuichi, T. Onda, N. Satoh, and K. Tsujii, “Super Water-Repellent Surfaces Resulting from Fractal Structure,” *The Journal of Physical Chemistry*, vol. 100, pp. 19512–19517, Jan. 1996.
- [30] J. Bico, C. Tordeux, and D. Quéré, “Rough wetting,” *Europhysics Letters*, vol. 55, p. 214, jul 2001.
- [31] A. L. Dubov, J. Teisseire, and E. Barthel, “Elastic instability and contact angles on hydrophobic surfaces with periodic textures,” *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 97, p. 26003, Jan. 2012. Number : 2.
- [32] G. McHale, S. Aqil, N. J. Shirtcliffe, M. I. Newton, and H. Y. Erbil, “Analysis of droplet evaporation on a superhydrophobic surface,” *Langmuir*, vol. 21, no. 24, pp. 11053–11060, 2005. PMID : 16285771.
- [33] R. L. Hoffman, “A study of the advancing interface. i. interface shape in liquid—gas systems,” *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 50, no. 2, pp. 228–241, 1975.
- [34] P. G. de Gennes, “Wetting : statics and dynamics,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 57, pp. 827–863, July 1985. Number : 3.
- [35] E. Rolley and C. Guthmann, “Dynamics and Hysteresis of the Contact Line between Liquid Hydrogen and Cesium Substrates,” *Physical Review Letters*, vol. 98, p. 166105, Apr. 2007. Number : 16.
- [36] E. Rio, A. Daerr, B. Andreotti, and L. Limat, “Boundary Conditions in the Vicinity of a Dynamic Contact Line : Experimental Investigation of Viscous Drops Sliding Down an Inclined Plane,” *Physical Review Letters*, vol. 94, p. 024503, Jan. 2005. Number : 2.
- [37] M. Ramiasa, J. Ralston, R. Fetzer, and R. Sedev, “Contact Line Friction in Liquid–Liquid Displacement on Hydrophobic Surfaces,” *The Journal of Physical Chemistry C*, vol. 115, pp. 24975–24986, Dec. 2011. Number : 50.
- [38] M. Ramiasa, J. Ralston, R. Fetzer, R. Sedev, D. M. Fopp-Spori, C. Morhard, C. Pacholski, and J. P. Spatz, “Contact Line Motion on Nanorough Surfaces : A Thermally Activated Process,” *Journal of the American Chemical Society*, vol. 135, pp. 7159–7171, May 2013. Number : 19.
- [39] T. Mouterde, P. S. Raux, C. Clanet, and D. Quéré, “Superhydrophobic frictions,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 116, no. 17, pp. 8220–8223, 2019.
- [40] A. Mohammad Karim, “A review of physics of moving contact line dynamics models and its applications in interfacial science,” *Journal of Applied Physics*, vol. 132, p. 080701, Aug. 2022.
- [41] J. H. Snoeijer and B. Andreotti, “Moving Contact Lines : Scales, Regimes, and Dynamical Transitions,” *Annual Review of Fluid Mechanics*, vol. 45, pp. 269–292, Jan. 2013.
- [42] O. V. Voinov, “Hydrodynamics of wetting,” *Fluid Dynamics*, vol. 11, pp. 714–721, Sept. 1976.
- [43] R. G. Cox, “The dynamics of the spreading of liquids on a solid surface. Part 1. Viscous flow,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 168, p. 169, July 1986. Number : -1.

- [44] T. Blake and J. Haynes, “Kinetics of liquidliquid displacement,” *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 30, no. 3, pp. 421–423, 1969.
- [45] T. Blake and Y. Shikhmurzaev, “Dynamic Wetting by Liquids of Different Viscosity,” *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 253, pp. 196–202, Sept. 2002. Number : 1.
- [46] J. Wang, Y. Cao, G. Li, Y. Wang, S. Li, and Y. Liao, “Determination of dynamic wetting behavior using different methods,” *Colloid and Polymer Science*, vol. 298, pp. 595–602, June 2020. Number : 6.
- [47] A. R. Harikrishnan, P. Dhar, P. K. Agnihotri, S. Gedupudi, and S. K. Das, “Correlating contact line capillarity and dynamic contact angle hysteresis in surfactant-nanoparticle based complex fluids,” *Physics of Fluids*, vol. 30, p. 042006, Apr. 2018.
- [48] A. Renaudin, P. Tabourier, J.-C. Camart, and C. Druon, “Surface acoustic wave two-dimensional transport and location of microdroplets using echo signal,” *Journal of Applied Physics*, vol. 100, no. 11, p. 116101, 2006.
- [49] Z. Wang and J. Zhe, “Recent advances in particle and droplet manipulation for lab-on-a-chip devices based on surface acoustic waves,” *Lab Chip*, vol. 11, pp. 1280–1285, 2011.
- [50] C. Andrieu, C. Sykes, and F. Brochard, “Average Spreading Parameter on Heterogeneous Surfaces,” *Langmuir*, vol. 10, pp. 2077–2080, July 1994.
- [51] J. D. Whitehill, A. Neild, and M. H. Stokes, “Forced spreading behavior of droplets undergoing low frequency vibration,” *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, vol. 393, pp. 144–152, Jan. 2012.
- [52] Y. Lu, A. Sur, C. Pascente, S. Ravi Annapragada, P. Ruchhoeft, and D. Liu, “Dynamics of droplet motion induced by Electrowetting,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 106, pp. 920–931, Mar. 2017.
- [53] F. Mugele and J.-C. Baret, “Electrowetting : from basics to applications,” *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 17, pp. R705–R774, jul 2005.
- [54] X. Noblin, R. Kofman, and F. Celestini, “Ratchetlike Motion of a Shaken Drop,” *Physical Review Letters*, vol. 102, p. 194504, May 2009. Number : 19.
- [55] P. Brunet, J. Eggers, and R. D. Deegan, “Motion of a drop driven by substrate vibrations,” *The European Physical Journal Special Topics*, vol. 166, pp. 11–14, Jan. 2009.
- [56] S. Daniel, M. K. Chaudhury, and P.-G. de Gennes, “Vibration-Actuated Drop Motion on Surfaces for Batch Microfluidic Processes,” *Langmuir*, vol. 21, pp. 4240–4248, Apr. 2005. Number : 9.
- [57] P. Brunet, J. Eggers, and R. D. Deegan, “Vibration-induced climbing of drops,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 99, p. 144501, Oct 2007.
- [58] P. Brunet, M. Baudoin, O. B. Matar, and F. Zoueshtiagh, “Droplet displacements and oscillations induced by ultrasonic surface acoustic waves : A quantitative study,” *Physical Review E*, vol. 81, p. 036315, Mar. 2010.
- [59] “VI. On the capillary phenomena of jets,” p. 27.
- [60] L. R. W., “The Theory of Sound,” *Nature*, vol. 58, pp. 121–122, June 1898.

-
- [61] H. Rodot, C. Bisch, and A. Lasek, “Zero-gravity simulation of liquids in contact with a solid surface,” *Acta Astronautica*, vol. 6, no. 9, pp. 1083–1092, 1979.
- [62] B. VUKASINOVIC, M. K. SMITH, and A. GLEZER, “Dynamics of a sessile drop in forced vibration,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 587, p. 395–423, 2007.
- [63] T. S. Meiron, A. Marmur, and I. Saguy, “Contact angle measurement on rough surfaces,” *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 274, pp. 637–644, June 2004.
- [64] X. Noblin, A. Buguin, and F. Brochard-Wyart, “Vibrations of sessile drops,” *The European Physical Journal Special Topics*, vol. 166, pp. 7–10, Jan. 2009. Number : 1.
- [65] J. S. Sharp, D. J. Farmer, and J. Kelly, “Contact Angle Dependence of the Resonant Frequency of Sessile Water Droplets,” *Langmuir*, vol. 27, pp. 9367–9371, Aug. 2011.
- [66] X. Noblin, A. Buguin, and F. Brochard-Wyart, “Vibrated sessile drops : Transition between pinned and mobile contact line oscillations,” *The European Physical Journal E*, vol. 14, pp. 395–404, Aug. 2004. Number : 4.
- [67] A. Lai, N. Bremond, and H. A. Stone, “Separation-driven coalescence of droplets : an analytical criterion for the approach to contact,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 632, pp. 97–107, 2009.
- [68] J. EGGERS, J. R. LISTER, and H. A. STONE, “Coalescence of liquid drops,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 401, p. 293–310, 1999.
- [69] N. Kapur and P. H. Gaskell, “Morphology and dynamics of droplet coalescence on a surface,” *Physical Review E*, vol. 75, p. 056315, May 2007. Number : 5.
- [70] X. Niu, S. Gulati, J. B. Edel, and A. J. deMello, “Pillar-induced droplet merging in microfluidic circuits,” *Lab on a Chip*, vol. 8, no. 11, p. 1837, 2008.
- [71] C. Planchette, E. Lorenceau, and G. Brenn, “Liquid encapsulation by binary collisions of immiscible liquid drops,” *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, vol. 365, pp. 89–94, Aug. 2010.
- [72] J. F. Hernández-Sánchez, L. A. Lubbers, A. Eddi, and J. H. Snoeijer, “Symmetric and Asymmetric Coalescence of Drops on a Substrate,” *Physical Review Letters*, vol. 109, p. 184502, Nov. 2012. Number : 18.
- [73] M. Wu, T. Cubaud, and C.-M. Ho, “Scaling law in liquid drop coalescence driven by surface tension,” *Physics of Fluids*, vol. 16, pp. L51–L54, July 2004. Number : 7.
- [74] D. G. A. L. Aarts, H. N. W. Lekkerkerker, H. Guo, G. H. Wegdam, and D. Bonn, “Hydrodynamics of Droplet Coalescence,” *Physical Review Letters*, vol. 95, p. 164503, Oct. 2005. Number : 16.
- [75] J. D. Paulsen, J. C. Burton, and S. R. Nagel, “Viscous to Inertial Crossover in Liquid Drop Coalescence,” *Physical Review Letters*, vol. 106, p. 114501, Mar. 2011. Number : 11.
- [76] A.-L. Biance, C. Clanet, and D. Quéré, “First steps in the spreading of a liquid droplet,” *Phys. Rev. E*, vol. 69, p. 016301, Jan 2004.

