



HAL
open science

Mouillage et dé mouillage inertiel: triplons, plaques vibrées, ondes de chocs

Xavier Noblin

► **To cite this version:**

Xavier Noblin. Mouillage et dé mouillage inertiel: triplons, plaques vibrées, ondes de chocs. Dynamique des Fluides [physics.flu-dyn]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2004. Français. NNT : . tel-00010272

HAL Id: tel-00010272

<https://theses.hal.science/tel-00010272>

Submitted on 25 Sep 2005

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.

THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PARIS 6

Spécialité :

Sciences Physiques

présentée par :

M. Xavier NOBLIN

Pour obtenir le grade de DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS 6

Sujet de la thèse :

**Mouillage et Démouillage Inertiels :
Triplons, Flaques vibrées, Ondes de chocs**

Soutenue le 26 octobre 2004

Devant le jury composé de :

M ^{me}	Anne-Marie Cazabat	Présidente
M ^{me}	Élisabeth Charlaix	Rapporteur
M ^{me}	Michèle Adler	Rapporteur
M.	Yves Couder	
M.	Jean Pierre Hulin	
M ^{me}	Françoise Brochard-Wyart	Directeur de thèse

Je remercie :

Françoise Brochard-Wyart de m'avoir accueilli dans l'équipe Surfaces Douces du Laboratoire Physico-Chimie Curie de l'Institut Curie en stage de DEA puis en thèse et de m'avoir accordé une très grande liberté dans mon travail. J'ai beaucoup apprécié nos discussions scientifiques qui m'ont permis de découvrir une façon différente d'aborder les problèmes et d'apprendre beaucoup de la démarche de chercheur.

Axel Buguin pour son aide, ses conseils et son enthousiasme tout au long de la thèse. Il m'a poussé (à sa façon) et m'a notamment aidé à exprimer de nouvelles capacités.

Elisabeth Charlaix et Michèle Adler d'avoir accepté d'être rapporteurs de cette thèse, ainsi que les autres membres du Jury : Anne-Marie Cazabat, Yves Couder et Jean-Pierre Hulin.

Mes coéquipiers, en premier lieu Juliette, pour son aide précieuse, parce qu'elle a toujours été disponible pour discuter de tout et sans qui cette thèse n'aurait pas été ce qu'elle est. Je remercie aussi Hadia pour sa jovialité et son aide, Pierre-Henri pour ses conseils techniques, Emilie pour son aide et sa relecture attentive d'une large part du manuscrit, mais aussi Nicolas, Aurélie, Olivier S., Olivier R. et Arnaud.

Anne-Laure Biance, Pascale Aussillous puis David Quéré au Collège de France pour les discussions sur les modes de gouttes.

Mathieu Poujade et Etienne Rolley de l'ENS pour les discussions sur les Triplons en particulier.

Jacques Prost et Jean-François Joanny, directeurs toujours disponibles, de m'avoir accueilli au laboratoire, ainsi que Patrick Keller et Jacques Malthête.

Michel pour tous ses conseils, ainsi que Gilles, Benoit et Jean-Hugues des ateliers, mais aussi Francine Vérin pour sa bonne humeur, Nicole Blandeau, Françoise Annotiau et Patrick Suchet.

Julie, Yann, Eva, Philippe G., Cécile, Aurélie, Hakim, ainsi que Patricia Bassereau, Cécile Sykes et Pascal Silberzan pour les nombreuses discussions et les aides en tout genre.

ma famille, mes amis et Claire pour son aide de tous les instants ainsi que pour certaines expériences déterminantes de démouillage.

Table des matières

Introduction	9
I Rappels généraux sur le mouillage	11
I.1 Tension interfaciale	12
I.1.1 Origine physique	12
I.1.2 Définition	12
I.1.3 Force capillaire	13
I.1.4 Loi de Laplace	13
I.2 Statique du mouillage	13
I.2.1 Paramètre d'étalement	13
I.2.2 Substrat solide : gouttes et flaques en mouillage partiel	14
I.2.3 Substrat liquide : lentilles et flaques flottantes en mouillage partiel	17
I.3 Hystérésis de l'angle de contact	19
I.3.1 Description	19
I.3.2 Origine physique	20
I.4 Elasticité de la ligne triple	21
I.4.1 Substrat solide idéal (θ_E)	21
I.4.2 Substrat liquide	22
I.5 Dynamique de la ligne triple	22
I.5.1 Approche hydrodynamique	23
I.5.2 Approche de dynamique moléculaire	24
I.6 Le démouillage	25
I.6.1 Stabilité d'un film	25
I.6.2 Dynamique visqueuse	27
I.6.3 Dynamique inertielle	28
Bibliographie	31

II Fluctuations de lignes triples flottantes	33
II.1 Introduction	34
II.2 Tension de ligne macroscopique : calcul théorique	35
II.2.1 Substrat solide	35
II.2.2 Substrat liquide	38
II.3 Effets de la tension de ligne macroscopique	38
II.3.1 Pression de surface	39
II.3.2 Loi de Laplace 2D	40
II.3.3 Epaisseur des flaques flottantes	40
II.3.4 Comparaison avec des gouttes simulées	41
II.4 Flaques circulaires : Observations et caractérisations	43
II.4.1 Systèmes utilisés	43
II.4.2 Epaisseur des flaques flottantes	45
II.4.3 Distorsion des flaques : lignes minimales et bilan de force	46
II.5 Tension de ligne : Mesure directe	46
II.5.1 Tensiomètre de ligne	47
II.5.2 Résultats	47
II.6 Fluctuations de la ligne triple (triplons) : Expériences	48
II.6.1 Dispositif expérimental	49
II.6.2 Résultats	50
II.7 Triplons : Interprétation	52
II.7.1 Calcul en loi d'échelle	52
II.7.2 Comparaison avec l'expérience	54
II.7.3 Calcul direct en régime inertiel	54
II.8 Oscillations propres d'une flaque circulaire	56
II.9 Conclusion et Perspectives	58
Bibliographie	61
III Gouttes vibrées (1) : modes axisymétriques.	63
III.1 Introduction	63
III.2 Dispositif expérimental	66
III.2.1 Vibrations	66
III.2.2 Matériel	68

III.3 Modes de Type I : Ligne de contact circulaire et fixe.	70
III.3.1 Méthode expérimentale	70
III.3.2 Spectres	72
III.3.3 Fréquences de résonances	73
III.3.4 Interprétation	74
III.4 Modes de Type II : Ligne de contact circulaire et mobile.	78
III.4.1 Méthodes expérimentales	79
III.4.2 Courbes Position - Angle	83
III.4.3 Courbes de seuils	85
III.4.4 Spectres	86
III.4.5 Interprétation : Transition modes I - modes II	88
III.4.6 Interprétation : Déplacement des fréquences de résonance	88
III.4.7 Interprétation : Oscillateur avec frottement solide ($\theta = \theta_E$)	89
III.5 Conclusion et Perspectives	98
Bibliographie	102
IV Gouttes vibrées (2) : modes non-axisymétriques.	103
IV.1 Introduction	103
IV.2 Matériels et méthodes	106
IV.2.1 Dispositif expérimental	106
IV.2.2 Matériel	107
IV.2.3 Traitement des images	107
IV.2.4 Procédures expérimentales	109
IV.3 Résultats	109
IV.3.1 Régime transitoire : temps de montée de l'instabilité	111
IV.3.2 Régime stationnaire : amplitude du mode instable	113
IV.3.3 Diagramme de stabilité	114
IV.3.4 Effets d'hystérésis de l'amplitude des modes	115
IV.3.5 Modes harmoniques	116
IV.3.6 Fréquences de résonance	116
IV.4 Interprétation	117
IV.5 Conclusion et Perspectives	125
Bibliographie	126

V Démouillage Inertiel Liquide/Liquide	129
V.1 Introduction	129
V.2 Dispositif de démouillage	133
V.2.1 Matériel	133
V.2.2 Procédure expérimentale	133
V.2.3 Méthode de mesure de l'épaisseur	135
V.2.4 Méthodes de visualisation	138
V.3 Loi d'ouverture $R(t)$	141
V.3.1 Tétrachlorure de carbone	141
V.3.2 Perfluorodécane	142
V.3.3 Interprétation	146
V.4 Ondes de surface générées par le démouillage	149
V.4.1 Rappel : Ondes de capillarité-gravité à la surface d'un bain de liquide	149
V.4.2 Pourquoi un choc ?	151
V.4.3 Caractéristiques des ondes pour notre système	152
V.4.4 Observations	153
V.5 Conclusion et Perspectives	158
Bibliographie	159
A Mesure de tensions interfaciales	163
A.1 Tensions de surface des liquides seuls	163
A.2 Tension interfaciales : Gouttes pendantes	164
B Profil numérique de goutte	167
C Mesure d'angle de contact	169
C.1 Méthode numérique / vue de dessus	169
C.1.1 Goutte à l'équilibre	170
C.1.2 Hystérésis de l'angle de contact	170
C.1.3 Goutte oscillante	171
C.2 Méthode directe / vue de côté	171
Conclusion	173

Introduction

Le mouillage et le démouillage sont des phénomènes de la vie courante. Qui n'a pas observé les lentilles d'huile à la surface de l'eau, les gouttelettes accrochées sur les vitres, les flaques lorsqu'on renverse un verre sur la table et la peau sécher spontanément par ouverture d'un film d'eau lorsqu'on prend sa douche. Ils présentent de nombreuses applications industrielles : les poêles anti-adhérentes qui sont peu mouillantes, les tissus gore-tex ou les revêtements de pare-brise sur lesquels peuvent rouler les gouttelettes de pluie. L'étalement d'une peinture sur une surface, le dépôt de gouttes d'insecticide projetées sur des feuilles hydrophobes, l'adhérence des pneus sur sols mouillés, la bonne mouillabilité de la cornée par le film lacrymal en présence de lentille de contact sont autant de problèmes qui demandent une meilleure compréhension des phénomènes de mouillage.

Tout a vraiment commencé au XIX^{ème} siècle avec l'introduction de la notion de tension de surface et la description des phénomènes de capillarité (Young, Laplace). Ensuite, beaucoup d'études ont concerné les phénomènes aux interfaces comme les ondes capillaires, les oscillations de gouttes libres... Ce n'est qu'à la fin du XX^{ème} siècle que l'on a pu expliquer les phénomènes dynamiques relatifs à l'étalement d'une goutte sur un solide ou le démouillage d'un film de liquide et traiter le rôle des forces à longues portées (Van der Waals..) sur les propriétés de mouillage. On a pu travailler sur des surfaces modèles, lisses à l'échelle atomique et recouvertes d'un tapis moléculaire qui permet d'ajuster la mouillabilité. Parallèlement, les méthodes d'études (ellipsométrie, interférométrie, microscopie à force atomique..) ont permis de caractériser les surfaces et les films de mouillage qui s'y déposent.

Les études portant sur la dynamique des phénomènes de mouillage se sont majoritairement orientées sur le cas de liquides visqueux. Nous étudions dans cette thèse des phénomènes où la viscosité ne joue qu'un rôle secondaire : le mouillage et le démouillage sont ici inertiels, les déformations des interfaces peuvent ainsi se propager.

Le démouillage à grande vitesse d'un film liquide par ouverture et croissance d'un trou peut ainsi créer des ondes de choc si la vitesse de démouillage est supérieure à la vitesse des ondes de surface. Pour un film qui démouille sur un substrat liquide, on prévoit même l'existence de deux chocs, émis vers l'intérieur et l'extérieur du trou. C'est ce projet de stage de DEA "Cascade de chocs en démouillage liquide/liquide inertielle" qui m'a attiré dans le

groupe "surfaces douces" dirigé par Françoise Brochard-Wyart et Axel Buguin. S'il y a eu beaucoup d'études consacrées au ressaut hydraulique, ce domaine était quasiment vierge.

En travaillant sur le démouillage à grande vitesse, pour lequel j'ai pu observer des ondes en avant et en arrière du bourrelet, je me suis aussi consacré à l'étude des flaques d'eau flottant sur le substrat liquide. Au début, je voulais juste mesurer l'épaisseur critique de démouillage, je me suis posé ensuite des questions sur la forme des flaques et sur la notion de tension de ligne macroscopique qui permet d'expliquer simplement différentes caractéristiques des flaques. En tirant sur la ligne avec une tige, j'ai ainsi pu mettre en évidence la force qu'elle exerce pour limiter sa déformation et j'ai ainsi construit un tensiomètre de ligne. En agitant la tige, j'ai observé la propagation d'ondes le long de la ligne : les "Triplons". J'ai pu les observer en régime de gravité, alors qu'ils sont bloqués par les défauts de surface sur solide. Des expériences analogues étaient menées à l'ENS avec de l'hélium superfluide en mouillage pseudo-partiel sur des pastilles de silicium, où la présence d'un film nanoscopique masque les défauts de surface.

Nous avons aussi pu, en vibrant des substrats solides, observer les Triplons autour de grosses gouttes posées. L'énergie des vibrations permet de lutter contre l'hystérésis qui piège la ligne de contact. A faible amplitude, le contour de la goutte est immobile, seule la surface présente des modes d'oscillation. A amplitude plus élevée, la ligne se décroche et présente des oscillations de son rayon. Le mouvement est saccadé (stick-slip). Pour des amplitudes encore plus grandes, le contour de la goutte devient instable, on observe des modes oscillant à la moitié de la fréquence d'excitation. On est en présence d'une instabilité paramétrique, dont on a étudié les caractéristiques.

Ce mémoire comporte cinq chapitres :

Le **chapitre I** est consacré aux rappels théoriques nécessaires sur les phénomènes de mouillage. Le **chapitre II** aborde les phénomènes statique et dynamique de ligne triple flottante. Le **chapitre III** traite de la vibration de grosses gouttes aplaties sur solide, et particulièrement de la transition entre ligne bloquée et ligne mobile. Dans le **chapitre IV** on étudie la vibration à fortes amplitudes de ces grosses gouttes qui conduit à l'observation de modes de ligne le long du contour de la goutte, identiques aux Triplons (chapitre II). Enfin dans le **chapitre V**, on s'intéresse aux expériences de démouillage d'un film d'eau déposé sur un substrat liquide à grande vitesse, et aux ondes générées en avant et en arrière du bourrelet.

Nous nous sommes efforcé dans les différentes parties du manuscrit, de présenter les différents résultats expérimentaux obtenus, mais aussi leur interprétation théorique. J'espère ainsi faire partager ma curiosité sur le démouillage, les ondes de choc, les ondes de ligne et les instabilités de gouttes vibrées.

Chapitre I

Rappels généraux sur le mouillage

Sommaire

I.1	Tension interfaciale	12
I.1.1	Origine physique	12
I.1.2	Définition	12
I.1.3	Force capillaire	13
I.1.4	Loi de Laplace	13
I.2	Statique du mouillage	13
I.2.1	Paramètre d'étalement	13
I.2.2	Substrat solide : gouttes et flaques en mouillage partiel	14
I.2.3	Substrat liquide : lentilles et flaques flottantes en mouillage partiel	17
I.3	Hystérésis de l'angle de contact	19
I.3.1	Description	19
I.3.2	Origine physique	20
I.4	Elasticité de la ligne triple	21
I.4.1	Substrat solide idéal (θ_E)	21
I.4.2	Substrat liquide	22
I.5	Dynamique de la ligne triple	22
I.5.1	Approche hydrodynamique	23
I.5.2	Approche de dynamique moléculaire	24
I.6	Le démouillage	25
I.6.1	Stabilité d'un film	25
I.6.2	Dynamique visqueuse	27
I.6.3	Dynamique inertielle	28
	Bibliographie	31

On décrit dans ce Chapitre différents éléments théoriques relatifs au domaine de la capillarité et du mouillage, c'est-à-dire l'étude des phénomènes liés à la statique et la dynamique des interfaces fluides et de leur point de rencontre. Ainsi on aborde ici nombre de concepts utiles pour notre étude : angles de contact statiques et dynamiques, hystérésis de l'angle de

contact, mouvements des lignes de contact, stabilité des films et dynamique du démoillage d'un liquide sur un substrat solide ou liquide.

I.1 Tension interfaciale

I.1.1 Origine physique

On appellera interface la zone séparant un corps sous deux phases (ex : de l'eau et sa vapeur) ou deux corps différents (de l'eau et de l'huile, du verre et de l'eau). On considérera toujours cette zone comme infiniment mince et décrite par son aire A ; cette aire tend à être minimale car elle possède une certaine énergie : la tension interfaciale. Voici deux siècles, Laplace et Young ont interprété ce phénomène à l'aide des forces intermoléculaires attractives qui assurent la cohésion des phases condensées. Considérons d'abord une interface Liquide/Vapeur : chaque molécule prise dans le volume est entourée en moyenne d'un certain nombre de voisines, à l'interface ce nombre est divisée par 2. En considérant une énergie de cohésion par molécule ε en volume, on constate qu'à l'interface, cette énergie vaut $\varepsilon/2$. Par conséquent amener une molécule du volume vers l'interface coûte une énergie $\varepsilon/2$. La tension interfaciale est cette énergie par unité d'aire. Une molécule à l'interface est comme à moitié arrachée au liquide, mais celui-ci luttant pour sa cohésion n'aime pas ça et en fait payer le prix. Cette interprétation s'étend à tous les types d'interfaces en considérant les forces d'interactions entre molécules d'une même phase et des deux phases en contact. Les valeurs typiques sont de l'ordre de 10^{-3} à 10^{-1} J.m^{-2} pour les liquides avec leur vapeur ou d'autres liquides, et jusqu'à quelques J.m^{-2} pour les métaux et certains solides non métalliques.

I.1.2 Définition

L'émergence de la thermodynamique au dix-neuvième siècle a permis ensuite de préciser cette notion. On considère deux phases 1 et 2 (N_1 molécules de 1 et N_2 molécules de 2, de potentiel chimique μ_1 et μ_2) dans un volume V séparées par une interface d'aire A à la température T et la pression P . On note U l'énergie interne du système, F son énergie libre et S son entropie. La tension interfaciale est le travail élémentaire à fournir pour augmenter d'une unité l'aire A de l'interface [1], [2] :

$$\delta W = \gamma dA \quad (\text{I.1})$$

On a donc : $dU = \gamma dA - PdV + TdS + \sum_i \mu_i dN_i$ et $dF = \gamma dA - PdV - SdT + \sum_i \mu_i dN_i$.

Soit :

$$\gamma = \left(\frac{\partial F}{\partial A} \right)_{T, V, N_i, \text{déformations...}} \quad (\text{I.2})$$

Ce cadre précis est indispensable sachant par exemple que si l'on utilise l'énergie interne U , on doit se placer à entropie constante. Il permet notamment de montrer via l'entropie que la tension interfaciale diminue avec la température.

I.1.3 Force capillaire

Pour une interface rectangulaire de côté L on peut écrire le travail élémentaire :

$$\delta W = \gamma dA = \gamma L dx = F dx$$

La tension interfaciale représente donc aussi la force par unité de longueur que l'interface oppose à l'augmentation de son aire. On peut donc l'exprimer en $N.m^{-1}$.

I.1.4 Loi de Laplace

On considère un élément d'interface courbée dS à l'équilibre séparant deux phases fluides A et B, orienté de A vers B, caractérisé par ses deux rayons de courbures selon deux directions orthogonales : R_1 et R_2 . De chaque côté de l'interface la pression vaut P_A et P_B . On réalise un bilan des forces tangentielles et normales à la surface au niveau de chacun des quatre côtés. Les forces tangentielles s'annulent, alors que le bilan des forces normales conduit à la loi de Laplace :

$$P_A - P_B = \gamma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) = \frac{2\gamma}{R} \quad (\text{I.3})$$

R est le rayon de courbure moyen et ne dépend pas des axes choisis (R_1 et R_2 en dépendent).

I.2 Statique du mouillage

Les phénomènes de capillarité, via la tension interfaciale caractérisent le contact à deux phases. On s'intéresse maintenant au mouillage, c'est-à-dire aux phénomènes intervenant lors du contact à trois phases, d'abord d'un point de vue statique.

I.2.1 Paramètre d'étalement

On considère une goutte de liquide A que l'on dépose sur un substrat B solide ou liquide. On définit le paramètre d'étalement S comme la différence d'énergie libre par unité de surface

entre la situation substrat nu et celle avec le substrat recouvert d'un film de liquide A (γ_A et γ_B sont les tensions interfaciales de A et B avec leur vapeur) :

$$S = \gamma_B - (\gamma_A + \gamma_{AB}) \quad (\text{I.4})$$

Lorsque $S > 0$, le liquide A s'étale complètement sur le substrat B car la configuration de plus faible énergie est obtenue lorsqu'un film de A recouvre le substrat. On parle de mouillage total. L'épaisseur finale du film de A sur le substrat est donnée par une compétition entre effets de capillarité et forces à longues portées.

Lorsque $S < 0$, la configuration de plus faible énergie est le substrat B nu, une goutte du liquide A ne s'étalera pas dessus, elle aura une forme dont les caractéristiques sont discutées dans ce qui suit selon le type de substrat (solide ou liquide) et l'importance des effets de gravité. On parle dans ce cas de mouillage partiel. C'est cette situation qui nous intéressera dans la suite. Nous verrons notamment au Chapitre V que le paramètre d'étalement est le moteur du démouillage inertiel liquide / liquide.

On montre Fig. I.1 les deux cas de mouillage pour une petite goutte sur un substrat solide.

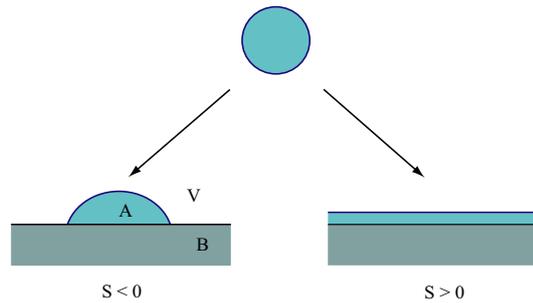


FIG. I.1 – Mouillage partiel ($S < 0$) et mouillage total ($S > 0$) sur un substrat solide.

I.2.2 Substrat solide : gouttes et flaques en mouillage partiel

Loi de Young-Dupré

On considère un solide S en contact avec une goutte de liquide L et sa vapeur V en situation de mouillage partiel. Celle-ci s'appuie sur le substrat solide en faisant un angle avec l'horizontale appelé angle de contact θ_E . Cet angle est déterminé par un bilan horizontal des forces au niveau de la ligne triple (ou ligne de contact) qui est le lieu d'intersection des trois interfaces (Fig. I.2).

A l'équilibre, la somme des forces agissant sur la ligne est nulle, on obtient ainsi la relation de Young-Dupré :

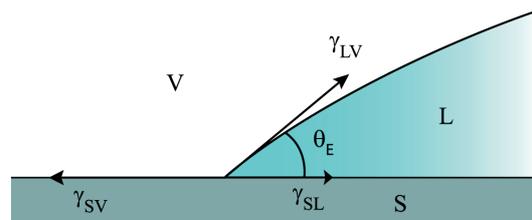


FIG. I.2 – Bilan des forces au niveau d'une ligne triple Solide-Liquide-Vapeur.

$$\gamma_{SL} + \gamma_{LV} \cos\theta_E = \gamma_{SV} \quad (\text{I.5})$$

On en déduit la relation entre le paramètre d'étalement et l'angle de contact :

$$S = \gamma_{LV} (\cos\theta_E - 1) \quad (\text{I.6})$$

Cette relation permet de déterminer le paramètre d'étalement, en mesurant l'angle de contact à l'équilibre et la tension de surface du liquide. Le bilan vertical des forces inclut une force de rappel du solide opposée à la force de tension de surface du liquide. Cela conduit à une déformation du solide au niveau de la ligne de contact de dimension atomique pour des solides usuels.

Longueur capillaire : rôle de la gravité

La forme des gouttes en mouillage partiel sur un substrat solide est déterminée par leur taille : les petites gouttes forment des calottes sphériques (régime de capillarité) alors que les grosses sont aplaties et forment des flaques (régime de gravité). On doit comparer le rayon des gouttes avec une longueur caractéristique appelée longueur capillaire (κ^{-1}) que l'on construit en égalant les termes de pression de Laplace et de pression hydrostatique :

$$\frac{\gamma_{LV}}{\kappa^{-1}} = \rho_L g \kappa^{-1}$$

où ρ_L est la masse volumique du liquide et g l'accélération de la pesanteur, on a :

$$\kappa^{-1} = \sqrt{\frac{\gamma_{LV}}{\rho_L g}} \quad (\text{I.7})$$

Pour l'eau pure à 25°C, cette longueur vaut 2,71 mm. Pour des rayons de gouttes $R \ll \kappa^{-1}$ on sera en régime de capillarité, pour $R \gg \kappa^{-1}$, on sera en régime de gravité.

Régime de capillarité : $R \ll \kappa^{-1}$

En négligeant la gravité, la pression est constante dans tout le liquide et d'après la loi de Laplace, la courbure de l'interface est donc constante, on a ainsi une forme de calotte

sphérique qui s'appuie sur le substrat avec un angle θ_E .

Régime de gravité : $R \gg \kappa^{-1}$

Une goutte de rayon supérieur à la longueur capillaire va s'aplatir sous l'effet de son poids et former une crêpe (ou flaqué) de gravité. C'est en gros un cylindre de rayon R et de hauteur caractéristique e_c qui se raccorde au solide via un ménisque sur une distance de l'ordre de la longueur capillaire. e_c est l'épaisseur asymptotique infiniment loin de la ligne de contact, on peut la calculer simplement en effectuant un bilan des forces linéique sur une portion de liquide d'une flaqué unidimensionnelle (Fig. I.3).

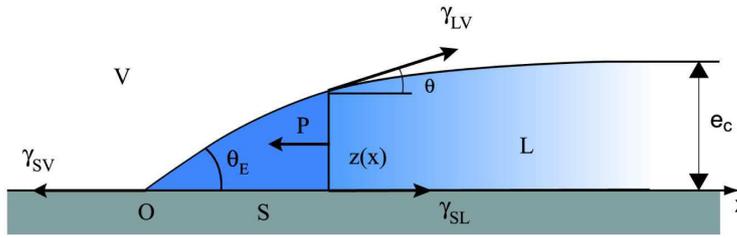


FIG. I.3 – Equilibre des forces sur une portion de liquide à une dimension.

Les forces s'appliquant sur la portion de liquide entre l'origine (c'est-à-dire la ligne de contact) et le point d'abscisse x sont les trois tensions interfaciales et la pression hydrostatique intégrée sur la hauteur $z(x)$. On a donc en projection selon Ox :

$$-\gamma_{SV} + \gamma_{SL} + \gamma_{LV} \cos \theta(x) - \int_0^{z(x)} \rho g (e_c - z) dz = 0 \quad (\text{I.8})$$

D'après l'Eq. I.5, on a donc :

$$\gamma_{LV} (\cos \theta(x) - \cos \theta_E) + \frac{\rho g}{2} z(x) (z(x) - 2e_c) = 0 \quad (\text{I.9})$$

A la limite $x \rightarrow \infty$, $z = e_c$ et l'on obtient :

$$\gamma_{LV} (1 - \cos \theta_E) = -S = \frac{1}{2} \rho g e_c^2 \quad (\text{I.10})$$

Que l'on écrit aussi :

$$e_c = 2\kappa^{-1} \sin \left(\frac{\theta_E}{2} \right) \quad (\text{I.11})$$

L'épaisseur d'une crêpe de gravité est donc de l'ordre de la longueur capillaire.

I.2.3 Substrat liquide : lentilles et flaques flottantes en mouillage partiel

Construction de Neumann

Le deuxième type de mouillage que nous étudierons est le contact entre un liquide substrat B, un liquide A moins dense et l'air. Au niveau de la ligne de contact la somme vectorielle des trois forces de tension interfaciale s'annule et conduit à la construction de Neumann. On écrit :

$$\vec{\gamma}_A + \vec{\gamma}_B + \vec{\gamma}_{AB} = \vec{0} \quad (\text{I.12})$$

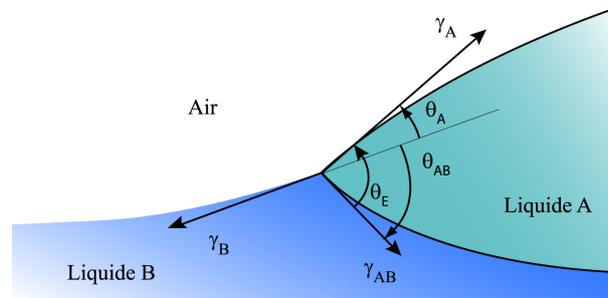


FIG. I.4 – Construction de Neumann.