- [77] G. A., *Experimentelle Untersuchungen, Modellierung und Simulation gerührter Flüssig/flüssig-Systeme mit veränderlichen Stoff- und Betriebsparametern*. PhD thesis, 2007.
- [78] M. Orme, “Experiments on droplet collisions, bounce, coalescence and disruption,” *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 23, no. 1, pp. 65–79, 1997. Number : 1.
- [79] Y. Couder, E. Fort, C.-H. Gautier, and A. Boudaoud, “From bouncing to floating : Noncoalescence of drops on a fluid bath,” *Physical Review Letters*, vol. 94, p. 177801, May 2005. Number : 17.
- [80] T. Gilet, N. Vandewalle, and S. Dorbolo, “Controlling the partial coalescence of a droplet on a vertically vibrated bath,” *Physical Review E*, vol. 76, p. 035302, Sept. 2007. Number : 3.
- [81] T. Gilet, D. Terwagne, N. Vandewalle, and S. Dorbolo, “Dynamics of a Bouncing Droplet onto a Vertically Vibrated Interface,” *Physical Review Letters*, vol. 100, p. 167802, Apr. 2008. Number : 16.
- [82] J. de Ruitter, R. Lagraauw, D. van den Ende, and F. Mugele, “Wettability-independent bouncing on flat surfaces mediated by thin air films,” *Nature Physics*, vol. 11, pp. 48–53, Jan. 2015. Number : 1.
- [83] X. Han, J. Li, X. Tang, W. Li, H. Zhao, L. Yang, and L. Wang, “Droplet Bouncing : Fundamentals, Regulations, and Applications,” *Small*, p. 2200277, Mar. 2022.
- [84] Y. Couder, A. Boudaoud, S. Protière, and E. Fort, “Walking droplets, a form of wave-particle duality at macroscopic scale?,” *Europhysics News*, vol. 41, pp. 14–18, Jan. 2010. Number : 1.
- [85] K.-L. Huang and K.-L. Pan, “Transitions of bouncing and coalescence in binary droplet collisions,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 928, p. A7, Dec. 2021.
- [86] K.-L. Pan, Y.-H. Tseng, J.-C. Chen, K.-L. Huang, C.-H. Wang, and M.-C. Lai, “Controlling droplet bouncing and coalescence with surfactant,” *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 799, pp. 603–636, July 2016.
- [87] R. N. Valani, A. C. Slim, and T. Simula, “Superwalking Droplets,” *Physical Review Letters*, vol. 123, p. 024503, July 2019. Number : 2.
- [88] D. Fritter, C. M. Knobler, D. Roux, and D. Beysens, “Computer simulations of the growth of breath figures,” p. 13, 1988.
- [89] F. Family and P. Meakin, “Kinetics of droplet growth processes : Simulations, theory, and experiments,” *Physical Review A*, vol. 40, pp. 3836–3854, Oct. 1989. Number : 7.
- [90] H. Zhao and D. Beysens, “From Droplet Growth to Film Growth on a Heterogeneous Surface : Condensation Associated with a Wettability Gradient,” *Langmuir*, vol. 11, pp. 627–634, Feb. 1995. Number : 2.
- [91] M.-G. Medici, A. Mongruel, L. Royon, and D. Beysens, “Edge effects on water droplet condensation,” *Physical Review E*, vol. 90, p. 062403, Dec. 2014. Number : 6.
- [92] N. Pionnier, J. Vera, E. Contraires, S. Benayoun, R. Berger, and S. Valette, “The effect of the orientation and the height of periodic sub-micrometric texturing on

- dropwise condensation,” *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 526, pp. 184–193, Sept. 2018.
- [93] M. Muselli, D. Beysens, J. Marcillat, I. Milimouk, T. Nilsson, and A. Louche, “Dew water collector for potable water in Ajaccio (Corsica Island, France),” *Atmospheric Research*, vol. 64, pp. 297–312, Sept. 2002.
- [94] T. Nilsson, “Initial experiments on dew collection in sweden and tanzania,” *Solar Energy Materials and Solar Cells*, vol. 40, no. 1, pp. 23–32, 1996.
- [95] J. E. Castillo, J. A. Weibel, and S. V. Garimella, “The effect of relative humidity on dropwise condensation dynamics,” *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 80, pp. 759–766, Jan. 2015.
- [96] K. K. Varanasi, M. Hsu, N. Bhate, W. Yang, and T. Deng, “Spatial control in the heterogeneous nucleation of water,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 95, p. 094101, Aug. 2009.
- [97] A. Lee, M.-W. Moon, H. Lim, W.-D. Kim, and H.-Y. Kim, “Water harvest via dewing,” *Langmuir*, vol. 28, pp. 10183–10191, July 2012.
- [98] D. Nioras, K. Ellinas, V. Constantoudis, and E. Gogolides, “How different are fog collection and dew water harvesting on surfaces with different wetting behaviors?,” *ACS Applied Materials & Interfaces*, vol. 13, no. 40, pp. 48322–48332, 2021.
- [99] T. Mouterde, T.-V. Nguyen, H. Takahashi, C. Clanet, I. Shimoyama, and D. Quéré, “How merging droplets jump off a superhydrophobic surface : Measurements and model,” *Phys. Rev. Fluids*, vol. 2, p. 112001, Nov. 2017.
- [100] D. Beysens, “Dew nucleation and growth,” *Comptes Rendus Physique*, vol. 7, pp. 1082–1100, Nov. 2006. Number : 9-10.
- [101] J. Guadarrama-Cetina, R. D. Narhe, D. A. Beysens, and W. González-Viñas, “Droplet pattern and condensation gradient around a humidity sink,” *Physical Review E*, vol. 89, p. 012402, Jan. 2014. Number : 1.
- [102] I. O. Ucar and H. Y. Erbil, “Dropwise condensation rate of water breath figures on polymer surfaces having similar surface free energies,” *Applied Surface Science*, vol. 259, pp. 515–523, 2012.
- [103] M. M. Garimella, S. Koppu, S. S. Kadlaskar, V. Pillutla, Abhijeet, and W. Choi, “Difference in growth and coalescing patterns of droplets on bi-philic surfaces with varying spatial distribution,” *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 505, pp. 1065–1073, Nov. 2017.
- [104] A. M. Macner, S. Daniel, and P. H. Steen, “Condensation on Surface Energy Gradient Shifts Drop Size Distribution toward Small Drops,” *Langmuir*, vol. 30, pp. 1788–1798, Feb. 2014. Number : 7.
- [105] W. Soedel, *Vibrations of Shells and Plates*. Marcel Dekker, New York, third edition ed., 2044.
- [106] N. Otsu, “A threshold selection method from gray-level histograms,” *IEEE Transactions on Systems, Man, and Cybernetics*, vol. 9, no. 1, pp. 62–66, 1979.
- [107] F. Vandenbrouck, M. P. Valignat, and A. M. Cazabat, “Thin nematic films : Metastability and spinodal dewetting,” *Physical Review Letters*, vol. 82, no. 13, pp. 2693–2696, 1999.

- [108] R. Seemann, S. Herminghaus, and K. Jacobs, “Gaining control of pattern formation of dewetting liquid films,” *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 13, no. 21, pp. 4925–4938, 2001.
- [109] J. Becker, G. Grün, R. Seemann, H. Mantz, K. Jacobs, K. R. Mecke, and R. Blossey, “Complex dewetting scenarios captured by thin-film models,” *Nature Materials*, vol. 2, no. 1, pp. 59–63, 2003.
- [110] A. J. Bray, “Theory of phase-ordering kinetics,” *Adv. In Physics*, vol. 43, pp. 357–459, May 1994.
- [111] R. Mukherjee and A. Sharma, “Instability, self-organization and pattern formation in thin soft films,” *Soft Matter*, vol. 11, no. 45, pp. 8717–8740, 2015.
- [112] K. Jacobs, R. Seemann, and K. Mecke, “Dynamics of Structure Formation in Thin Liquid Films : A Special Spatial Analysis,” in *Statistical Physics and Spatial Statistics* (K. R. Mecke and D. Stoyan, eds.), vol. 554, pp. 72–91, Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2000. Series Title : Lecture Notes in Physics.
- [113] M. Barthélemy, “Spatial networks,” *Physics Reports*, vol. 499, pp. 1–101, Feb. 2011.
- [114] A. Menchaca-Rocha, A. Martínez-Dávalos, R. Núñez, S. Popinet, and S. Zaleski, “Coalescence of liquid drops by surface tension,” *Physical Review E*, vol. 63, p. 046309, Mar. 2001. Number : 4.
- [115] X. Tang, A. Saha, C. K. Law, and C. Sun, “Bouncing drop on liquid film : Dynamics of interfacial gas layer,” *Physics of Fluids*, vol. 31, p. 013304, Jan. 2019. Number : 1.
- [116] J. C. McDonald, D. C. Duffy, J. R. Anderson, D. T. Chiu, H. Wu, O. J. A. Schueller, and G. M. Whitesides, “Fabrication of microfluidic systems in poly(dimethylsiloxane),” *Electrophoresis*, vol. 21, pp. 27–40, Jan. 2000.
- [117] L. Vagharchakian, F. Restagno, and L. Léger, “Capillary Bridge Formation and Breakage : A Test to Characterize Antiadhesive Surfaces [†],” *The Journal of Physical Chemistry B*, vol. 113, pp. 3769–3775, Mar. 2009. Number : 12.
- [118] F. Restagno, C. Poulard, C. Cohen, L. Vagharchakian, and L. Léger, “Contact Angle and Contact Angle Hysteresis Measurements Using the Capillary Bridge Technique,” *Langmuir*, vol. 25, pp. 11188–11196, Sept. 2009. Number : 18.
- [119] V. Mohan, “Performance analysis of canny and sobel edge detection algorithms in image mining,” *International Journal of Innovative Research in Computer and Communication Engineering*, pp. 1760–1767, 10 2013.
- [120] S. Moulinet, C. Guthmann, and E. Rolley, “Roughness and dynamics of a contact line of a viscous fluid on a disordered substrate,” *The European Physical Journal E*, vol. 8, pp. 437–443, July 2002. Number : 4.
- [121] J. G. Petrov, J. Ralston, M. Schneemilch, and R. A. Hayes, “Dynamics of Partial Wetting and Dewetting in Well-Defined Systems,” *The Journal of Physical Chemistry B*, vol. 107, pp. 1634–1645, Feb. 2003.
- [122] R. Lhermerout, *Mouillage de surfaces désordonnées à l'échelle nanométrique*. PhD thesis.