Cette fois-ci deux angles sont nécessaires pour caractériser la ligne de contact. On les détermine en projetant selon deux directions la relation vectorielle d'équilibre. En considérant les angles de la Fig. I.4 par rapport à $\vec{\gamma}_B$, on obtient :

$$\gamma_A \cos \theta_A + \gamma_{AB} \cos \theta_{AB} = \gamma_B \quad (\text{I.13})$$

$$\gamma_A \sin \theta_A + \gamma_{AB} \sin \theta_{AB} = 0 \quad (\text{I.14})$$

$$\theta_E = \theta_A - \theta_{AB} \quad (\text{I.15})$$

De même que pour un solide, on peut calculer la relation entre S et θ_E : on élimine θ_{AB} en calculant $\cos \theta_E$ et on élimine θ_A en calculant $\cos^2 \theta_{AB} + \sin^2 \theta_{AB}$. On obtient :

$$2\gamma_A \gamma_{AB} \cos \theta_E = \gamma_B^2 - \gamma_A^2 - \gamma_{AB}^2 \quad (\text{I.16})$$

Soit :

$$\cos \theta_E = \frac{\gamma_B^2 - \gamma_A^2 - \gamma_{AB}^2}{2\gamma_A \gamma_{AB}} \quad (\text{I.17})$$

Qui peut s'écrire :

$$S^2 + 2S(\gamma_A + \gamma_{AB}) + 4\gamma_{AB}\gamma_A \sin^2\left(\frac{\theta_E}{2}\right) = 0 \quad (\text{I.18})$$

La seule solution possible, sachant que $S > -(\gamma_A + \gamma_{AB})$ est :

$$S = -(\gamma_A + \gamma_{AB}) + \sqrt{(\gamma_A + \gamma_{AB})^2 - 4\gamma_{AB}\gamma_A \sin^2\left(\frac{\theta_E}{2}\right)} \quad (\text{I.19})$$

Dans la limite des petits angles on retrouve [3] ($\tilde{\gamma}$ est une tension effective) :

$$S = -\tilde{\gamma} \frac{\theta_E^2}{2} \quad (\text{I.20})$$

avec

$$\frac{1}{\tilde{\gamma}} = \frac{1}{\gamma_A} + \frac{1}{\gamma_{AB}} \quad (\text{I.21})$$

Longueurs capillaires

On définit pour les liquides A et B les longueurs capillaires comme précédemment (Eq. I.22) :

$$\kappa_A^{-1} = \sqrt{\frac{\gamma_A}{\rho_A g}} \quad , \quad \kappa_B^{-1} = \sqrt{\frac{\gamma_B}{\rho_B g}} \quad (\text{I.22})$$

Et pour le couple A/B, en tenant compte de la poussée d'Archimède :

$$\kappa_{AB}^{-1} = \sqrt{\frac{\gamma_{AB}}{(\rho_B - \rho_A)g}} \quad (\text{I.23})$$

Régime de capillarité

La pression est constante dans la goutte, en appliquant la loi de Laplace aux deux interfaces A/Air (indice a) et A/B (indice AB), on obtient une forme de lentille sphérique avec deux rayons de courbure différents R_A et R_{AB} reliés par :

$$\frac{R_{AB}}{R_A} = \frac{\gamma_{AB}}{\gamma_A}$$

Régime de gravité

Les grosses gouttes sont aplaties par la gravité et forment des flaques flottantes. Celles-ci ont une épaisseur asymptotique e_c et s'enfoncent dans le liquide substrat sur une distance

e' (voir Fig. I.5). Le bilan linéique des forces pour une portion de liquide contenue entre la ligne triple et un point de la flaue à l'infini s'écrit :

$$-\gamma_B + \gamma_A + \gamma_{AB} - \frac{1}{2}\rho_A g e_c^2 + \frac{1}{2}\rho_B g e'^2 = 0 \quad (\text{I.24})$$

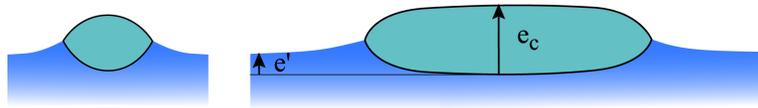


FIG. I.5 – Lentille de capillarité et flaue de gravité, vues en coupe.

L'enfoncement e' est tel que la poussée d'Archimède compense le poids de la flaue, on calcule ainsi e' par égalité des pressions hydrostatiques loin de la ligne triple : $\rho_A g e_c = \rho_B g e'$. On obtient donc pour le bilan des forces :

$$-S - \frac{1}{2} \frac{\rho_A}{\rho_B} g e_c^2 (\rho_B - \rho_A) = 0 \quad (\text{I.25})$$

Soit une relation équivalente à l'Eq. I.10 :

$$-S = \frac{1}{2} \tilde{\rho} g e_c^2 \quad (\text{I.26})$$

Avec $\tilde{\rho} = \frac{\rho_A}{\rho_B} (\rho_B - \rho_A)$.

Nous verrons comment améliorer la description de ces flaues flottantes au Chapitre II, en regardant notamment l'influence d'une tension de ligne macroscopique sur le rayon des flaues.

I.3 Hystérésis de l'angle de contact

I.3.1 Description

L'angle de contact θ_E que l'on a défini pour un substrat solide correspond à une valeur d'équilibre. On ne l'obtient de façon unique que sur des surfaces modèles. Si l'on dépose une goutte sur une telle surface parfaitement plane, propre et uniforme à l'aide d'une seringue par exemple, lorsque la goutte devient immobile, l'équilibre des forces au niveau de la ligne de contact traduit par la loi d'Young définit un angle de contact θ_E . Si l'on met la ligne en mouvement en augmentant ou en diminuant le volume de la goutte, dès qu'elle s'arrête, l'angle retrouve sa valeur d'équilibre θ_E . Lorsqu'on dépose une goutte sur un substrat réel, présentant des défauts physiques (rugosité) ou chimiques, l'angle de contact que l'on obtient dépend de la façon dont on a déposé la goutte. Si l'on augmente lentement le volume de la goutte, puis qu'on arrête, l'angle obtenu est proche d'une valeur particulière appelée "angle

d'avancée" : θ_a . Au contraire lorsqu'on aspire, l'angle est proche de l'"angle de reculée" : θ_r . On peut donc observer toutes les valeurs possibles dans l'intervalle $[\theta_r, \theta_a]$.

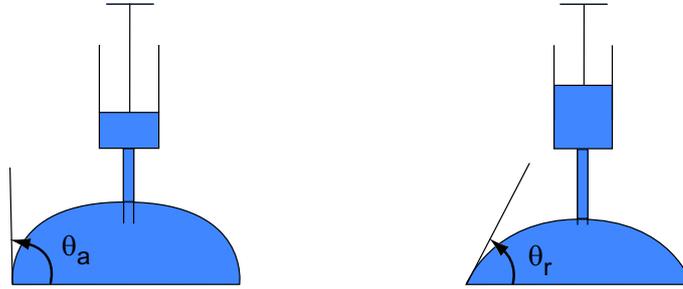


FIG. I.6 – Angle d'avancée et de recul (à la limite de mouvement de la ligne de contact).

On caractérise l'hystérésis de l'angle de contact par la différence $\Delta\theta = \theta_a - \theta_r$ où la grandeur du même nom que nous définirons par : $H = \cos\theta_r - \cos\theta_a$. On verra aussi apparaître une force de résistance au mouvement de la ligne $F = \gamma H$.

Nous verrons notamment au Chapitre III comment ce phénomène influence la dynamique des gouttes déposées sur des substrats solides en vibration.

I.3.2 Origine physique

Ce phénomène s'explique par les "imperfections de la surface" : défauts physiques (rugosité de la surface) et chimiques (différences locales de composition). Sa description théorique reste à l'heure incomplète, mais une limite bien comprise est celle des défauts de surface dilués. Le mécanisme simple proposé par Joanny-de Gennes [4] utilise le travail fourni lors de l'ancrage et le décrochage de la ligne sur un défaut unique. Lorsque la ligne recule sur le substrat par exemple, elle peut rencontrer des défauts de mouillage et s'y accrocher. Loin de ce défaut (supposé "fort") la ligne continue à reculer mais au niveau de celui-ci, elle reste accrochée, ainsi la ligne se déforme et l'interface liquide aussi. Cela a un coût énergétique qui traduit l'élasticité de la ligne triple ; selon la longueur d'onde des déformations, l'expression théorique de cette énergie ainsi stockée a une forme différente. Au dessus d'une certaine déformation, la ligne se décroche du défaut, relaxe et libère l'énergie élastique stockée qui se perd ensuite par dissipation. Ainsi pour déplacer une ligne sur un substrat réel, il faut dépasser une force seuil (proportionnelle à l'hystérésis de l'angle de contact) directement reliée au travail à fournir pour se décrocher d'un défaut.

Nous allons voir maintenant quelques aspects quantitatifs de l'élasticité des lignes de contact.

I.4 Elasticité de la ligne triple

I.4.1 Substrat solide idéal (θ_E)

Lorsque l'on déforme une ligne de contact autour de sa forme droite d'équilibre, on induit aussi des déformations de l'interface liquide qui ont un coût énergétique avec un terme gravitationnel et un terme capillaire. La position de la ligne autour de sa position d'équilibre est repérée par son déplacement $u_x(x)$, dont on peut prendre la transformée de Fourier spatiale : $u_x(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} u_q(q) e^{iqx} dq$. L'énergie élastique de la ligne s'exprime plus facilement pour un mode de vecteur d'onde q que dans l'espace réel. Deux cas sont à séparer : le régime de capillarité ($q\kappa^{-1} \gg 1$) et le régime de gravité ($q\kappa^{-1} \ll 1$).

Régime de capillarité.

Dans ce régime on néglige le terme gravitationnel. On a pour un mode q , dans la limite des petit angles [4] :

$$E_{el,q} = \frac{1}{2} \gamma \theta_E^2 |q| |u_q|^2 \quad (\text{I.27})$$

L'élasticité de la ligne ne peut donc pas s'exprimer sous la forme d'une terme de tension de ligne. Cela est dû au fait que la déformation de l'interface s'étend sur une distance de l'ordre de q^{-1} dans le liquide.

Régime de gravité.

Dans ce régime, les déformations ne pénètrent pas sur une distance q^{-1} dans le liquide mais sont écrantées à une distance caractéristique égale à la longueur capillaire : κ^{-1} , donc toujours dans la limite des petits angles :

$$E_{el,q} = \frac{1}{4} \gamma \theta_E^2 \kappa^{-1} q^2 |u_q|^2 \quad (\text{I.28})$$

On peut donc écrire cette énergie à l'aide d'une tension de ligne macroscopique $\mathcal{T} = \frac{1}{2} \gamma \theta_E^2 \kappa^{-1}$ et : $E_{l,q} = \frac{1}{2} \mathcal{T} q^2 |u_q|^2$. On calculera au chapitre suivant cette expression pour un angle d'équilibre quelconque.

Sekimoto et al.[5] ont calculé à la limite des petit angles une expression générale valable dans les deux régimes. :

$$E_{el,q} = \frac{1}{2} \gamma \theta_E^2 \left(\sqrt{\kappa^2 + q^2} - \kappa \right) |u_q|^2 \quad (\text{I.29})$$

I.4.2 Substrat liquide

Dans le cas d'un substrat liquide on généralise ces expressions avec une tension de surface effective $\tilde{\gamma}$. On note respectivement γ_A et γ_B les tensions de surface du liquide en mouillage partiel et celle du liquide substrat. On a comme en (1.20) : $\frac{1}{\tilde{\gamma}} = \frac{1}{\gamma_A} + \frac{1}{\gamma_B}$, et toujours à la limite des petits angles :

$$E_{el,q} = \frac{1}{2} \tilde{\gamma} \theta_E^2 \left(\sqrt{\kappa^2 + q^2} - \kappa \right) |u_q|^2 \quad (\text{I.30})$$

Nous verrons au Chapitre II que l'on peut calculer une expression exacte valable pour des angles quelconques mais seulement en régime de gravité (sur substrat solide et liquide). Cette tension de ligne macroscopique sera à l'origine d'ondes se propageant le long de la ligne : les triplons.

I.5 Dynamique de la ligne triple

L'angle de contact au repos est l'angle de contact statique θ_E . Celui-ci est donné par la loi d'Young qui traduit l'équilibre des forces au niveau de la ligne de contact immobile. Lorsque θ est différent de θ_E , les forces capillaires ne sont plus compensées et la ligne bouge. si $\theta > \theta_E$, la ligne avance et si $\theta < \theta_E$ elle recule. On parle dans ce cas d'angle dynamique θ_D . Lorsque l'on fait un bilan des forces au niveau de la ligne de contact, on constate qu'à ce changement d'angle correspond une force F (par unité de longueur de la ligne), qui est celle avec laquelle on tire ou on pousse sur la ligne. On a :

$$F = \gamma (\cos \theta_E - \cos \theta_D) \quad (\text{I.31})$$

En général du point de vue expérimental, on impose un mouvement à vitesse constante V de la ligne et on mesure la valeur de θ_D ou F , ce qui revient au même ; on obtient ainsi des relations Force-Vitesse $F(V)$ ou $\theta_D(V)$. Ces courbes sont caractéristiques d'un couple solide/liquide. Leurs interprétations théoriques sont principalement fondées sur deux mécanismes : le premier privilégie l'échelle macroscopique siège d'écoulements dans tout le liquide, le second fait intervenir des phénomènes moléculaires localisés à la ligne de contact. Ces deux mécanismes conduisent à deux modèles théoriques pour les relations $F(V)$. En réalité les deux mécanismes se produisent simultanément et un modèle global serait nécessaire pour interpréter au mieux le cas général du mouvement d'une ligne quelconque. Cependant dans le cas des angles de contact faibles, la contribution hydrodynamique est dominante et nous la détaillerons en premier. Pour les angles importants, les effets de dynamique moléculaire sont comparables.

I.5.1 Approche hydrodynamique

On décrit la limite simple en considérant une ligne de contact avec un faible angle de contact se déplaçant sur un substrat solide [6]-[7]. On décrit la zone de l'interface proche de la ligne comme étant un dièdre d'angle θ_D , la ligne est supposée ici avancer (le calcul est identique au recul). Le mouvement est considéré stationnaire et on néglige le terme inertiel de l'équation de Navier Stokes. Le profil de vitesse est donc parabolique, avec une vitesse nulle au niveau du substrat et une contrainte nulle à l'interface (donc un gradient vertical nul pour la vitesse). L'intégrale de $v(z)$ sur une section verticale du coin de liquide définit la vitesse moyenne V du coin donc de la ligne de contact ; à l'interface, la vitesse atteint 1,5 fois V : les particules fluides y sont plus rapides. On peut associer ce phénomène au mouvement d'un tank qui progresse à la vitesse globale V , mais dont les chenilles sont plus rapides et roulent sous le char. Les particules fluides de l'interface suivent le même mouvement (Fig. I.7).

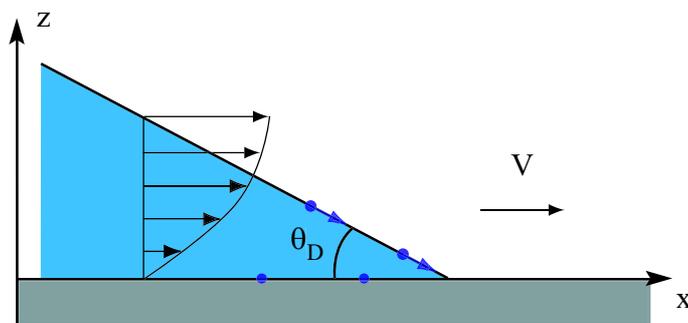


FIG. I.7 – Profil de vitesse dans le coin de liquide. Une singularité apparaît au niveau de la ligne de contact car le gradient de vitesse devient infini.

Le gradient de vitesse dans le coin varie en gros comme : $\frac{V}{\theta_D x}$. On calcule l'énergie linéique dissipée $T\dot{S}$, en intégrant le carré de ce gradient multiplié par la viscosité η dans tout le volume du coin. On obtient ainsi avec le bon facteur numérique [7] :

$$T\dot{S} = \frac{3\eta V^2}{\theta_D} \int_0^{\infty} \frac{dx}{x} \quad (\text{I.32})$$

Pour éviter la divergence de l'intégrale, on introduit une coupure pour les faibles valeurs de x en prenant une taille moléculaire a , discutée dans [8]. Le profil schématisé par un coin n'est plus valable aux faibles épaisseurs, car les forces à longue portée ne sont plus négligeables. Il tombe brutalement. Aux grandes valeurs de x , le coin n'est plus diédrique et le liquide est limité spatialement à une distance L (taille d'une goutte par exemple) . En notant $\ell = Ln\left(\frac{L}{a}\right) \sim 10$ à 20 , et en égalisant l'énergie dissipée à la puissance de la force F , on obtient donc :

$$FV = \frac{3\eta\ell}{\theta_D} V^2 \quad (\text{I.33})$$

En utilisant l'Eq. I.31 à la limite des petits angles, on obtient :

$$V = \frac{\gamma}{6\eta\ell} \theta_D (\theta_D^2 - \theta_E^2) \quad (\text{I.34})$$

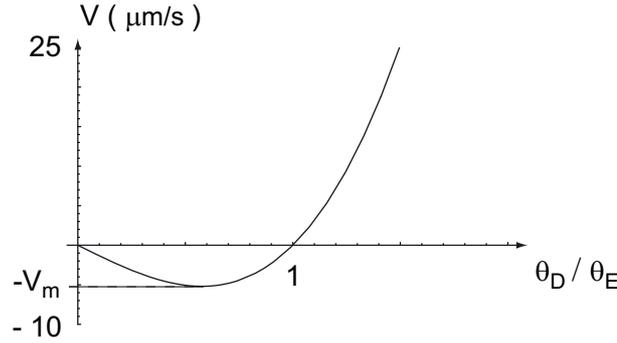


FIG. I.8 – Vitesse de mouillage en mm/s pour de l’huile silicone en fonction de θ_D/θ_E ; avec $\eta = 1 \text{ Pa.s}$, $\gamma = 20 \text{ mN/m}$, $\theta_E = 22.5^\circ$, $\ell = 15$.

Cette loi est très bien vérifiée expérimentalement ([9] avec $\theta_E = 0$) même pour des valeurs de θ_D supérieures à 100° . Elle décrit l’avancée $\theta_D > \theta_E$ et le recul $\theta_D < \theta_E$ où V devient négatif. Pour $\theta_D \rightarrow \theta_E$ on retrouve $V = 0$ (équilibre statique), Pour $\theta_D \rightarrow 0$ on a aussi $V = 0$ car le gradient et donc la dissipation sont très importants. On constate que l’on a un minimum de la vitesse de recul : $-V_m$; si l’on tire sur la ligne à une vitesse plus grande en valeur absolue, on n’a plus de solution pour θ_D . Il n’y a plus de ménisque possible et il se forme un film : c’est le mouillage forcé. On trouve avec l’Eq. I.34 $V_m = \gamma/(9\sqrt{3}\eta\ell) \theta_E^3$.

Pour inclure l’effet de l’hystérésis de l’angle de contact, une façon simple est de remplacer dans l’Eq. I.34, θ_E par θ_a pour l’avancé et par θ_r pour la reculée.

I.5.2 Approche de dynamique moléculaire

Dans cette approche que nous ne détaillerons pas, les mouvements de la ligne sont réduits à des "sauts" de longueur moléculaire "a" sur le substrat solide. Chaque saut vers le substrat (adsorption) produit un gain énergétique $F a^2$, et l’opposé pour la désorption. Ces sauts sont activés thermiquement et caractérisés par une barrière U . La fréquence $1/\tau$ des sauts est donnée par la différence d’un terme exponentiel d’adsorption et d’un terme de désorption. La vitesse de la ligne est donnée par $V = a/\tau$. On obtient dans l’approximation des faibles forces [10] :

$$FV = \frac{kT}{V_0 a^2} \exp\left(\frac{U}{kT}\right) V^2 \quad (\text{I.35})$$

On a écrit $V_0 = a/\tau_0$ avec τ_0 un temps caractéristique microscopique de saut. Dans la limite θ_D grand, les expressions I.33 et I.35 sont assez proches car la viscosité du liquide $\eta(T)$ fait aussi intervenir une énergie d'activation. En fait ce modèle représente la dissipation localement de chaque côté de la ligne, alors que le modèle hydrodynamique représente la friction globale dans le coin de liquide. Ce modèle moléculaire ne prévoit pas de dépendance de la friction avec l'angle dynamique et ne permet pas d'interpréter les expériences sur le mouillage forcé [11] ainsi que sur le démoillage sur substrat solide pour lequel $V \propto \theta_E^3$, comme nous allons le voir dans la partie suivante. Il semble que pour les angles faibles la dissipation dans le coin domine et que le modèle hydrodynamique représente bien la réalité. Pour les angles plus importants, la dissipation de chaque côté de la ligne (moléculaire) devient non négligeable et les deux effets doivent être pris en compte.

I.6 Le démoillage

Suivant la valeur du paramètre d'étalement d'un liquide sur un substrat (solide ou liquide), nous avons vu que celui-ci avait tendance à le recouvrir ($S > 0$, mouillage total) ou à s'en retirer ($S < 0$, mouillage partiel). Nous étudions le cas du mouillage partiel et nous allons voir quand et comment a lieu le processus dynamique associé nommé démoillage.

I.6.1 Stabilité d'un film

On considère un film liquide d'épaisseur e déposé sur un substrat solide avec un paramètre d'étalement $S < 0$. On note $\mathcal{F}(e)$ l'énergie libre par unité de surface du film. A priori celle-ci est la somme de l'énergie de gravité du film et des deux tensions de surfaces γ_A et γ_{AB} ; pour $e = 0$, on a $\mathcal{F}(0) = \gamma_B$. Manifestement cette fonction est discontinue en 0 : elle présente un saut de valeur S . C'est ce gain en énergie qui est à l'origine du démoillage. Pour expliquer plus précisément le comportement du film, il faut faire appel aux interactions à longues portées qui donnent une fonction "physique", c'est-à-dire continue. Ces interactions interviennent pour des distances faibles (< 100 nm), elles sont nulles pour e grand devant ces distances et tendent vers S lorsque e tend vers 0, on les note $\mathcal{P}(e)$ et on a :

$$\mathcal{F}(e) = \gamma_A + \gamma_{AB} + \frac{1}{2}\rho g e^2 + \mathcal{P}(e) \quad (\text{I.36})$$

Sur un substrat liquide B qui nous intéressera dans la suite, on doit remplacer la densité du liquide déposé A par une densité effective tenant compte de la poussée d'Archimède, on

a :

$$\mathcal{F}(e) = \gamma_A + \gamma_{AB} + \frac{1}{2}\tilde{\rho}ge^2 + \mathcal{P}(e) \quad (\text{I.37})$$

avec $\tilde{\rho} = \rho_A \left(1 - \frac{\rho_A}{\rho_B}\right)$

Pour des liquides de Van der Waals (milieu i), on a des interactions moléculaires régies par un potentiel $U(r) = -\alpha_i/r^6$. Intégrées en géométrie plane, on a $\mathcal{P}(e) = -\mathcal{A}(12\pi e^2)$, avec $-\mathcal{A} = \mathcal{A}_{SL} - \mathcal{A}_{LL}$. \mathcal{A}_{ij} étant la constante de Hamaker entre les milieux i et j, on a $\mathcal{A}_{ij} = k\rho_i\rho_j\alpha_i\alpha_j$ avec ρ_i est la densité moléculaire, soit : $\mathcal{A}_{SL} \sim \rho_S\rho_L\alpha_S\alpha_L$ et $\mathcal{A}_{LL} \sim \rho_L^2\alpha_L^2$. Ici $\mathcal{A}_{SL} < \mathcal{A}_{LL}$, soit $\mathcal{A} > 0$.

Pour e proche des dimensions moléculaires, on n'a plus un milieu continu, la description change et fait intervenir la fonction de distribution radiale des molécules : $g(r)$; il n'y a ainsi pas de divergence de $\mathcal{P}(e)$ qui se raccorde à S . On a tracé ci-dessous (Fig. I.9) l'allure de la fonction $\mathcal{F}(e)$ dans notre cas ($S < 0$, $\mathcal{A} > 0$).

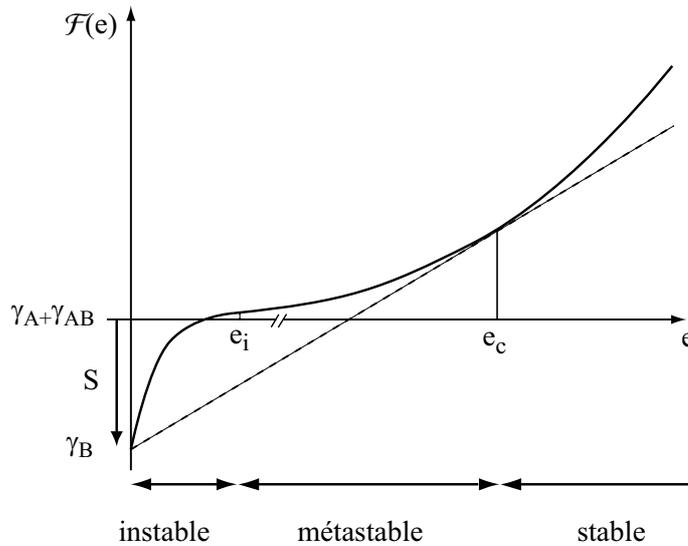


FIG. I.9 – Allure de l'énergie par unité de surface d'un film d'épaisseur e .

Pour une épaisseur inférieure à l'épaisseur critique, qui est celle des flaques de gravité, un film de liquide est métastable. Si l'on nucléé un trou dans le film, celui-ci continue de s'agrandir jusqu'à ce que le liquide atteigne une épaisseur valant e_c , on a donc dans l'état final coexistence de deux "phases" : une région démouillée avec $e = 0$ et une région mouillée partiellement avec une épaisseur e_c de film. Pour montrer cela on considère un substrat d'aire totale \mathcal{A}_{tot} recouvert par un film liquide (volume Ω constant, épaisseur e), on va minimiser l'énergie totale :

$$E_{tot} = \gamma_B \mathcal{A}_{tot} - \frac{\Omega}{e} \left(S - \frac{1}{2} \tilde{\rho} g e^2 - \mathcal{P}(e) \right) \quad (\text{I.38})$$

On écrit $dE_{tot}/de = 0$:

$$S + e \left(\frac{d\mathcal{F}}{de} \right)_{e=e_c} = \mathcal{F}(e_c) \quad (\text{I.39})$$

La solution graphique de cette équation est représentée sur la Fig. I.9, c'est l'analogie de la construction de Maxwell pour les transitions de phases qui caractérise la séparation en deux phases à l'équilibre : le substrat nu et un film d'épaisseur e_c . Ainsi, en notant e_i la longueur microscopique telle que pour $e < e_i$, $\frac{d^2\mathcal{F}}{de^2} < 0$:

- Pour $e > e_c$ le film est stable.
- Pour $e_i < e < e_c$, le film est métastable, il démouille par nucléation et croissance d'un trou. C'est ce régime que nous étudierons au Chapitre V.
- Pour $e < e_i$, le film est instable : toute perturbation est amplifiée, c'est le démouillage spinodal. Nous n'étudierons pas cette situation particulière.

I.6.2 Dynamique visqueuse

Nous ne détaillerons pas ici la dynamique visqueuse, nous ferons simplement quelques rappels pour mettre en lumière les différences avec le régime inertiel. On considère donc un film de liquide d'épaisseur e ($e_i < e < e_c$) que l'on perce d'un trou et dont on regarde l'ouverture en fonction du temps ($R(t)$). L'eau qui a démouillé se retrouve collectée dans un bourrelet qui entoure le trou (Fig. I.10).

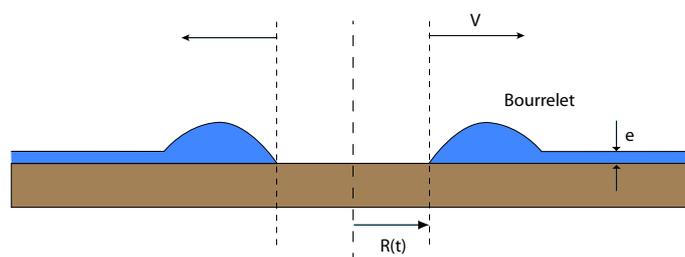


FIG. I.10 – Profil schématique du film pendant le démouillage.

La vitesse de démouillage est donnée par l'égalité entre la force motrice $F_M = -S - \frac{1}{2} \rho g e^2$ et la force visqueuse $F_V = \frac{3\eta V \ell}{\theta_D}$ (voir [8]). Lorsque e est petit devant e_c , on obtient une ouverture à vitesse constante, avec :

$$V = \frac{\gamma}{6\eta\ell} \theta_E^3 \quad (\text{I.40})$$

Pour e non négligeable devant e_c , on a aux temps courts (régime de capillarité) :

$$V = \frac{\theta_D}{6\eta\ell} \frac{1}{2} \rho g (e_c^2 - e^2) \quad (\text{I.41})$$

et aux temps longs, la vitesse n'est plus constante, on a un régime diffusif :

$$R(t) = \sqrt{Dt} \quad (\text{I.42})$$

D'un point de vue expérimental seuls les deux premiers régimes ont pu être étudiés et bien vérifiés [12]. Ils démontrent que la théorie hydrodynamique s'applique dans ce cas, car la théorie moléculaire donne $V \sim \theta_E$.