Influence de l'angle de contact sur le rayon d'étalement d'une goutte lors d'un impact.

La Figure A.1 représente la différence entre le rayon d'une goutte et le rayon initial de celle-ci au cours du temps, lors d'un impact. Ces mesures ont été réalisées par un stagiaire, Julien Sylvestre, d'école d'ingénieur . La Figure A.1.a) correspond à des gouttes dont l'angle de contact est compris entre θ_e et θ_a . La Figure A.1.b) correspond à des gouttes qu'on a laissées s'évaporer jusqu'à ce que l'angle de contact soit proche de θ_r . Nous avons réalisé des impacts dans les mêmes conditions. On s'intéresse uniquement à la première variation du rayon. On observe que l'étalement maximal des gouttes augmente d'autant plus que le rayon initial est grand. Cependant, lorsque l'angle de contact est proche θ_r on observe que ce rayon maximal est plus faible pour un même rayon initial. Ces mesures préliminaires montrent ainsi, également l'importance de l'hystérésis sur l'étalement d'une goutte lors d'un impact.

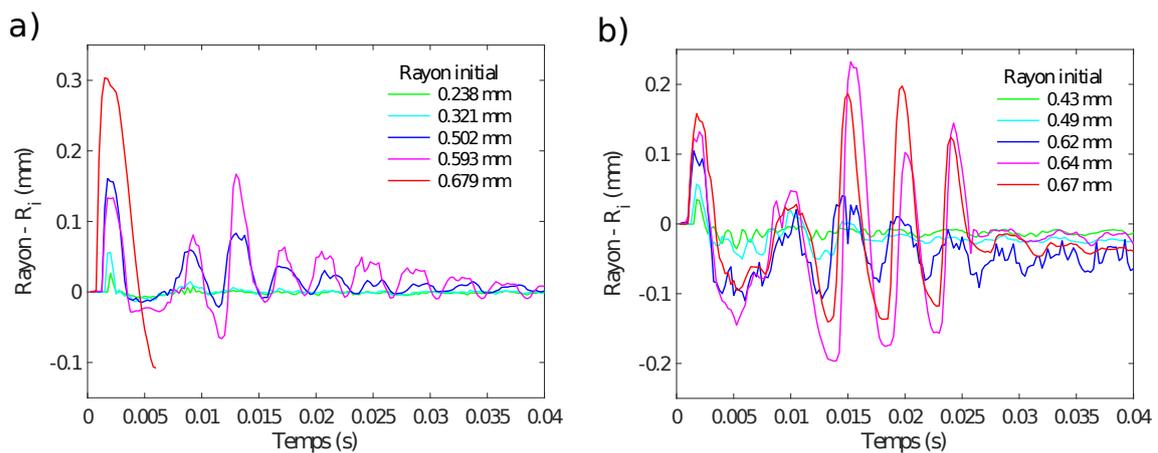


FIGURE A.1 – Variation du rayon de gouttes de différentes taille en fonction du temps sur une plaque de polycarbonate pour a) un angle de contact proche de θ_a et b) un angle de contact proche de θ_r

Annexe **B**

Betti *et al*, accepté à Phys. Rev. Fluids.
(2022).

mean droplet radius. Interestingly, all the data fall on a single master curve.

Impact on a breath figure

L. Betti, C. Cohen,* and X. Noblin[†]

*Université Nice Côte d'Azur, Institut de Physique de Nice,
CNRS UMR 7010, Site Valrose, Parc Valrose, 06108 Nice Cedex 2, France*

(Dated: October 6, 2022)

Abstract

We present here the effect of mechanical vibrations on a breath figure. By impacting a falling steel ball on a plastic plate covered on its bottom side by a breath figure, we show that in a few milliseconds, the figure can evolve even more dramatically than it would in minutes in the natural aging process. We quantify the variations of droplets number and sizes with time for various substrate accelerations and mean initial droplets radii. We show that, above an acceleration threshold, the final number of droplets decreases more and more with acceleration. **We interpret this result by the contact line unpinning provoking oscillations of the droplets radii, which makes the drops contact and coalesce with neighbors.** Finally, we introduce a new parameter to characterize the droplet number decrease. We have plotted it as function of an effective Bond number built with the substrate acceleration and mean droplet radius. **Interestingly, all the data fall on a single master curve.**

I. INTRODUCTION

A breath figure describes the droplet pattern formed when water vapor condenses onto a cold surface in a humid environment. The evolution of breath figure in time has been actively studied experimentally and numerically during the last decades [1, 2], motivated by understanding droplets growth [3, 4], thin film vapor deposition [5], or improving other applied systems [6, 7] such as dew recovery system [8]. The recovery of dew water is indeed nowadays of a crucial environmental interest for water delivery in arid regions [9]-[10].

Dew formation can be also problematic for industrial application. It can affect visibility through a transparent surface and produce security or aesthetic issues: cars' windshields, supermarket freezer's doors or eyeglasses. To minimize these problems several directions can be followed. One can dry the air [11], make a treatment that limits the nucleation of droplets, or collect the droplets by moving them away from the surface using gravity, helped eventually by an adapted surface treatment to make their motion easier [12–16].

The breath figure's growth kinetics can be followed by measuring the droplets radii over time [2]. First, nano-metric droplets of spherical cap shape are formed by heterogeneous

* celine.cohen@unice.fr

† xavier.noblin@unice.fr

nucleation. During the moment just after droplets nucleation, drops **grow** individually without coalescence and their mean radii increase initially with time following a power law: $\langle R \rangle \propto t^{\frac{1}{2}}$ as they are independent, then $\langle R \rangle \propto t^{\frac{1}{3}}$ when vapor concentration profile around them overlap. After a certain time, when drops are larger and close enough, they start to coalesce with each other and the mean radius evolution with time becomes linear: $\langle R \rangle \propto t$ [1, 2][10].

The influence of the substrate's wettability, roughness and geometry on breath figure evolution have been explored in different studies [17–19]. They show that the droplet growth can be enhanced or reduced, by geometric or thermal discontinuities [20].

In addition, when drops are large enough, they will slide on a vertical or inclined surface due to gravity [21]-[22] which is particularly useful for collecting water [8].

In order to rapidly increase drops size without waiting for the natural growth, it can be interesting to solicit directly the droplets to trigger the coalescence. Inducing the coalescence of two droplets has already been studied in literature from the fundamental point of view [23, 24] and used to trigger the mixing of two liquids to study a chemical reaction [25] for example. Furthermore, it has been also demonstrated that vibrations or electrowetting allow to move the contact line of a sessile droplet [26, 27] on a substrate in a controlled way, but also the whole droplet [28–30].

The aim of the present study is to explore how mechanical vibrations of a solid substrate impacts the coalescence of droplets and modify the breath figure evolution. The aim is to accelerate the natural evolution of the breath figure towards larger drops which will more easily slide away from the surface.

Here, we developed a simple way to induce vibration of a solid surface with high acceleration by impacting a solid projectile on a substrate that is covered on the back by a breath figure. We have studied in detail the evolution of the drop mean radius and the drop number over time during an impact for different height of falling projectile and different location on the surface from the impacting point.

We present first in this manuscript the experimental setup, its characterization and the image analysis method. The vibration of the plate was determined as function of the impact height and the observed zone on the plate. This gives us a tool to vary the acceleration felt by the droplets. Then, we present the influence of the acceleration on the size distribution and the droplets number of a breath figure after an impact.

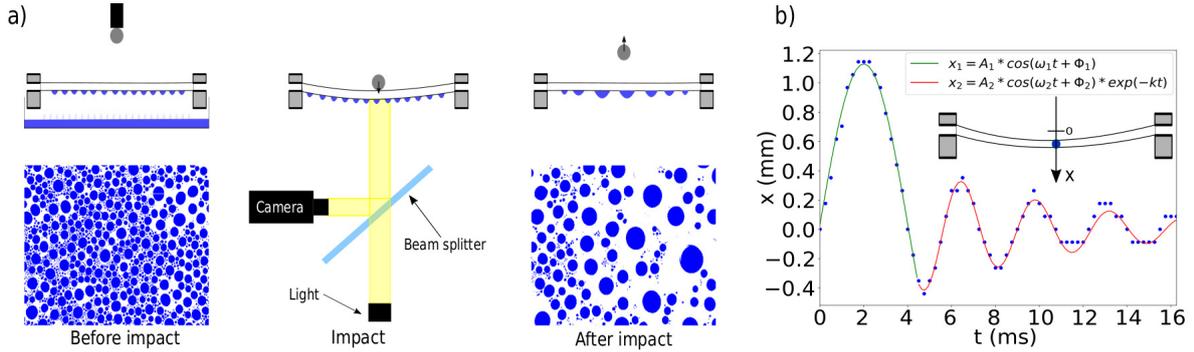


FIG. 1. a) left: side and top view before impact, a) center: Experimental setup to impact a solid projectile on the back of a solid substrate that is covered with a breath figure and side view at the moment of impact. a) right: side and top view after impact. b) Measured motion of the substrate's center induced by the impact of the projectile.

II. MATERIALS AND METHODS

The experimental setup is schematized on Fig.1.a). A breath figure is obtained by exposing a substrate facing down toward the vapor of a hot deionized water reservoir during a given time. Then the reservoir is removed just before the onset of impact. A solid magnetic ball ($m = 60g$, $\varnothing = 2.5cm$), named projectile is dropped above the center of the substrate, by turning off an electromagnet disposed just above it at a chosen height H . The substrate is clamped by two metallic pieces screwed regularly, all along its edges, to ensure axisymmetrical deformations. A fast camera aligned with a beamsplitter under the substrate, allows to capture images of the condensed drops during the experiment from below. The substrate is illuminated with a fiber optics illuminator (Edmundoptics) through the beamsplitter.