Le régime de démouillage visqueux a aussi été étudié sur substrat liquide. On observe une ouverture à vitesse constante du trou, indépendante de la viscosité du film si celle-ci n'est pas trop importante [13]. La force de friction sur le bourrelet, s'écrit par unité de longueur $F_V \sim \eta_B V$ [3],[14]. L'équilibre des forces $F_M = F_V$ conduit à :

$$V \approx \frac{|\tilde{S}|}{\eta_B} \approx \frac{1}{2\eta_B} \rho g (e_c^2 - e^2) \quad (\text{I.43})$$

I.6.3 Dynamique inertielle

Le démouillage en régime inertiel n'a été étudié que récemment sur substrat solide [15]-[17]. Nous en rappelons ici quelques résultats. L'ouverture du trou se fait à grande vitesse, cette fois-ci l'énergie superficielle se transforme majoritairement en énergie cinétique. On peut calculer un nombre de Reynolds Re en s'appuyant sur des données expérimentales pour justifier du régime inertiel. On prend une vitesse caractéristique de démouillage $V = 0.1 \text{ m.s}^{-1}$, la longueur étant la dimension caractéristique du bourrelet $L = 3 \text{ mm}$ et la viscosité cinématique $\nu = 10^{-6} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$, on a : $Re = \frac{VL}{\nu} \sim 300$. Cela nous permet de négliger la force visqueuse. La force motrice linéique est égale à l'opposé du paramètre d'étalement moins le terme de pression dû à la gravité. On écrit l'équation fondamentale de la dynamique pour la masse de liquide $M(t) = \rho\pi R^2 e$ contenue dans le bourrelet :

$$\frac{d(M(t)V)}{dt} = 2\pi R \left(-S - \frac{1}{2} \rho g e^2 \right) \quad (\text{I.44})$$

$V = \text{cste}$ est solution et l'on trouve :

$$V = \sqrt{\frac{|\tilde{S}|}{\rho e}} \quad (\text{I.45})$$

avec $\tilde{S} = S + \frac{1}{2} \rho g e^2$. Cette loi est analogue à la loi de Culick [18] qui donne la vitesse d'ouverture d'un trou dans un film de savon. Dans ce cas il y a deux interfaces identiques et l'on remplace $|\tilde{S}|$ par 2γ .

Elle est bien vérifiée dans le cas du démoillage [17] mais avec une valeur dynamique du paramètre d'étalement inférieure de 50% à sa valeur mesurée en statique. Un phénomène intéressant se produit lors de ce démoillage à grande vitesse : on a apparition au-dessus d'un seuil en vitesse d'ondes de chocs en avant du bourrelet car celui-ci progresse plus vite que la vitesse seuil des ondes de capillarité-gravité.

Nous étudierons au Chapitre V la dynamique de démoillage sur substrat liquide, la loi de vitesse et les ondes générées à grande vitesse.

Bibliographie

- [1] Adamson A.W., *Physical Chemistry of Surfaces (John Wiley and Sons, New York, 1976)*
- [2] de Gennes P.G., Brochard-Wyart F., and Quéré D. *Gouttes, bulles, perles et ondes. (Belin, Paris, 2002)*
- [3] Joanny J.F., *Physico-Chemical Hydrodynamics* 9, 183 (1987).
- [4] Joanny J.F. and de Gennes P.G., *J. Chem. Phys.* 81, 552 (1984).
- [5] Sekimoto K., Oguma R., and Kawasaki K., *Ann. Phys.* 176, 359 (1987).
- [6] Huh C. and Scriven L. E., *J. Colloid Interface Sci.* 35, 85 (1971).
- [7] de Gennes P.G., *Rev. Mod. Phys.* 57, 827 (1985).
- [8] Brochard-Wyart F. and de Gennes P.G., *Adv. Colloid Interface Sci.* 39, 1 (1992)
- [9] Hoffmann R., *J. Colloid Interface Sci.* 50, 228 (1975)
- [10] Blake T. and Haynes J. M., *J. Colloid Interface Sci.* 30, 421 (1969)
- [11] Quéré D., *C. R. Acad. Sci.* 313, 313 (1991)
- [12] Redon C., Brochard-Wyart F., and Rondelez F., *Phys. Rev. Lett.* 66, 715 (1991)
- [13] Martin P., Buguin A., and Brochard-Wyart F., *Europhys. Lett.* 28, 6, 421 (1994)
- [14] Brochard-Wyart F., Martin P., Redon C., *Langmuir* 9, 3682 (1993)
- [15] Andrieu C., Sykes C., and Brochard-Wyart F., *J. Adhesion* 58 (1996)
- [16] Brochard-Wyart F., Raphaël E., and Vovelle L., *C. R. Acad. Sci.* 321, 367 (1995)
- [17] Buguin A., Vovelle L., and Brochard-Wyart F., *Phys. Rev. Lett.* 83, 1183 (1998)
- [18] Culick F.E., *J. Appl. Phys.* 31, 1128 (1960).

Chapitre II

Fluctuations de lignes triples flottantes

Sommaire

II.1 Introduction	34
II.2 Tension de ligne macroscopique : calcul théorique	35
II.2.1 Substrat solide	35
II.2.2 Substrat liquide	38
II.3 Effets de la tension de ligne macroscopique	38
II.3.1 Pression de surface	39
II.3.2 Loi de Laplace 2D	40
II.3.3 Epaisseur des flaques flottantes	40
II.3.4 Comparaison avec des gouttes simulées	41
II.4 Flaques circulaires : Observations et caractérisations	43
II.4.1 Systèmes utilisés	43
II.4.2 Epaisseur des flaques flottantes	45
II.4.3 Distorsion des flaques : lignes minimales et bilan de force	46
II.5 Tension de ligne : Mesure directe	46
II.5.1 Tensiomètre de ligne	47
II.5.2 Résultats	47
II.6 Fluctuations de la ligne triple (triplons) : Expériences	48
II.6.1 Dispositif expérimental	49
II.6.2 Résultats	50
II.7 Triplons : Interprétation	52
II.7.1 Calcul en loi d'échelle	52
II.7.2 Comparaison avec l'expérience	54
II.7.3 Calcul direct en régime inertiel	54
II.8 Oscillations propres d'une flaque circulaire	56
II.9 Conclusion et Perspectives	58
Bibliographie	61

On décrit dans ce chapitre la statique et la dynamique de lignes triples flottantes (bords de flaques d'un liquide A flottant sur un liquide B non miscible et plus dense) dans le cas de

déformations grandes devant la longueur capillaire. Nous définirons et utiliserons le concept de tension de ligne macroscopique, nous verrons ses effets sur la statique des flaques, nous la mesurerons et nous verrons qu'elle induit des fluctuations se propageant le long de la ligne : les Triplons.

II.1 Introduction

Nous avons vu au Chapitre I (I.4) qu'une ligne triple sur substrat solide ou liquide possède une certaine élasticité. Ainsi toute déformation par rapport à sa position d'équilibre a un coût énergétique. Pour une déformation u_q de vecteur d'onde q , on a vu que l'on avait deux régimes possibles [1]-[2] :

- **régime de capillarité** : $q \ll \kappa^{-1}$: Dans ce régime, l'énergie de déformation a été baptisée par P.G. de Gennes "élasticité de frange", elle présente une forme particulière et s'écrit, par unité de longueur de la ligne : $E_{el,q} \sim \gamma q u_q^2$.
- **régime de gravité** : $q \gg \kappa^{-1}$: Dans ce régime, on retrouve une énergie de ligne classique qui peut s'exprimer à l'aide d'une tension de ligne macroscopique \mathcal{T} : $E_{el,q} \sim \mathcal{T} q^2 u_q^2$.

Sur un substrat solide, la ligne triple est accrochée par les défauts chimiques ou physiques de la surface, la compétition entre son élasticité et la force des défauts détermine sa forme. Ce phénomène est à l'origine de l'hystérésis de l'angle de contact. De nombreuses études concernent la déformation d'une ligne de contact piégée par des défauts [3]-[5]. Lorsqu'une ligne est déformée et se déplace sur un substrat, les échanges entre énergie élastique, énergie cinétique et dissipation visqueuse conduisent à des fluctuations de la ligne triple. La dynamique de ces fluctuations a été étudiée en mouillage partiel [6]-[7] (modes de relaxation) et en pseudo mouillage avec de l'hélium liquide [8]-[9] (modes propagatifs). Dans ces études, les longueurs d'onde utilisées sont de l'ordre de la longueur capillaire ou inférieures.

Du fait de l'hystérésis de l'angle de contact, les modes de fluctuations en régime de gravité (longueurs d'onde supérieures à κ^{-1}) sont bloqués sur substrat solide, l'énergie élastique, proportionnelle au carré du vecteur d'onde, est trop faible pour vaincre le piégeage dû à l'hystérésis de l'angle de contact. En revanche, pour un substrat liquide, il est possible d'étudier les fluctuations de la ligne triple, devenue flottante, pour des valeurs très grandes de la longueurs d'onde. Le substrat liquide est un substrat modèle qui ne présente pas d'hystérésis et dont les impuretés s'éliminent simplement en raclant la surface [10].

Nous allons d'abord étudier la statique de ces lignes flottantes, calculer la tension de ligne macroscopique et décrire son influence sur le rayon des flaques. Nous verrons quelles sont les informations sur la capillarité à deux dimensions que l'on obtient par simple observation. Nous décrirons pour la première fois une expérience de mesure de la force horizontale exercée

par une ligne triple en un point.

Nous aborderons ensuite la dynamique de ces lignes flottantes. L'absence d'hystérésis de l'angle de contact permet l'observation de modes propagatifs pour des fluides peu visqueux que nous décrivons par un modèle utilisant la tension de ligne macroscopique.

II.2 Tension de ligne macroscopique : calcul théorique

Nous définissons la tension de ligne macroscopique \mathcal{T} comme l'énergie à fournir par unité de longueur de la ligne triple pour former celle-ci à partir d'un film plat de liquide d'épaisseur e_c . De même que pour augmenter l'aire d'une interface on fournit une énergie γ par unité de surface, ici pour agrandir le contour d'une flaque infiniment grande, on fournit une énergie \mathcal{T} par unité de longueur. \mathcal{T} est l'analogie à 2D de la tension de surface.

Cette notion a été introduite en premier par Langmuir [11] qui étudiait la forme de lentilles flottantes par un délicat bilan de forces que nous avons adapté [12] pour en donner une définition énergétique.

Pujado et Scriven [13] décrivent de façon complète la théorie des flaques circulaires. Ils corrigent une erreur de Langmuir [11] relative au bilan de forces pour une lentille circulaire et critiquent l'utilisation d'une tension de ligne pour expliquer ses expériences. En fait tout est question de définition, nous considérons que la tension de ligne macroscopique est une façon d'intégrer la dimension verticale des flaques et l'énergie qui lui est associée. La ligne triple et le ménisque associé deviennent ainsi un objet unidimensionnel.

On va d'abord considérer une ligne de contact droite sur solide (un ménisque) puis étendre le calcul à un substrat liquide (trois ménisques).

II.2.1 Substrat solide

Considérons un film infini de liquide d'épaisseur e_c déposé sur un substrat solide. On réalise un trou dans le film en prélevant du liquide autour de l'origine O et en l'apportant à l'interface, infiniment loin de l'origine. Ceci est illustré sur la Figure II.1.

L'énergie à fournir pour réaliser cette transformation possède deux termes :

- Un terme capillaire dû à l'augmentation de l'aire de l'interface des deux ménisques par rapport au film plat.
- Un terme gravitationnel dû au fait que l'altitude des particules fluides déplacées pour creuser les ménisques change donc leur énergie potentielle aussi.

Ainsi, en utilisant les notations de la Figure II.2, s étant l'abscisse curviligne et $\zeta(x)$ le

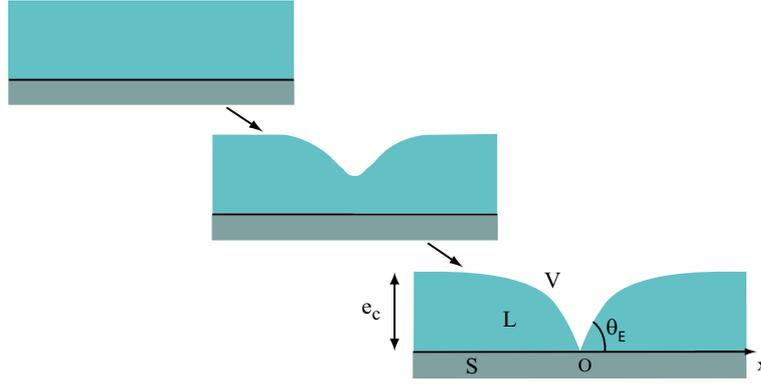


FIG. II.1 – Vue en coupe d’un film infini creusé pour former deux lignes de contact.

profil du ménisque, l’énergie par unité de longueur de la ligne vaut :

$$\mathcal{E} = \int_0^\infty \left[\gamma \left(\frac{ds}{dx} - 1 \right) + \frac{1}{2} \rho g (e_c - \zeta)^2 \right] dx \quad (\text{II.1})$$

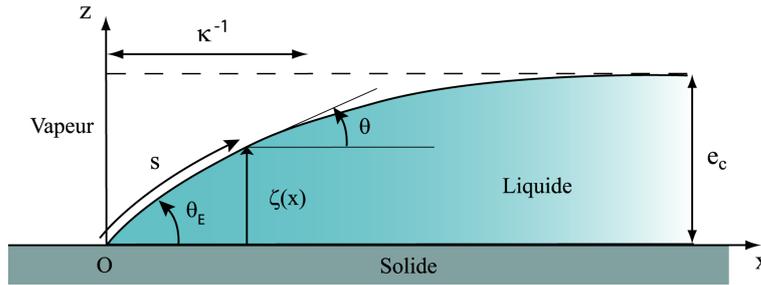


FIG. II.2 – Paramètres géométriques du ménisque pour le calcul de l’énergie de ligne.

On utilise le même bilan de force qu’en 1.2.2 pour trouver une relation entre le profil du ménisque $\zeta(x)$ et l’angle $\theta(x)$. On considère une tranche de liquide contenue entre l’origine et l’abscisse x . L’équilibre des forces de pression et de surface projeté selon l’axe x donne :

$$-\gamma \cos \theta_E + \gamma \cos \theta(x) - \int_0^{\zeta(x)} p(z) dz = 0 \quad (\text{II.2})$$

La pression hydrostatique (après déduction de la pression atmosphérique) s’écrit : $p(z) = \rho g (e_c - z)$. De plus d’après l’Eq. 1.10, $\gamma (1 - \cos \theta_E) = \frac{1}{2} \rho g e_c^2$, donc on obtient :

$$\gamma (1 - \cos \theta(x)) = \frac{1}{2} \rho g (e_c - \zeta(x))^2 \quad (\text{II.3})$$

Cette relation est suffisante pour poursuivre le calcul, néanmoins on peut écrire :

$$4 \sin^2 \left(\frac{\theta(x)}{2} \right) = \frac{\rho g}{\gamma} (e_c - \zeta(x))^2 \quad (\text{II.4})$$

et :

$$e_c - \zeta(x) = 2\kappa^{-1} \sin \left(\frac{\theta(x)}{2} \right) \quad (\text{II.5})$$

L'Eq. II.5 écrite pour $x = 0$ donne l'épaisseur d'une flaque de gravité (Eq. I.11) : $e_c = 2\kappa^{-1} \sin \left(\frac{\theta_E}{2} \right)$.

On remplace dans II.1 l'expression du profil $\zeta(x)$ donnée par II.3, sachant de plus que $\frac{ds}{dx} = \frac{1}{\cos \theta(x)}$, on obtient :

$$\mathcal{E} = \gamma \int_0^\infty \left[\frac{1}{\cos \theta(x)} - \cos \theta(x) \right] dx \quad (\text{II.6})$$

En faisant les changements de variables $dx = \frac{dz}{\tan \theta}$, puis $dz = -d\theta \kappa^{-1} \cos \left(\frac{\theta}{2} \right)$ (tiré de II.5), on obtient :

$$\mathcal{E} = 2\gamma\kappa^{-1} \int_0^{\theta_E} \sin \left(\frac{\theta}{2} \right) \cos^2 \left(\frac{\theta}{2} \right) d\theta \quad (\text{II.7})$$

Soit finalement pour la tension qui s'identifie ici à \mathcal{E} :

$$\boxed{\mathcal{T} = \mathcal{E} = \frac{4}{3} \gamma \kappa^{-1} \left(1 - \cos^3 \left(\frac{\theta_E}{2} \right) \right)} \quad (\text{II.8})$$

On peut calculer l'expression de \mathcal{T} à la limite des petits angles :

$$\mathcal{T} \simeq \frac{1}{2} \gamma \kappa^{-1} \theta_E^2 \quad (\text{II.9})$$

Cette tension de ligne ne s'appliquera que pour des déformations de longueurs d'ondes grandes devant la longueur capillaire (régime de gravité).

Le calcul de Sekimoto et al. [2] donne l'expression générale de l'énergie linéique d'une ligne de contact valable dans les deux régimes de capillarité et de gravité mais à la limite des petits angles, vu au Chapitre I :

$$E = \frac{1}{2} \gamma \theta^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\sqrt{\kappa^2 + q^2} - \kappa \right) |u_q|^2 dq \quad (\text{II.10})$$

et redonne bien l'expression II.9 pour $q \ll \kappa$.

II.2.2 Substrat liquide

Pour un substrat liquide B (que l'on appellera aussi huile), on considère séparément les trois interfaces Liquide B / Liquide A, Liquide B / Air et Liquide A / Air. On ajoute les contributions des trois ménisques caractérisés par les tensions interfaciales $\gamma_{AB}, \gamma_A, \gamma_B$, les longueurs capillaires $\kappa_{AB}^{-1}, \kappa_A^{-1}, \kappa_B^{-1}$ et les trois angles de contact $\alpha_{AB}, \alpha_A, \alpha_B$ que font chacune des interfaces avec l'horizontale (voir Fig. II.3).

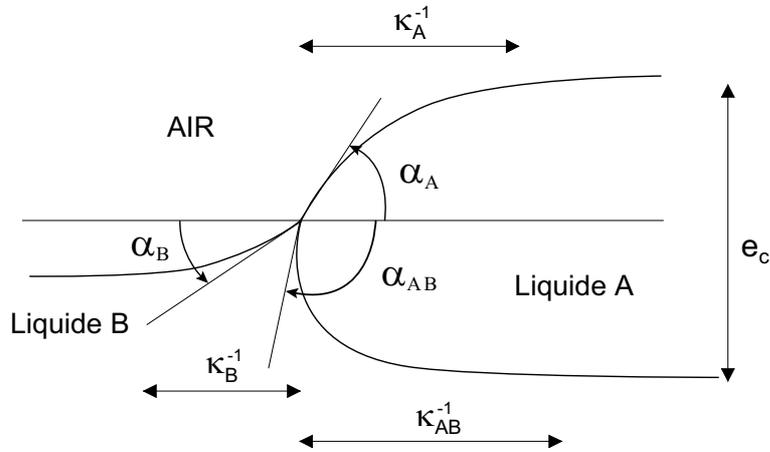


FIG. II.3 – Définition des angles α_i par rapport à l'horizontale pour le calcul de la tension de ligne.

On note pour chacun des ménisques $\mathcal{E}_i = \frac{4}{3}\gamma_i \kappa_i^{-1} \left(1 - \cos^3\left(\frac{\alpha_i}{2}\right)\right)$ avec $i = AB, A$ et B . On a ainsi pour la tension de ligne d'une ligne triple Liquide A / Liquide B / Air :

$$\mathcal{T} = \mathcal{E}_{AB} + \mathcal{E}_A + \mathcal{E}_B \quad (\text{II.11})$$

II.3 Effets de la tension de ligne macroscopique

De grosses gouttes d'eau déposées à la surface de l'huile forment à l'équilibre de grandes flaques circulaires de rayon $R \gg \kappa^{-1}$, dont l'épaisseur loin de la ligne triple est constante et proche de l'épaisseur critique e_c calculée en I.2.3. Une façon simple de comprendre ce qui induit cette forme circulaire est la tension de ligne macroscopique qui tend à minimiser la longueur du bord de la flaque. Par analogie avec la tension de surface à 3D, on va ainsi écrire une loi de Laplace à 2D. On présente dans le tableau suivant les grandeurs analogues :

TAB. II.1 – Analogie 3D - 2D

3D	2D
Pression P	Pression de surface Π
Tension de surface γ	Tension de ligne T
Courbure moyenne $\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}$	Courbure de ligne $\frac{1}{R}$

Nous avons précédemment discuté de la tension de ligne macroscopique, qui permet de passer à une description à 2D. Nous allons maintenant continuer à détailler ce passage de 3D à 2D en définissant la pression de surface Π.

II.3.1 Pression de surface

La ligne triple sépare deux zones : le liquide substrat B nu, présentant une interface avec l'air, et le film de liquide A recouvrant le substrat B. De la même façon que pour des films minces ou des monocouches de Langmuir, on va définir la pression de surface Π comme étant la différence de tension interfaciale entre les deux régions. La ligne triple est supposée d'extension nulle, d'énergie linéique T et sépare des interfaces supposées planes.

Pour le liquide substrat nu, sa tension est simplement γ_B . Pour le liquide substrat recouvert d'un film de liquide A, on va définir une tension effective $\widetilde{\gamma}_B$. On sait que la tension interfaciale (voir Eq. I.2) est la dérivée de l'énergie libre de l'interface par rapport à l'aire \mathcal{A} , à volume du film Ω constant. Pour appliquer cette définition au substrat recouvert du film de liquide A, on calcule son énergie libre comme on l'a vu en I.6.1. On a pour un film d'épaisseur e , en négligeant les interactions à longue portée :

$$\mathcal{F}(e) = \left(\gamma_A + \gamma_{AB} + \frac{1}{2} \tilde{\rho} g e^2 \right) \mathcal{A} = \left(\gamma_A + \gamma_{AB} + \frac{1}{2} \tilde{\rho} g e^2 \right) \frac{\Omega}{e} \quad (\text{II.12})$$

Avec $\tilde{\rho} = \frac{\rho_A}{\rho_B} (\rho_B - \rho_A)$ et $\Omega = \mathcal{A} e = \text{cste}$.

On a :

$$\widetilde{\gamma}_B = \frac{\partial \mathcal{F}}{\partial \mathcal{A}} \Big|_{\Omega} = \frac{\partial \mathcal{F}}{\partial e} \frac{\partial e}{\partial \mathcal{A}} = - \frac{e^2}{\Omega} \frac{\partial \mathcal{F}}{\partial e} \quad (\text{II.13})$$

Soit :

$$\widetilde{\gamma}_B = \gamma_A + \gamma_{AB} - \frac{1}{2} \tilde{\rho} g e^2 \quad (\text{II.14})$$

En écrivant l'équilibre des forces agissant sur la ligne $\widetilde{\gamma}_B = \gamma_B$, on retrouve $e = e_c$.

Par définition, la pression de surface Π mesure la diminution de l'énergie de surface due à la présence du film superficiel :

$$\widetilde{\gamma}_B = \gamma_B - \Pi \quad (\text{II.15})$$

Donc :

$$\Pi = S + \frac{1}{2}\tilde{\rho}ge^2 = \frac{1}{2}\tilde{\rho}g(e^2 - e_c^2) \quad (\text{II.16})$$

où S est le paramètre d'étalement défini en [I.2.1](#).

En associant une pression à chacun des côtés, on a $\Pi_B = 0$ et $\Pi_A = \Pi$, on écrit :

$$\Pi_A - \Pi_B = \frac{1}{2}\tilde{\rho}g(e^2 - e_c^2) \quad (\text{II.17})$$

II.3.2 Loi de Laplace 2D

On va maintenant écrire l'analogie de la loi de Laplace à 2 dimensions en faisant une transformation qui consiste à dilater la flaque, celle-ci passant de $R \rightarrow R + dR$, augmentant ainsi son aire de $2\pi R dR$ et son périmètre de $2\pi dR$. En écrivant l'égalité des travaux de surface et de ligne, on a : $(\Pi_A - \Pi_B) 2\pi R dR = \mathcal{T} 2\pi dR$. Et ainsi la loi de Laplace 2D :

$$\Pi_A - \Pi_B = \frac{\mathcal{T}}{R} \quad (\text{II.18})$$

Pour terminer, en associant les Eq. [II.17](#) et [II.18](#), on trouve que l'épaisseur maximale d'une flaque circulaire de rayon R est donnée par :

$$e^2 = e_c^2 \left(1 + \frac{\mathcal{T}}{R|S|} \right) \quad (\text{II.19})$$

Pour des flaques de taille moyenne (toujours telles que $R \gg \kappa^{-1}$), la tension de ligne les épaissit. L'écart à l'épaisseur critique e_c est de l'ordre de κ^{-1}/R . Cela peut permettre de mesurer \mathcal{T} .

II.3.3 Épaisseur des flaques flottantes

D'après Langmuir [[11](#)], on peut accéder à l'épaisseur critique e_c , donc au paramètre d'étalement S en déposant des volumes croissants de liquide A sur le liquide substrat B en mesurant le rayon des flaques formées. En traçant $V/(\pi R^2)$ en fonction de $1/R$, on obtient pour les

faibles valeurs de $1/R$ une droite dont l'ordonnée à l'origine donne e_c . La mesure de la pente donne accès à \mathcal{T} , la tension de ligne macroscopique.

Néanmoins il convient d'être prudent car comme nous allons le voir, la méthode est approximative car elle nécessite le calcul d'un terme correctif dû au volume du ménisque. On se place comme précédemment à la limite $R \gg \kappa_i^{-1}$. A l'ordre 0 en $1/R$, le volume d'une flaque est donné par $V = \pi R^2 e_c$. A l'ordre 1, on doit tenir compte de la correction apportée par II.19 et retirer les volumes ΔV_A et ΔV_{AB} , laissés vacants par les deux ménisques Liquide A / air et Liquide A / Liquide B. Ceux-ci se calculent facilement sachant que la composante verticale de la tension interfaciale au niveau du ménisque multipliée par la longueur de la ligne de contact vaut le poids (corrigé si besoin par la poussée d'Archimède) du liquide porté. En notant α_i les angles de contact avec l'horizontale (voir Fig. II.3), on a :

$$\Delta V_A = \frac{2\pi R \gamma_A \sin \alpha_A}{\rho_A g}, \quad \Delta V_{AB} = \frac{2\pi R \gamma_{AB} \sin \alpha_{AB}}{(\rho_B - \rho_A)g} \quad (\text{II.20})$$

et :

$$\Delta V = \Delta V_{AB} + \Delta V_A = 2\pi R (\kappa_{AB}^{-2} \sin \alpha_{AB} + \kappa_A^{-2} \sin \alpha_A) \quad (\text{II.21})$$

on a $V = \pi R^2 e - \Delta V$. En faisant un développement au premier ordre en $1/R$ de (II.19) :

$$\frac{V}{\pi R^2} = e_c - \left(2\kappa_{AB}^{-2} \sin \alpha_{AB} + 2\kappa_A^{-2} \sin \alpha_A - \frac{e_c \mathcal{T}}{2|S|} \right) \frac{1}{R} + O\left(\frac{1}{R^2}\right) \quad (\text{II.22})$$

Ainsi, l'ordonnée à l'origine donne une mesure de e_c et la pente, moyennant la correction de volume, donne \mathcal{T} .

II.3.4 Comparaison avec des gouttes simulées

Pour connaître le domaine de validité des relations II.22 et II.19, nous avons réalisé des simulations numériques du profil de flaques de volumes variables, en considérant un cas bien particulier : une flaque d'eau sur un substrat solide avec un angle de 90° . Cela ne correspond pas tout à fait au système utilisé de flaque flottante dans la suite, mais suffit pour comparer avec la théorie. Le programme que nous avons écrit permet en calculant numériquement les profils de flaques, (solution de l'équation de Young-Laplace), de déterminer pour un volume et un angle de contact donnés, le rayon R de la flaque et sa hauteur maximale e . Les détails de la méthode numérique (Runge Kutta ordre 4) sont donnés en Annexe B. On a comparé ces résultats avec les relations théoriques II.22 et II.19 en traçant pour des volumes de 0.005 à 300 mL les courbes e^2/e_c^2 et $V/(\pi R^2)$ en fonction de $1/R$.

On présente d'abord la courbe donnant e^2/e_c^2 en fonction de $1/R$ (Fig. II.4). Pour des valeurs faibles du rayon, on tend vers une forme sphérique de la goutte (régime de capillarité) et ainsi une forme hyperbolique pour e^2/e_c^2 car pour $\theta_E = 90^\circ$, $e = R$. Ainsi pour $R \rightarrow 0$, $e^2/e_c^2 \rightarrow R^2/e_c^2$. On remarque qu'à la limite où $R \rightarrow \infty$, l'épaisseur vaut l'épaisseur critique, mais que pour des valeurs intermédiaires du rayon, on a effectivement une augmentation de l'épaisseur maximale.