The substrate is an industrial poly-carbonate (PC) circular plate of diameter $d = 14 cm$ and thickness $h = 3 mm$. Its wetting properties was characterized by measuring the advancing θ_a and receding θ_r contact angles using a classical sessile drop technique using a homemade apparatus with vertical syringe tip connected to a precise syringe pump to increase and decrease the volume of the droplet. The side view and image analysis of the droplets lead to the measurement of the wetting angles (advancing, receding) at very low speed (of order $1 \mu m/s$). The difference between these two angles is defined as the contact angle hysteresis of the surface ($\Delta\theta = \theta_a - \theta_r$) and it informs on the ability of the drop to move on the surface. Indeed, drops can be easily displaced on surfaces presenting low

contact angle hysteresis. In our case, the results are: $\theta_a = 85.3 \pm 0.5^\circ$, $\theta_r = 61.9 \pm 1.6^\circ$ and $\Delta\theta = 23.4 \pm 2^\circ$.

Motions of the substrate induced by the impact of the projectile have been characterized as function of the position on the substrate from the impacting point by observing the motion of millimetric pillars stuck at different position on the surface. For each position, we have plotted the vertical displacement of the pillar bottom x_i , as function of time. In addition, for each position on the surface, for a given dropping height, we observe a uniform vibration of the pillars at the same frequency, only the amplitude varies, hence the plate oscillates at its first mode. A typical result is presented on the Fig.1.b). The signal is composed of two parts. The first part : a arched curve larger and higher than the next ones, representing the impact, when the metallic ball is in contact with the substrate. The second part of the signal correspond to the free vibration of the substrate, when the projectile has left the substrate. This parts can be fitted respectively by: $x_1 = A_1 * \cos(\omega_1 t + \Phi_1)$ (green) and by : $x_2 = A_2 * \cos(\omega_2 t + \Phi_2) * \exp(-kt)$ (red) with A_1 and A_2 the respective amplitudes, ω_1 and ω_2 the respective pulsations, Φ_1 and Φ_2 the phases and k . We determine the two pulsations $\omega_1 < \omega_2$ (corresponding frequency : 125 Hz for the green part and 315 Hz for the red part). The difference between the two pulsations comes from the presence of an additional mass during impact (the metallic ball), corresponding to a higher effective mass of the plate. The eigenfrequencies of a clamped circular plate can be calculated for the first mode as [31]: $\omega_P = 40.858 \sqrt{\frac{Eh^2}{\rho d^4 12(1-\nu^2)}}$, E is the Young's modulus, ρ the density, h the thickness, d the diameter and ν the Poisson ratio. When the ball is in contact with the plate, the frequency can be rewritten as: $\omega_B = 40.858 \sqrt{\frac{\pi E h^3}{48(1-\nu^2)d^2(M_P+M_B)}}$. M_P is the mass of the plate and M_B is the mass of the ball. Then indeed, increasing the mass implies a decrease of ω , it explains the two frequency measured ω_1 and ω_2 . Since the main part of the vibration coalescence phenomenon occurs at impact, we have chosen to use only A_1, ω_1 to characterize the impact. Derivating two times this signal allowed to deduce the acceleration of the substrate at the moment of impact t_{impact} by: $\ddot{x}_1(t_{impact}) = A_1 \omega_1^2 = a_1$.

The film from the high-speed camera was obtained at 4000 fps. The image analysis was carried out on the software ImageJ using a threshold method to distinguish droplets. The Fig.1.a) presents two treated images of a breath figure (before and after impact). We measure on those images, the number of droplets, the wetted area and the droplet size distribution. As it is classically observed for breath figure, the initial droplets size distribution is bi-modal,

with a distribution of small and large droplets [2]. **The small droplets being** linked to new nucleation events between larger drops that are sufficiently far apart to prevent the overlap of their water vapor concentration profiles, **the large droplets** are linked to the initial nucleation events and have grown more, eventually also by coalescence. We have chosen to identify the breath figures by the mean contact radius of this later category, **the larger droplets** R_m . We set a minimum droplet area for the detection by the software around 0.03 mm^2 . The mean covered area is obtained by the following formula: $\langle S \rangle = \frac{\sum s_i}{N}$, where s_i is the contact area of the droplet i and N is the total number of droplets. The mean contact radius is converted from $\langle S \rangle$ by: $R_m = \sqrt{\frac{\langle S \rangle}{\pi}}$. This measurement R_m is used as a criteria for the breath figure aging. In the case discussed later where the droplets are not exactly circular after the impact effects, but elliptical, the mean radius R_m calculated is still a very good parameter of the new drop sizes, simply being the geometrical average of small and large axis of such elliptical droplets.

III. RESULTS AND DISCUSSION

A. Typical experiment

The Fig.2 illustrates the results obtained for a typical impact experiment : a) an image sequence; b) the ratio between the total area covered with water drop S and the initial wetted area S_0 as function of time with references to the images of the key moments (A to E); c) a graph of the ratio the number of droplets over the initial one (red) and the mean droplet radius (blue) as function of time.

Image [A]: corresponds to the initial breath figure formed after a certain condensation time, which is characterized by R_m .

Images [B-C]: have been obtained at the impact moment, when the magnetic ball is still in contact with the solid surface. If the acceleration of the substrate is large enough, contact lines of most of the droplets are unpinned and droplets start to vibrate. Their radius expand and retract as it has been described by Noblin et al.[27]. If droplets are close from each others, they can touch and coalesce for finally giving birth to larger droplets. Multiple droplet coalescence can occur at the same time. This process can be observed on the zoomed part between images A and B (Fig. 2). Therefore, during this first oscillation of the drops,

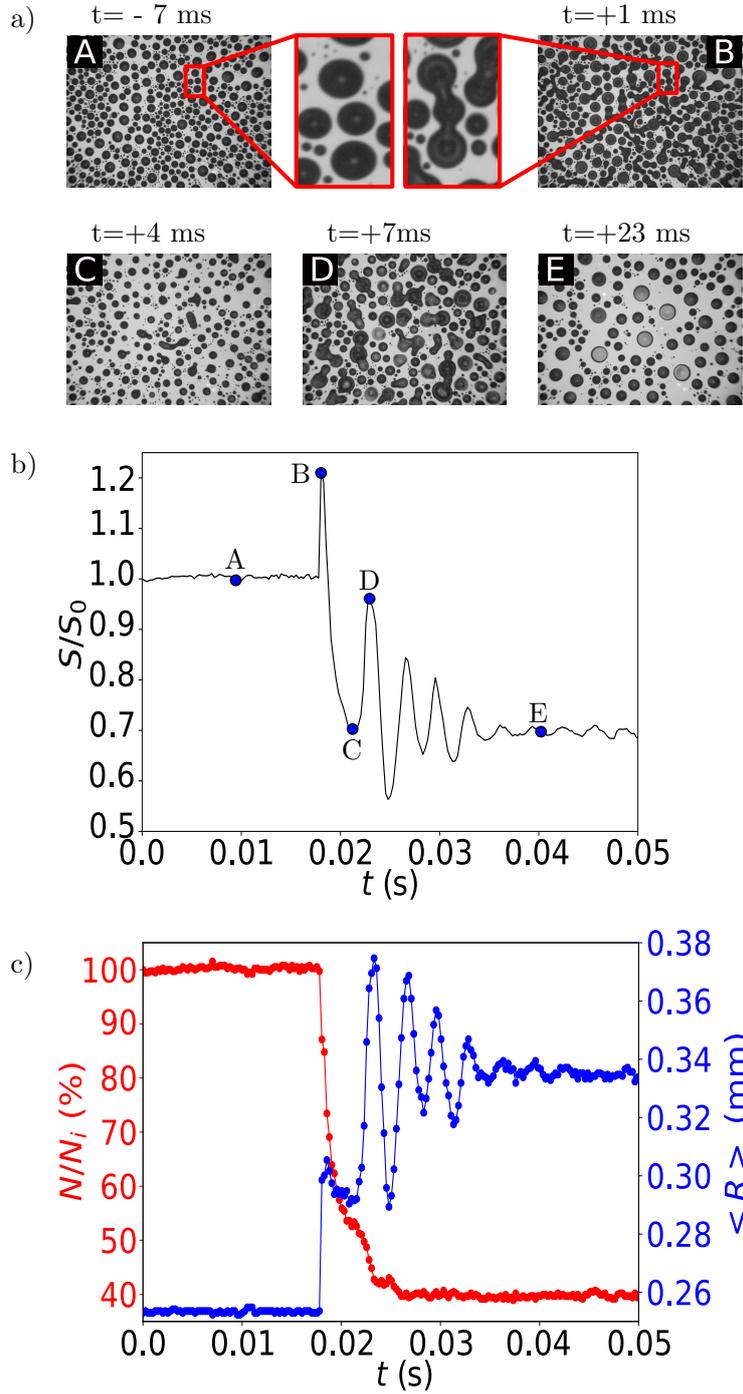


FIG. 2. a) Breath figure key moments images during a typical experiment. The time corresponds to delay after impact. b) Evolution of the total wetted area S normalised by the initial wetted area S_0 as function of time corresponding to the images above c) Relative number of droplets in percent of the initial value (red) and average droplets contact radius as function of time (blue).

a few coalescence events occur which correspond to the first variation of the wetted area (from A to B until C) and the decrease in the droplet number on graph b on Fig. 2.

Images [D-E]: The new droplets continue to oscillate forced by the substrate free oscillations (when ball has left the surface), involving new coalescence events. It occurs when two droplets coalesce while oscillating. They will be able to touch, in a second time, other drops. If the drop is far from the others, its radii oscillates between a maximum value to a minimum one until the substrate stop to move.

In the end, there are less droplets but those are bigger than initial ones and so the final total wetted area is also smaller (E). Finally, in a very short characteristic time (around 20 ms), the number of droplet and the wetted area have been drastically reduced and the droplets size increased.

In the most extreme cases when the initial droplets are large or the acceleration is high enough, we can achieve a state were all the droplets are connected, forming a continuous liquid network, as illustrated in Fig.3 a) or b), $t=2.5$ ms . This is similar to spinodal dewetting [32–34], demixing or coarsening patterns [35, 36].

We can hence observe three different coalescence pattern for the three accelerations presented: 3.a) liquid film with small dry holes as for $t=1.25$ ms where water cover most of the surface. 3.b) liquid network of long filaments as for $t=2.5$ ms. 3.c) Localized coalescence event of few droplets as for $t=1.25, 2.5$ and 4.75 ms.

Due to contact angle hysteresis, **when the vibrations** are stopped soon after a coalescence event, the final shape of droplets is not always circular. This has been shown in particular in [5]; we observe the same feature here. In our case, the moderate hysteresis **leads**, even in case of really strong deformation as in Fig. 3 time $t=4,75$ ms, to a state where most droplets are finally ($t=40$ ms) close to be circular, a few being clearly elliptical.