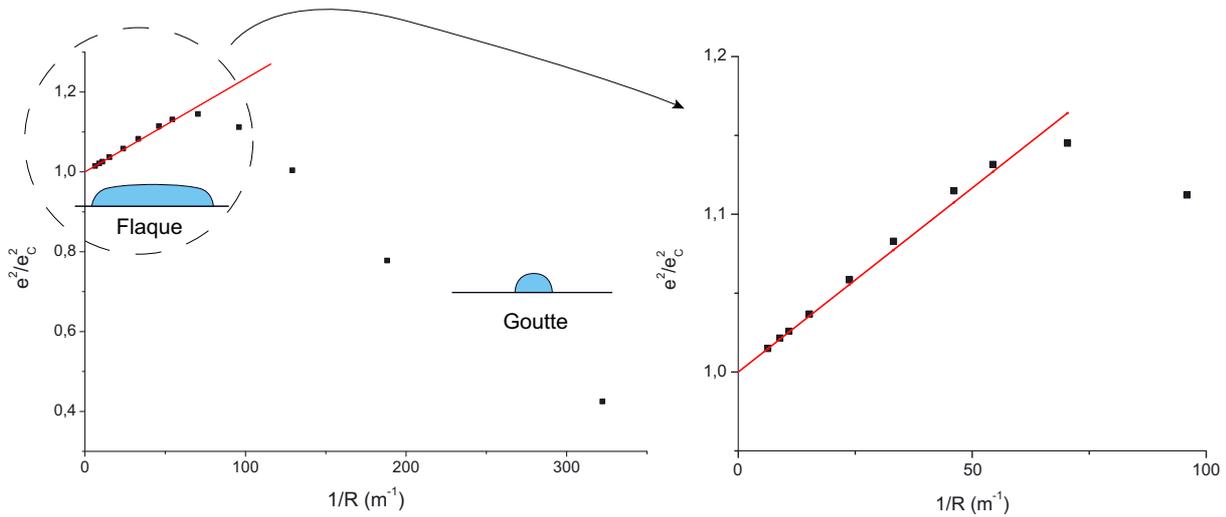


FIG. II.4 – Épaisseur maximale e de flaques circulaires obtenue par simulation numérique de profils (Eau sur substrat solide, $\theta_E = 90^\circ$). On a tracé e^2/e_c^2 en fonction de $1/R$. Pour les faibles valeurs de $1/R$: régime de gravité, grandes valeurs : régime de capillarité. La droite représente la théorie décrite précédemment (II.19) : $e^2/e_c^2 = 1 + \mathcal{T}/(R|S|)$

On observe bien le comportement linéaire prédit par II.19 pour des rayons supérieurs à 15-20 mm, soit environ 6 fois la longueur capillaire. On déduit de la pente la valeur supposée pour la tension de ligne : $\mathcal{T} = 0.00246 |S|$. On sait d'après I.6 que $|S| = \gamma(1 - \cos \theta_E) = 0.0072 N/m$. Soit une valeur $\mathcal{T} = 1.77 \cdot 10^{-4} N$. Le calcul théorique II.11 pour un ménisque à une dimension donne $\mathcal{T} = 1.68 \cdot 10^{-4} N$, soit un bon accord avec la simulation numérique. En ne considérant que des rayons vraiment très grands devant la longueur capillaire, on trouve exactement la valeur théorique. L'écart faible est donc dû à l'effet de termes d'ordres supérieurs en $1/R$.

La Figure II.5 présente la courbe $V/(\pi R^2)$ en fonction de $1/R$. Pour les faibles valeurs de $1/R$ le comportement est linéaire, en bon accord avec la théorie donnée par la droite $V/(\pi R^2) = e_c - (\alpha - e_c/(2|S|)\mathcal{T})1/R$, avec la correction de volume : $\alpha = 2\kappa^{-1} \sin 90^\circ$.

D'un point de vue expérimental, pour la suite, il faut noter que le terme correctif de volume est ici en gros trois fois plus important que le terme de tension de ligne. On a en effet dans la relation II.22 : $\alpha \simeq 1.5 \cdot 10^{-5} m^2$ alors que le terme $e_c \mathcal{T}/(2|S|) \simeq 0.5 \cdot 10^{-5} m^2$. Cela signifie qu'une erreur de 1% sur la correction de volume et sur la mesure correspond à

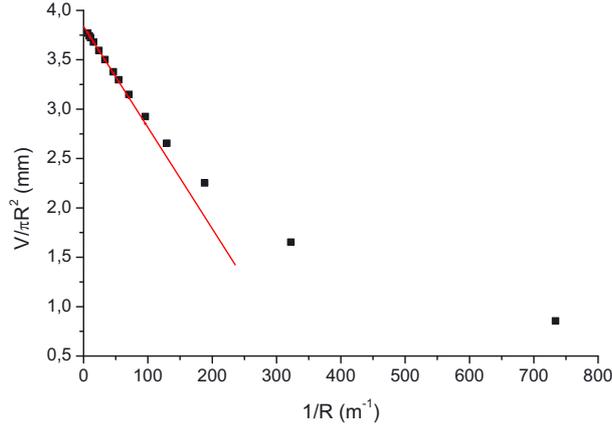


FIG. II.5 – Volume de la flaque divisé par sa surface en fonction de l’inverse du rayon, obtenu par simulation numérique de profils de flaques. La droite a pour équation : $V/(\pi R^2) = e_c - (2\kappa^{-2} - e_c/(2|S|)) \mathcal{T} 1/R$.

une erreur de 5% pour la tension de ligne. Cette méthode est donc bonne pour trouver e_c , mais d’une précision moyenne pour déterminer \mathcal{T} .

Conclusion : sur un exemple particulier d’une flaque sur un substrat solide pour un angle de 90° , nous avons constaté que la simulation numérique de la forme des flaques est en bon accord avec l’analyse au premier ordre en $1/R$ à l’aide de la tension de ligne macroscopique. C’est cette approche que nous allons utiliser pour les flaques, en conservant à l’esprit qu’elle n’est précise que pour des rayons plusieurs fois supérieurs à la longueur capillaire.

II.4 Flaques circulaires : Observations et caractérisations

II.4.1 Systèmes utilisés

Le liquide déposé est en général de l’eau, ou une solution aqueuse peu concentrée d’un colorant (New Methylen Blue, Basic Blue 24). Les liquides substrats utilisés ont été le tétrachlorure de carbone (CCl_4) puis la perfluorodécane ($C_{10}F_{18}$, notée PFD). On présente dans le tableau ci-dessous les paramètres importants pour ces systèmes issus de tables ou de la littérature. La tension interfaciale Eau/PFD est moins habituelle, on a trouvé dans [14] une valeur $\gamma_{Eau/PFD} = 55 \text{ mN/m}$. Nous l’avons mesurée au laboratoire, à l’aide de la méthode de la goutte pendante (le dispositif construit au cours de la thèse est décrit en Annexe A), on a trouvé $\gamma_{Eau/PFD} = 51 \text{ mN/m}$, la différence étant due notamment aux impuretés qui se fixent à l’interface.

Ces deux systèmes présentent des valeurs particulières de tensions interfaciales, car les

TAB. II.2 – Tensions interfaciales, Masses Volumiques et Longueurs capillaires

Couples	γ_{ij} ($mN.m^{-1}$)	ρ ou $\tilde{\rho}$ ($kg.m^{-3}$)	κ_{ij}^{-1} (mm)
Eau / Air (A)	72	998	2.71
Eau / CCL_4 (AB)	45	371	2.79
CCL_4 / Air (B)	27	1590	1.32
$S = -90 mN.m^{-1}$			
$e_c = 7.03 mm$			
Eau / PFD (AC)	55 (51)	477	2.39
PFD / Air (C)	17.5	1920	0.95
$S = -109 mN.m^{-1}$			
$e_c = 6.8 mm$			

paramètres d'étalement théorique du CCL_4 et de la PFD sur l'eau ($S' = \gamma_A - (\gamma_B + \gamma_{AB})$) sont proches de zéro. Celui pour la PFD déduit de nos mesures est positif ($3.5 mN.m^{-1}$). La PFD mouillerait donc a priori totalement l'eau, et formerait un film microscopique la recouvrant (voir Fig. II.6). On estime en égalant les forces à longue portée et la gravité, l'épaisseur de ce film à environ 100 nm. On prend pour le liquide A recouvert du film de B une tension effective γ'_A . Les trois forces de tensions interfaciales $\vec{\gamma}_B$, $\vec{\gamma}_{AB}$ et $\vec{\gamma}'_A$ sont colinéaires. L'angle θ_E vaut 180° . Pour le CCL_4 , on a aussi un angle de 180° et les tensions interfaciales colinéaires à la ligne de contact.

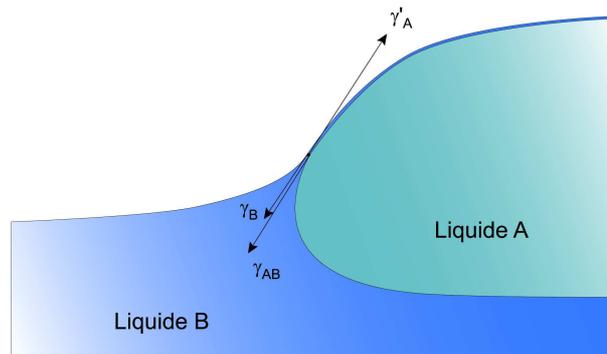


FIG. II.6 – Mouillage du liquide substrat dans le cas où son paramètre d'étalement sur l'eau est positif : les forces sont toutes parallèles à la ligne de contact macroscopique, un mince film de liquide B recouvre le liquide A (son épaisseur e est ici exagérée, on a $e \sim 100 nm$).

Il faut noter que notre mesure de tension interfaciale sous-estime la valeur réelle du fait des impuretés. Si celles-ci sont présentes, elles auront aussi tendance à contaminer l'interface Eau/Air et diminuer d'autant la tension de surface de l'eau. Ainsi le paramètre d'étalement de la PFD sur l'eau restera vraisemblablement nul ou légèrement négatif.

Ainsi pour les deux couples Eau / CCL_4 et Eau/PFD, le paramètre d'étalement du substrat sur l'eau est considéré comme nul, on a juste $\theta_E = 180^\circ$.

II.4.2 Epaisseur des flaques flottantes

On présente ci-dessous la courbe $V/\pi R^2$ en fonction de $1/R$ obtenue avec de l'eau et du CCL_4 (Figure II.7). On a pour cela utilisé un cristalliseur de 20 cm de diamètre, dont les bords étaient recouverts d'une feuille de Téflon pour éviter l'accrochage de l'eau sur le verre. Une caméra CCD placée au-dessus puis un traitement d'image permettent de mesurer le rayon des flaques. Les volumes sont mesurés à la pipette de précision.

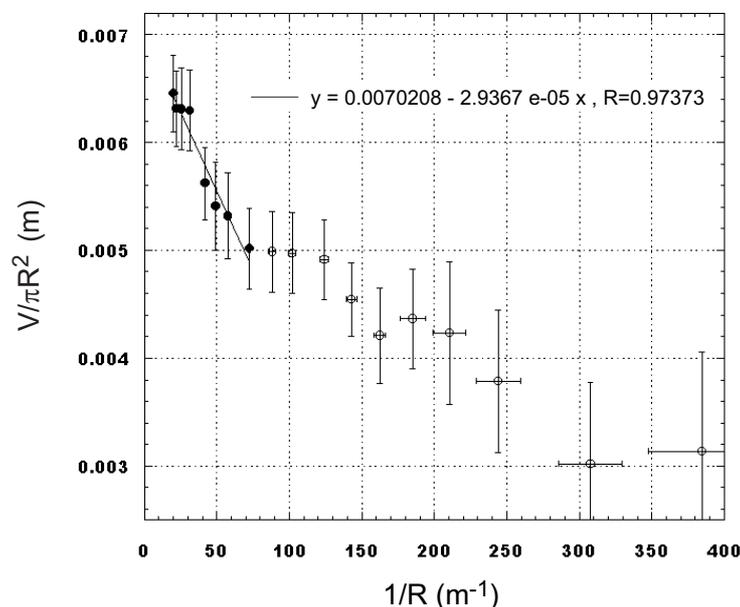


FIG. II.7 – Mesure de e_c pour le système Eau / CCL_4 . $e_c = 7.02 \text{ mm}$, soit $S = -90 \text{ mN.m}^{-1}$.

On observe un comportement linéaire pour $1/R < 80$. On trouve pour e_c une valeur : $e_c = 7.02 \text{ mm}$, très proche de la valeur théorique : $e_{c_{th}} = 7.03 \text{ mm}$.

On mesure ainsi $S = -90 \text{ mN.m}^{-1}$.

Pour le terme correctif de volume on calcule : $\frac{\Delta V}{\pi R} = 2(\kappa_{AB}^{-2} \sin \alpha_{AB} + \kappa_A^{-2} \sin \alpha_A) = 3.67 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2$, donc on obtient : $\mathcal{T} = 1,88 \cdot 10^{-4} \text{ N}$. Cette valeur est à comparer à la valeur théorique : $\mathcal{T}_{th} = 2,09 \cdot 10^{-4} \text{ N}$. On a donc un accord assez bon qu'il faut relativiser vu la dispersion des mesures.

L'observation de flaques circulaires de volumes croissants sur un substrat liquide permet donc de déterminer le paramètre d'étalement et d'avoir une assez bonne idée de la valeur de la tension de ligne macroscopique.

II.4.3 Distorsion des flaques : lignes minimales et bilan de force

On a vu que la tension de ligne avait une légère influence sur l'épaisseur maximale des flaques de gravité. On a aussi précisé que la tension de ligne tendait à minimiser la longueur de la ligne triple, et ainsi un large volume d'eau flottant sur un liquide non miscible adopte une forme circulaire à l'équilibre. On va maintenant voir ce qu'il se passe lorsqu'on essaie de déformer cette flaque.

L'expérience consiste à observer une flaque de dessus. Partant de sa forme circulaire, on tire vers l'extérieur sur deux tiges métalliques qui ancrent la ligne en deux points diamétralement opposés (Fig. II.8). On constate que la flaque se déforme selon un double arc de cercle. Cela s'explique en utilisant la loi de Laplace 2D : à l'équilibre, les pressions de surface sont constantes, ce qui impose une valeur constante pour le rayon de courbure en tout point de la ligne (sauf au niveau des tiges), on observe ainsi deux arcs de cercle qui se raccordent en faisant un angle 2θ . Cet angle θ est donné par l'équilibre des forces (Fig. II.8).

$$F = 2\mathcal{T} \cos \theta \quad (\text{II.23})$$

On retrouve comme pour la tension de surface deux interprétations de \mathcal{T} : c'est une énergie par unité de longueur et une force.