B. Droplets Number Reduction

We have studied the influence of an impact on a breath figure by comparing the droplet number and the initial mean contact radius before and after the impact. We define the droplet number reduction as $\%DNR = 100 * (1 - N_f/N_i)$, where N_i and N_f are respectively the initial and final number of droplets in the field of view. This number gives an information on the number of coalescence and represents in a certain way the efficiency of an impact. A

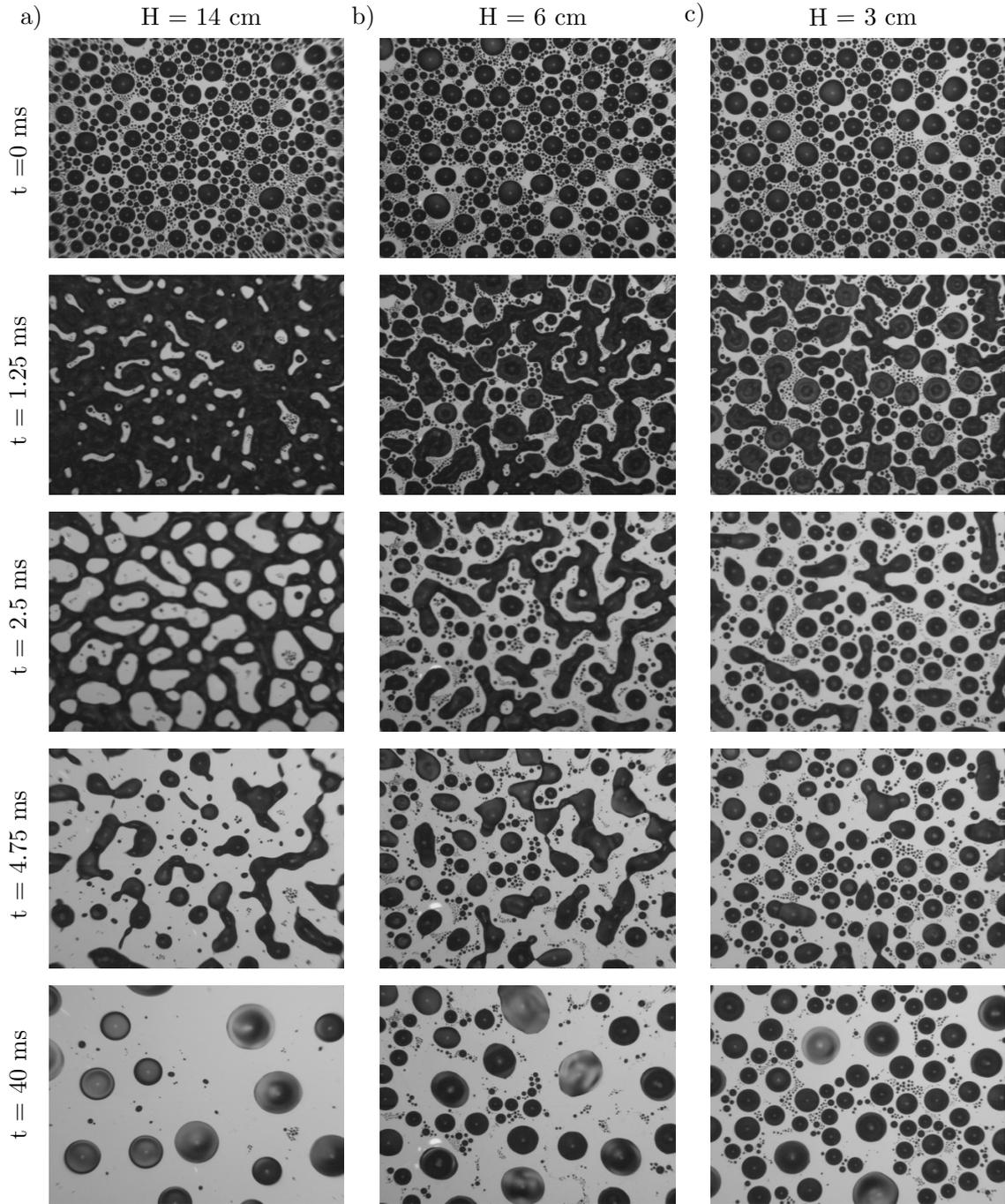


FIG. 3. Breath figure coalescence pattern at various time after impact for three accelerations (varied using height H).

high $\%DNR$ value implies that most droplets have been set in motion and many coalescence events happened, making the impact very efficient.

Fig.4 presents the droplet number reduction as function of their initial mean contact radius R_m , for five different values of substrate acceleration. The acceleration has been varied by two different ways : fixing the dropping height and varying the observation area (full symbols) or by fixing the observation area and varying the dropping height (empty symbols). Each position on the substrate, as explained in the previous section, is characterized by a different acceleration value. The mean contact radius has been varied by changing the condensing time. We can see that for each case, the curve follow the same tendency. First, $\%DNR$ is closed to zero until the mean contact radius reaches a certain threshold value R_s . Then $\%DNR$ starts to increase linearly until R_m reaches another limit value, when $\%DNR$ is maximal. Furthermore, we can notice that the value of the threshold radius depends on the acceleration. More precisely, the smaller the acceleration is the larger the drops needs to be in order to be able to coalesce with their neighbors. The threshold radius can be explained by the fact that a minimum acceleration is needed in order to unpin contact lines and to involve a sufficient expansion of drop radius to allow coalescence event to occur.

Indeed, Noblin et al. [26]-[27] showed that for a specific frequency there is a threshold acceleration needed to set the contact line into motion. In addition, they show that maximum vibrations of drops are obtained when the excitation frequency is closed to the natural frequency of the drop which depends on its size. In our case, there is a wide range of frequencies which allows to induce sufficient movement of drops of different sizes. There are also a few specific frequencies as shown in Fig. 1 which can excite droplets, as long as it is not larger than their natural frequencies. This shows also that we have measured R_s as function of the acceleration by taking the value of R_m from which $\%DNR$ is higher or equal to 10%. This difference in term of thresholds (that are different and decreasing in term of R_m for increasing acceleration) could be explained by the acceleration needed to counteract the high surface tension effect acting for these smaller droplet sizes. We propose then to analyse our results in term of an effective Bond number β .

C. Effective Bond number approach

Indeed, β is a dimensionless number measuring the importance of gravity or another external acceleration compared to surface tension force. Hence, one defines an effective

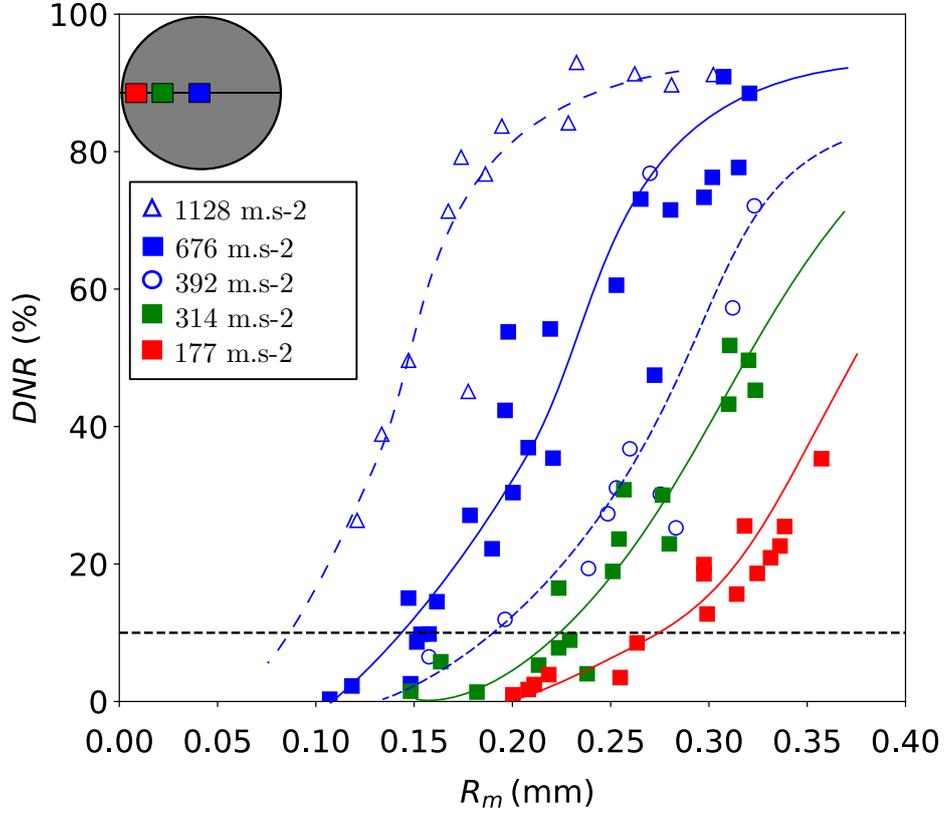


FIG. 4. Droplet number reduction as function of the initial mean contact radius, under different acceleration. The different curves are tendencies showing the typical variations with threshold and saturation and are only guides for the eye.

Bond number β^* which take the substrate acceleration into account instead of g as :

$$\beta^* = \frac{\Delta\rho a_1 R_m^2}{\gamma} \quad (1)$$

Here $\Delta\rho$ is the difference in density of the two phases (liquid and gas), a_1 is the acceleration of the substrate around the studied area and R_m is the initial mean contact radius.

Fig. 5 presents the %DNR as function of β^* re-scaled by β_{max}^* . It shows that all the curves fall on a single master curve. **Interestingly, this representation highlights in a quantitative way** the role of droplets radii and substrate acceleration in a simple way through the specific Bond number.

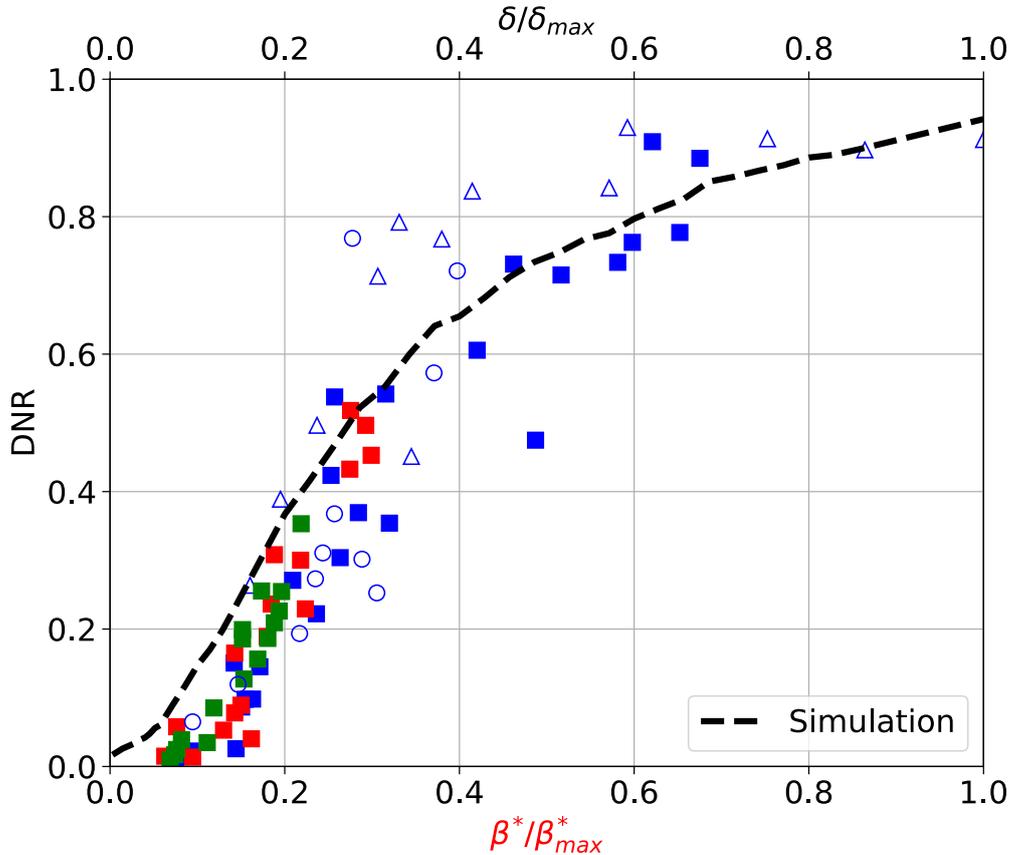


FIG. 5. Symbols: experiments, from the same data set as in Fig.4, with the same symbol characteristic of the acceleration. The $\%DNR$ is plotted as function of the re-scaled specific bond number. Dashed line: numerical simulation, the $\%DNR$ is plotted as function of the droplet spreading factor δ re-scaled with its maximal value (upper horizontal axis showing the same numerical values as for the re-scaled Bond Number).

D. Simple Numerical approach

In order to reproduce the experiments presented and especially the curve obtained in Fig. 5, we have performed numerical simulations. The approach is simple and consist in having a finite system made of a few hundreds of droplets, the same as in the experimental window and describing each droplet i by a circular object (placed at given center of mass (X_i, Y_i) , with radius $r_0(i)$). These objects corresponds at rest to hemispherical droplet of volume $V_i = \frac{2}{3}\pi r_{0,i}^3$. The initial state at $t = 0$ is set from an image of a real breath figure from an experiment. Upon impact at t_{impact} , we assume that the radius r of each droplets is

increased by a factor δ varying from 0.1% to 35% of the initial radius. $r_i(t_{impact}) = r_{0,i}(1 + \delta)$. This range has been estimated from impact experiments. The coalescence occurs between two drops (i, j) when the condition (of overlapping): $d \leq r_i + r_j$ is verified with d_{ij} the distance between the two droplets, giving birth to a unique droplet : $V_k = V_i + V_j = \frac{2}{3}\pi r_{0,k}^3$, $X = \frac{X_i \rho V_i + X_j \rho V_j}{V_i + V_j}$ and $Y = \frac{Y_i \rho V_i + Y_j \rho V_j}{V_i + V_j}$. If the condition is not met, each corresponding droplet l **remains** with the radius at $t = t_{impact}$ equal to $r = r_0 + \delta$. After this first iteration, the system keeps on evolving since for $t > t_{impact}$ the new droplets oscillate as : $r_k(t) = r_{0,k} + \delta r_{0,k} \cos(\omega(t - t_{impact})) \exp(-(t - t_{impact})/\tau)$. At each following iteration of the simulation, for each droplet, the condition is checked if it **were** overlapping with another neighboring droplet during the damped oscillations process that last a few periods. These simulations have been realized several times for each value of the radius expansion factor at impact: δ . It allows to explore and multiply the amount of data. We have calculated at the last steps of the simulation (when no more droplets oscillate and eventually coalesce) the number of droplets and measure for each simulation the %DNR. **If we assume that the droplets oscillation amplitude were proportional to the acceleration, then a direct link should exist** between δ and β^* . To compare the %DNR in the experiments and in the simulation, we have plotted in Fig. 5 the curves as function of the normalized values (β^*/β_{max}^* and δ/δ_{max}). This upper and lower axis vary both from 0 to 1. We find again a good agreement between simulation and experiments, obtaining a simulated master curve (dash line) as shown in Fig. 5. We note that there is a deviation at low values, close to the threshold. In the simulation, the approach does not consider contact angle hysteresis effects. i) **As** soon as two droplets coalesce, they form a new, perfectly circular droplet which would not be the case with hysteresis. ii) The direct correspondence between δ/δ_{max} and β^*/β_{max}^* means that even with a tiny value of δ , there will be in the simulation a reduction of the droplet number, but in the experiments with hysteresis, for low value of β , due to the threshold linked to contact angle hysteresis, there is no radius oscillations so strictly no reduction in the droplet number. This explains why for β^*/β_{max}^* below 0.15 there is a discrepancy with the simulated curve that does not present any threshold and goes to 0 for a null value of δ/δ_{max} .

IV. CONCLUSION

In conclusion, we have shown that when a plate supporting a breath figure is vibrated through an impact, it may lead to a fast evolution of the droplets pattern. The main parameters explored are the initial mean radius R_m of the large droplets and the substrate's acceleration (a_1). The larger both parameters are, the higher the reduction in droplet number is (and consequently the higher their mean final radius is). The physical explanation for this phenomenon is the radius oscillation of the droplets that can touch their neighbors and coalesce. Each time such event happens, the number of droplets decreases and the mean radius increases. For sufficiently high accelerations or mean radius, the droplets number can be reduced up to 95%. This is coherent with the fact that there is a threshold acceleration needed to unpin the contact line.

We introduced a specific Bond number β^* built with R_m and a_1 . This allows to obtain a master curve for the % DNR that quantitatively gather all the data and enables predictions.

We compared our experimental results **with a numerical approach showing** a very good agreement, except at values close to the threshold acceleration since the numerical method **does not consider** hysteresis effects, consequently not showing thresholds effects, but having the exact same behavior for large amplitude of vibrations.

This method can be very useful for dew recovery systems, improving the efficiency by accelerating the droplets growth from the coalescence of many droplets, in a very short time compared to the natural growth.

This can be interesting to help removing droplets from a substrate, but also as a new fundamental system of interest since it gives another ways to induce the droplet growth and to understand the link between hysteresis, droplets coalescence on a multi droplets systems. In such systems, new behaviors can emerge and should be new topics to explore. In particular to make links with spinodal decomposition and also for more many-droplets interactions (not only **2-body** system). The dynamics **of large** filaments of liquids as function of wetting characteristics of the surface is also an interesting perspective.

V. ACKNOWLEDGMENTS

We would like to thank Julien Sylvestre for his help and CNRS and Université Côte d'Azur for funding.

VI. SUPPLEMENTAL MATERIAL

3 High speed movies (4000 fps) of a breath figure submitted to vibrations of its support due to an impacting bead corresponding to Fig. 3 have been added online. The falling heights are here 3, 6 and 14 cm, respectively for the files "PC-3cm.mp4", "PC-6cm.mp4" and "PC-14cm.mp4".

-
- [1] D. Beysens, A. Steyer, P. Guenoun, D. Fritter, and C. M. Knobler, How does dew form?, *Phase Transitions* **31**, 219 (1991).
 - [2] F. Family and P. Meakin, Kinetics of droplet growth processes: Simulations, theory, and experiments, *Physical Review A* **40**, 3836 (1989).
 - [3] B. Briscoe and K. Galvin, An experimental study of the growth of breath figures, *Colloids and Surfaces* **56**, 263 (1991).
 - [4] D. Fritter, C. M. Knobler, D. Roux, and D. Beysens, Computer simulations of the growth of breath figures, *Journal of Statistical Physics* , 13 (1988).
 - [5] H. Zhao and D. Beysens, From droplet growth to film growth on a heterogeneous surface: Condensation associated with a wettability gradient, *Langmuir* **11**, 627 (1995).
 - [6] G. Widawski, M. Rawiso, and B. François, Self-organized honeycomb morphology of star-polymer polystyrene films, *Nature* **369**, 387 (1994).
 - [7] A. Böker, Y. Lin, K. Chiapperini, R. Horowitz, M. Thompson, V. Carreon, T. Xu, C. Abetz, H. Skaff, A. D. Dinsmore, T. Emrick, and T. P. Russell, Hierarchical nanoparticle assemblies formed by decorating breath figures, *Nature Mater* **3**, 302 (2004).
 - [8] M. Muselli, D. Beysens, J. Marcillat, I. Milimouk, T. Nilsson, and A. Louche, Dew water collector for potable water in Ajaccio (Corsica Island, France), *Atmospheric Research* **64**, 297 (2002).

- [9] D. Beysens, *Dew Water*, (River Publishers, Gistrup, 2018).
- [10] D. Beysens, *The Physics of Dew, Breath Figures and Dropwise Condensation*, 1st ed., Lecture Notes in Physics No. Vol 994 (Springer Verlag, Berlin, 2022).
- [11] J. E. Castillo, J. A. Weibel, and S. V. Garimella, enThe effect of relative humidity on dropwise condensation dynamics, *International Journal of Heat and Mass Transfer* **80**, 759 (2015).
- [12] K. K. Varanasi, M. Hsu, N. Bhate, W. Yang, and T. Deng, enSpatial control in the heterogeneous nucleation of water, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 094101 (2009).
- [13] A. Lee, M.-W. Moon, H. Lim, W.-D. Kim, and H.-Y. Kim, enWater harvest via dewing, *Langmuir* **28**, 10183 (2012).
- [14] D. Nioras, K. Ellinas, V. Constantoudis, and E. Gogolides, How different are fog collection and dew water harvesting on surfaces with different wetting behaviors?, *ACS Applied Materials & Interfaces* **13**, 48322 (2021).
- [15] T. Mousterde, G. Lehoucq, S. Xavier, A. Checco, C. T. Black, A. Rahman, T. Midavaine, C. Clanet, and D. Quéré, enAntifogging abilities of model nanotextures, *Nature Mater* **16**, 658 (2017).
- [16] T. Mousterde, T.-V. Nguyen, H. Takahashi, C. Clanet, I. Shimoyama, and D. Quéré, enHow merging droplets jump off a superhydrophobic surface: Measurements and model, *Phys. Rev. Fluids* **2**, 112001 (2017).
- [17] I. O. Ucar and H. Y. Erbil, Dropwise condensation rate of water breath figures on polymer surfaces having similar surface free energies, *Applied Surface Science* **259**, 515 (2012).
- [18] M. M. Garimella, S. Koppu, S. S. Kadlaskar, V. Pillutla, Abhijeet, and W. Choi, Difference in growth and coalescing patterns of droplets on bi-philic surfaces with varying spatial distribution, *Journal of Colloid and Interface Science* **505**, 1065 (2017).
- [19] N. Pionnier, J. Vera, E. Contraires, S. Benayoun, R. Berger, and S. Valette, The effect of the orientation and the height of periodic sub-micrometric texturing on dropwise condensation, *Journal of Colloid and Interface Science* **526**, 184 (2018).
- [20] M.-G. Medici, A. Mongruel, L. Royon, and D. Beysens, Edge effects on water droplet condensation, *Phys. Rev. E* **90**, 062403 (2014).
- [21] C. Furmidge, Studies at phase interfaces.1. sliding of liquid drops on solid surfaces and a theory for spray retention, *Journal of Colloid Science* **17**, 309 (1962).

- [22] E. Pierce, F. J. Carmona, and A. Amirfazli, Understanding of sliding and contact angle results in tilted plate experiments, *Colloids and Surfaces A-Physicochemical and Engineering Aspects* **323**, 73 (2008).
- [23] N. Kapur and P. H. Gaskell, Morphology and dynamics of droplet coalescence on a surface, *Physical Review E* **75**, 056315 (2007), number: 5.
- [24] A. Lai, N. Bremond, and H. A. Stone, Separation-driven coalescence of droplets: an analytical criterion for the approach to contact, *Journal of Fluid Mechanics* **632**, 97 (2009).
- [25] X. Niu, S. Gulati, J. B. Edel, and A. J. deMello, Pillar-induced droplet merging in microfluidic circuits, *Lab on a Chip* **8**, 1837 (2008).
- [26] X. Noblin, A. Buguin, and F. Brochard-Wyart, Vibrated sessile drops: Transition between pinned and mobile contact line oscillations, *The European Physical Journal E* **14**, 395 (2004).
- [27] X. Noblin, A. Buguin, and F. Brochard-Wyart, Vibrations of sessile drops, *The European Physical Journal Special Topics* **166**, 7 (2009).
- [28] S. Daniel, M. K. Chaudhury, and P.-G. de Gennes, Vibration-actuated drop motion on surfaces for batch microfluidic processes, *Langmuir* **21**, 4240 (2005).
- [29] X. Noblin, R. Kofman, and F. Celestini, Ratchetlike motion of a shaken drop, *Physical Review Letters* **102**, 194504 (2009).
- [30] Y. Lu, A. Sur, C. Pascente, S. Ravi Annapragada, P. Ruchhoeft, and D. Liu, Dynamics of droplet motion induced by electrowetting, *International Journal of Heat and Mass Transfer* **106**, 920 (2017).
- [31] W. Soedel, *Vibrations of Shells and Plates*, third edition ed. (Marcel Dekker, New York, 2004).
- [32] F. Vandenbrouck, M. P. Valignat, and A. M. Cazabat, Thin nematic films: Metastability and spinodal dewetting, *Physical Review Letters* **82**, 2693 (1999).
- [33] R. Seemann, S. Herminghaus, and K. Jacobs, Gaining control of pattern formation of dewetting liquid films, *Journal of Physics: Condensed Matter* **13**, 4925 (2001).
- [34] J. Becker, G. Grün, R. Seemann, H. Mantz, K. Jacobs, K. R. Mecke, and R. Blossey, Complex dewetting scenarios captured by thin-film models, *Nature Materials* **2**, 59 (2003).
- [35] A. J. Bray, Theory of phase-ordering kinetics, *Adv. In Physics* **43**, 357 (1994).
- [36] R. Mukherjee and A. Sharma, Instability, self-organization and pattern formation in thin soft films, *Soft Matter* **11**, 8717 (2015).

Influence du profils du substrat sur l'angle calculé

Nous avons commencé à évaluer l'influence du profil du substrat sur le calcul de l'angle de contact via la mesure de l'aire de contact. Dans le manuscrit le substrat est considéré parfaitement sphérique.

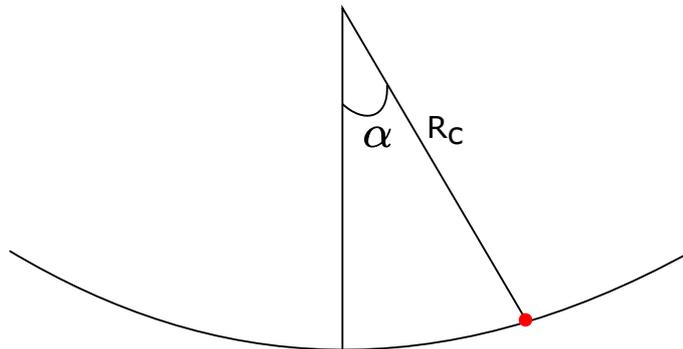


FIGURE C.1 – Profils du substrat déformés pour cinq valeurs négatives de ϵ .

Nous avons donc regardé l'influence d'une déformation symétrique, localisée au niveau de l'apex du substrat sur les valeurs numériques. On définit le profil du substrat (Figure C.1) tel que :

$$R_c(\alpha) = R_0(1 + \epsilon g(\alpha))$$

où R_0 est le rayon initial, ϵ le paramètre qui va quantifier la déformation et g une fonction gaussienne :

$$g(\alpha) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(\alpha-\mu)^2}{2\sigma^2}}$$

En fonction du signe de ϵ et des paramètres de la fonction gaussienne σ et μ , on aplatit ou bien induit une "bosse" sur notre substrat. La Figure C.2 présente un exemple d'aplatissement du substrat pour différentes valeurs de ϵ .

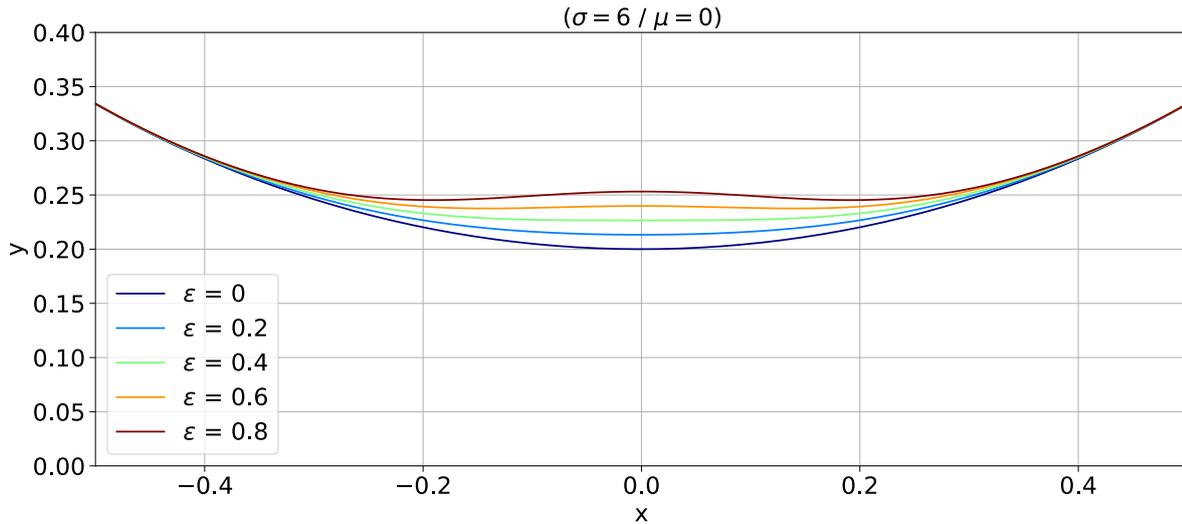


FIGURE C.2 – Profils du substrat déformés pour cinq valeurs négatives de ϵ .

Pour rappel, l'angle de contact est défini par :

$$\phi_0 = \pi - (\omega(\alpha) + \theta)$$

avec :

$$\omega(\alpha) = \alpha - a \sin\left(\frac{R'(\alpha)}{\sqrt{R(\alpha)^2 + R'(\alpha)^2}}\right)$$

La Figure C.3 présente la variation de ω par rapport au cas sphérique en fonction de α pour différentes valeurs de ϵ .

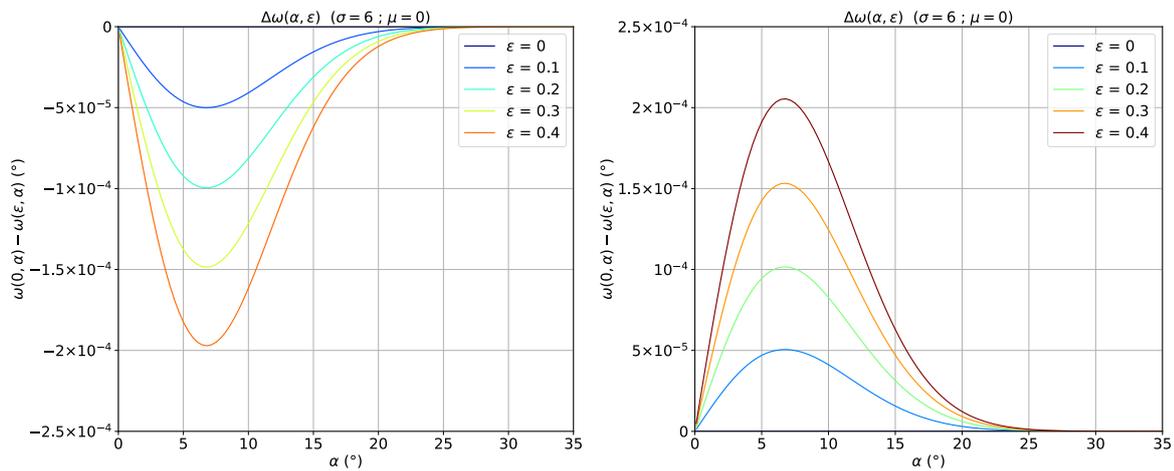


FIGURE C.3 – Variation de ω par rapport au cas sphérique en fonction de α pour différentes valeurs de ϵ .

On constate que l'influence sur la mesure de l'angle ω est extrêmement négligeable est va donc pas influencer la mesure de l'angle de contact. Dans la réalité, nous n'avons pas observé de déformation significative du substrat, ainsi l'approximation d'un substrat sphérique est acceptable.

Influence des paramètres du modèle moléculaire

Influence de $\theta_{s,r}$

Nous avons fait varier $\theta_{s,r}$ de quelques degrés. Les figures ci-dessous présentent les ajustements pour trois valeurs de $\theta_{s,r}$ pour les quatre surfaces étudiées.

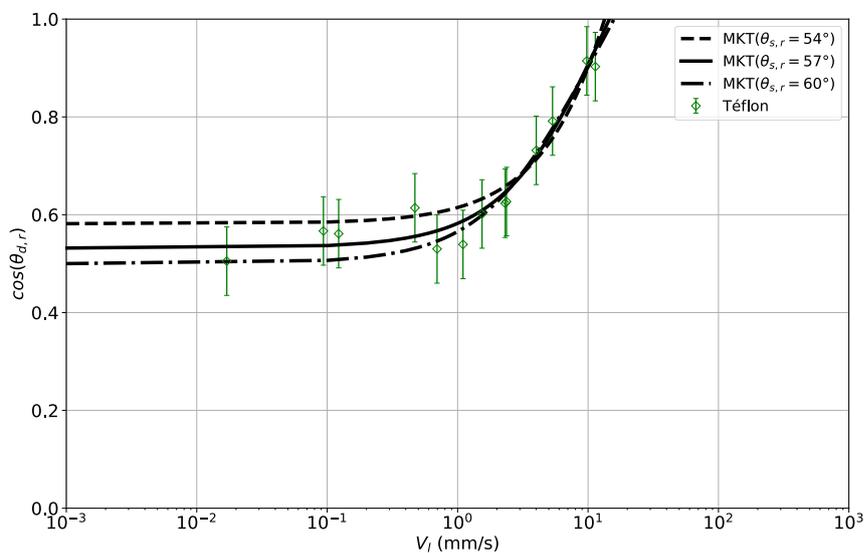


FIGURE D.1 – NOA

En faisant varier l'angle de contact sur la surface en NOA de 54° à 60° , cela induit une variation sur la valeur de λ en (m) de 4.10^{-10} à $7.2.10^{-10}$ et une variation sur la valeur de K_0 en (Hz) de $2.7.10^7$ à $2.3.10^6$.

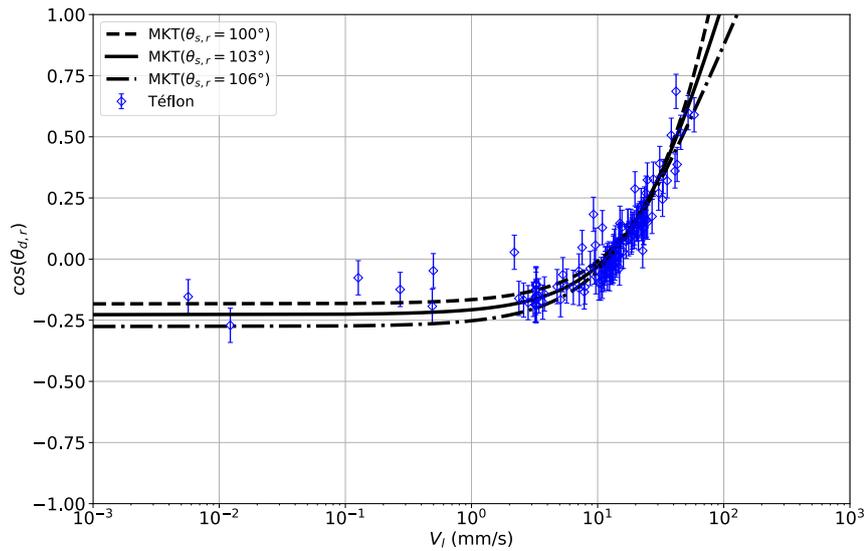


FIGURE D.2 – Téflon

En faisant varier l'angle de contact sur la surface en Téflon de 100° à 106° , cela induit une variation sur la valeur de λ en (m) de $2.8 \cdot 10^{-10}$ à $5 \cdot 10^{-10}$ et une variation sur la valeur de K_0 en (Hz) de $1.5 \cdot 10^8$ à $2.4 \cdot 10^7$.

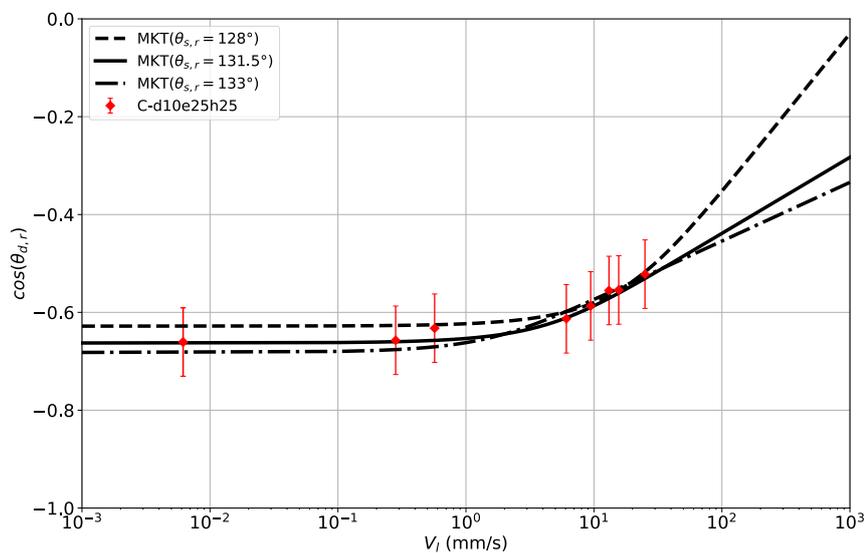


FIGURE D.3 – C-d10e25h25

En faisant varier l'angle de contact sur la surface C-d10e25h25 de 128° à 133° , cela induit une variation sur la valeur de λ en (m) de $9 \cdot 10^{-10}$ à $1.5 \cdot 10^{-9}$ et une variation sur la valeur de K_0 en (Hz) de $1.6 \cdot 10^7$ à $8.5 \cdot 10^5$.

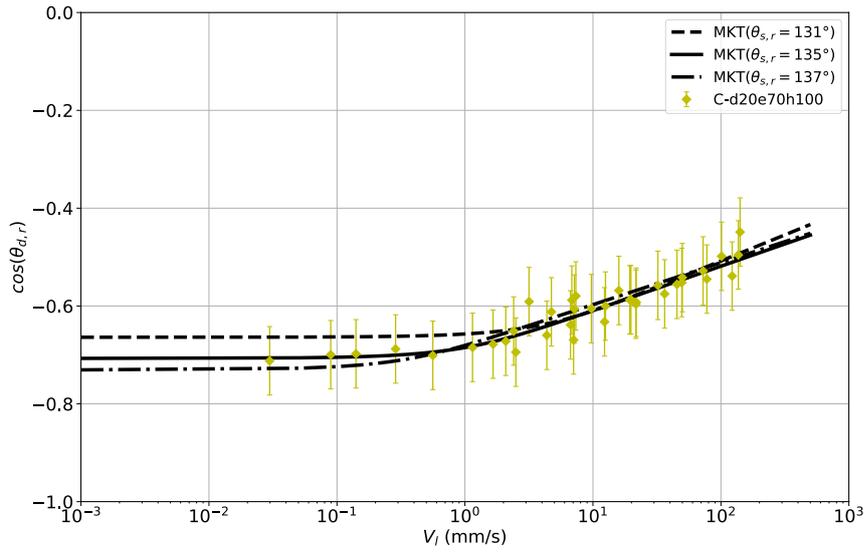


FIGURE D.4 – C-d20e70h100

En faisant varier l'angle de contact sur la surface C-d20e70h100 de 131° à 137° , cela induit une variation sur la valeur de λ en (m) de $1.6 \cdot 10^{-9}$ à $1.8 \cdot 10^{-9}$ et une variation sur la valeur de K_0 en (Hz) de $2.2 \cdot 10^6$ à $1.6 \cdot 10^5$.

Surface	$\theta_{s,r}$	λ (m)	K_0 (Hz)
NOA lisse	60°	$1 \cdot 10^{-9}$	$5.2 \cdot 10^5$
Téflon lisse	106°	$1 \cdot 10^{-9}$	$6.58 \cdot 10^5$
C-d10e25h25	131°	$1 \cdot 10^{-9}$	$7 \cdot 10^6$
C-d20e70h100	135°	$1 \cdot 10^{-9}$	$3 \cdot 10^7$

TABLE D.1 – Paramètre du modèle moléculaire pour $\theta_{s,r}$ et λ fixe.

Surface	$\theta_{s,r}$	λ (m)	(Hz)
NOA lisse	60°	$5.3 \cdot 10^{-10}$	$7.36 \cdot 10^6$
Téflon lisse	106°	$6.4 \cdot 10^{-10}$	$7.36 \cdot 10^6$
C-d10e25h25	131°	$9.9 \cdot 10^{-10}$	$7.36 \cdot 10^6$
C-d20e70h100	135°	$1.1 \cdot 10^{-9}$	$7.36 \cdot 10^6$

TABLE D.2 – Paramètre du modèle moléculaire pour $\theta_{s,r}$ et K_0 fixe.