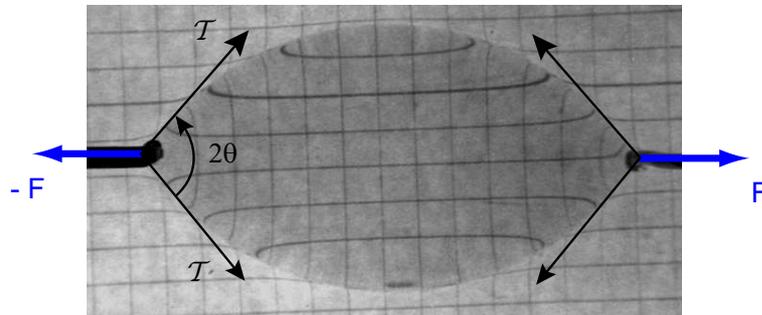


FIG. II.8 – Courbes minimales : deux arcs de cercles se forment lorsque l'on tire en deux points sur une flaque. L'angle 2θ est donné par l'équilibre des forces de l'opérateur et de tension de ligne. Un carreau représente 5 mm.

II.5 Tension de ligne : Mesure directe

En s'inspirant des observations précédentes, on va mesurer \mathcal{T} en appliquant une force croissante F (mesurée par un capteur de force) sur la ligne.

II.5.1 Tensiomètre de ligne

Nous avons utilisé une cuve rectangulaire en verre de 26 cm x 10 cm x 5 cm dont la moitié des bords est recouverte d'une bande de Téflon non mouillant pour l'eau ; à la frontière entre le Téflon et le verre, la ligne reste fortement accrochée (voir Fig. II.9).

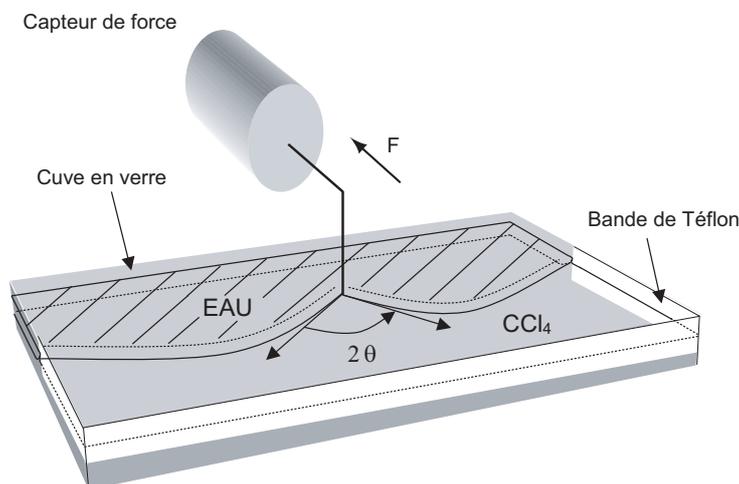


FIG. II.9 – Dispositif expérimental pour la mesure directe de \mathcal{T}

Pour avoir une ligne droite à l'équilibre, on ancre la ligne à ses deux extrémités en plaçant le volume d'eau adapté. Une tige de métal placée verticalement ancre la ligne et permet de la tirer et de la pousser. Pour mesurer la force qui en résulte, la tige est reliée à un capteur de force inductif commercial, calibré en utilisant différentes masses connues. On a vérifié que celui-ci avait à peu près le même comportement en utilisation horizontale que verticale à l'aide de fils métalliques faiblement fléchis.

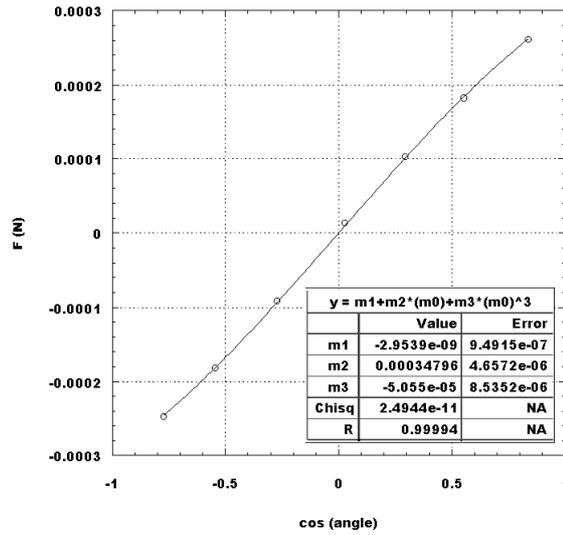
Lorsque l'on tire ou pousse sur la ligne, celle-ci adopte une forme en double arc de cercle qui se rejoignent en faisant un angle 2θ , de la même façon que les flaques circulaires. La force mesurée par le capteur est reliée à la tension de ligne par la relation :

$$F = 2\mathcal{T} \cos \theta \quad (\text{II.24})$$

II.5.2 Résultats

En mesurant la force F pour différents angles, on obtient la courbe de la force en fonction du cosinus de l'angle θ (Fig. II.10).

On observe une variation quasi linéaire de la force. On note une légère diminution pour les valeurs extrêmes du cosinus, on a donc ajusté la courbe avec un polynôme d'ordre 3 de manière empirique pour obtenir la pente près de l'origine. Cette diminution peut s'expliquer par le fait que la singularité au niveau de la tige met en jeu des valeurs de q élevées où le

FIG. II.10 – Force F en fonction de $\cos \theta$.

régime de gravité ne s'applique plus. Les deux ménisques se font face, et on ne peut pas dire que l'on soit dans une situation de déformation douce de la ligne. Le coefficient linéaire correspond à $2\mathcal{T}$. Soit une valeur :

$$\mathcal{T}_{exp} = 1.74 \pm 0.1 \cdot 10^{-4} \text{ N}$$

Cette valeur est légèrement inférieure à la valeur théorique prédite par notre modèle : $\mathcal{T}_{th} = 2,09 \cdot 10^{-4} \text{ N}$. Ceci est certainement dû aux impuretés qui modifient la tension de surface de l'eau, la contamination de cette très grande surface d'eau est inévitable et tend ainsi à diminuer la force. L'objectif était ici de montrer qu'une ligne triple exerçait une force horizontale, et que celle-ci augmentait avec le cosinus de l'angle. Pour améliorer l'expérience il faudrait utiliser un capteur à base de poutres défléchies en métal ou en verre et un ensemble laser-capteur de position qui serait vraiment fait pour mesurer des forces horizontales car le capteur utilisé, du fait de frottement solide, a pu plus ou moins sous estimer la force réelle.

II.6 Fluctuations de la ligne triple (triplons) : Expériences

Du fait de la tension de ligne, lorsqu'une ligne est perturbée, sa longueur augmentant, celle-ci stocke de l'énergie potentielle. Elle relaxe en fournissant de l'énergie cinétique aux fluides de chaque côté de la ligne. On a formation d'une onde transversale se propageant le long de la ligne. Nous allons voir qu'en excitant périodiquement un point de la ligne, on peut forcer ces ondes à une fréquence donnée et mesurer la relation de dispersion $\omega(q)$. On décrit d'abord le dispositif expérimental utilisé puis les résultats.

II.6.1 Dispositif expérimental

On a utilisé la même cuve en verre rectangulaire (26 cm x 10 cm x 5 cm) que précédemment et la même méthode pour accrocher la ligne à l'une de ses extrémités, à l'autre bout elle est accrochée par une tige de métal reliée à la partie mobile d'une table traçante qui sert de vibreur (voir Fig II.11). L'épaisseur du substrat est de 40-45 mm. Le volume d'eau ajouté est tel que la ligne est droite à l'équilibre (sinon la flaque a une forme en arc de cercle concave ou convexe).

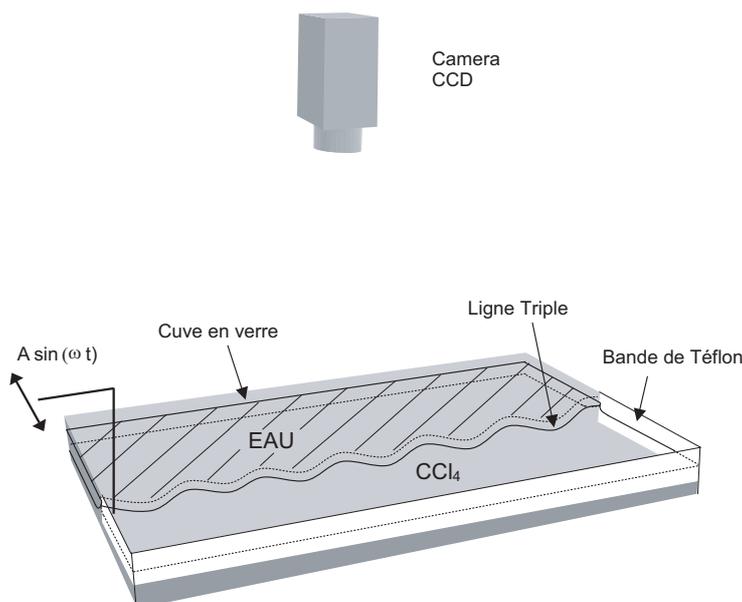


FIG. II.11 – Dispositif expérimental de mesure de la relation de dispersion des triplons. La ligne est ancrée à une extrémité par la frontière Téflon-verre et à l'autre par une tige métallique ayant un mouvement oscillant.

Le mouvement de la tige est sinusoïdal d'amplitude u_0 (de l'ordre de 1 à 5 mm) et de fréquence $f = \frac{\omega}{2\pi}$ variant de 0.25 à 10 Hz . Un générateur basses fréquences est relié à la table traçante. Les fluctuations de la ligne sont enregistrées par une caméra CCD placée au-dessus de la cuve.

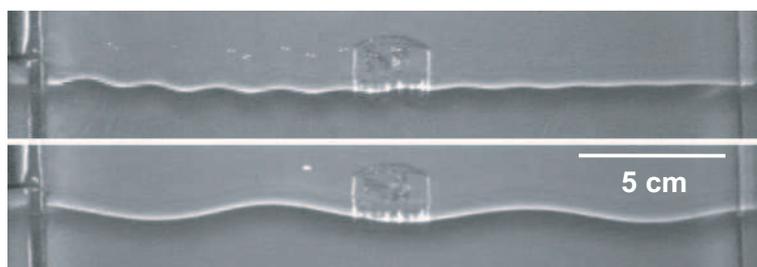


FIG. II.12 – Ondes de ligne triple à la frontière d'une flaque d'eau flottant sur du CCl_4 . En haut $f = 4.6$ Hz, pas d'onde réfléchie, en bas : $f = 0.5$ Hz, ondes stationnaires.

La ligne de contact est facilement repérée par la forte réfraction des rayons lumineux issus d'une lampe halogène. Sur les images ci-dessus (Figure II.12) on la repère par la trace de forte intensité lumineuse, une correction sur le calibrage en distance doit être effectuée car on observe l'image de la ligne projetée sur le fond de la cuve.

II.6.2 Résultats

On a d'abord observé que la longueur d'onde diminue avec la fréquence d'excitation. On a ensuite pu constater l'effet de la dissipation visqueuse sur le nombre de longueurs d'onde observées, correspondant à une longueur caractéristique d'atténuation a . Les ondes se propageant vers la droite, lorsqu'elles arrivent au niveau du bout de la cuve, sont réfléchies avec un certain coefficient en amplitude r . Elles reviennent ainsi en partie vers la gauche et s'additionnent à l'onde arrivant en sens inverse. Ainsi, lorsque a est plus petit que L (longueur de la cuve), il n'y a pas d'interférences, on mesure directement la longueur d'onde λ . Lorsque a devient de l'ordre de L , on enregistre une image avant qu'il n'y ait eu réflexion. Pour a supérieur à L , on utilise en plus une méthode d'onde stationnaire. On a ainsi cherché pour les modes de grandes longueurs d'onde à trouver les fréquences particulières pour lesquelles l'addition de l'onde réfléchie donne naissance à une onde stationnaire. Du fait de la dissipation et du coefficient de réflexion, on ne peut avoir une vraie onde stationnaire, mais on peut repérer la fréquence pour laquelle on s'en rapproche le plus. La condition est simplement donnée par : $L = (2n + 1)\frac{\lambda}{4}$.

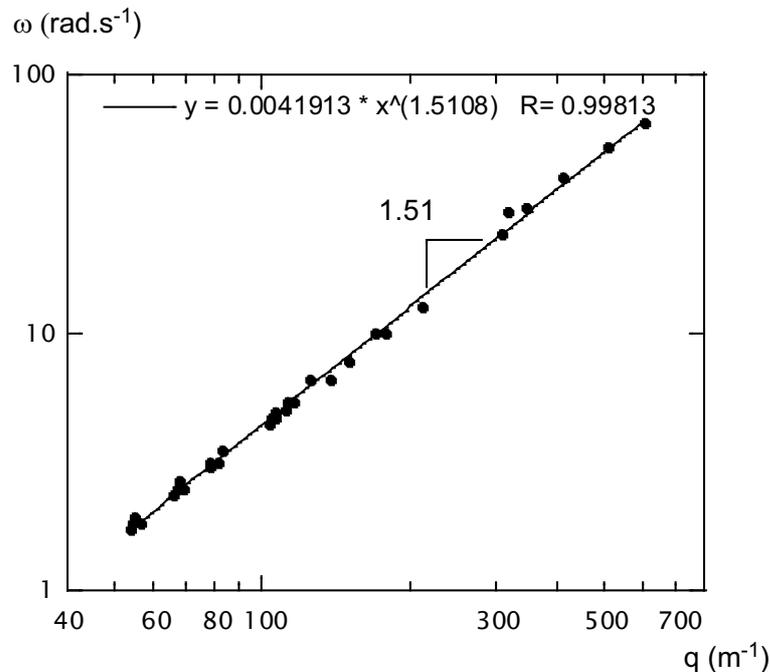


FIG. II.13 – Pulsation en fonction du vecteur d'onde des triplons. On trouve $\omega \sim q^{3/2}$.

Les valeurs obtenues en utilisant la condition d'onde stationnaire sont en bon accord avec les mesures directes. On présente ci-dessous le graphique donnant la pulsation en fonction du vecteur d'onde $q = \frac{2\pi}{\lambda}$ (Figure II.13). On constate un très bon ajustement avec une loi de puissance avec un exposant 3/2. On trouve $\omega = 0.0042 q^{1.51}$.

Mesure de l'amortissement

On a réalisé un deuxième série d'expériences pour mesurer la relation entre la longueur d'amortissement a et la pulsation ω . On a réalisé ces expériences après les précédentes, avec un autre liquide : du bromocyclohexane, $C_6H_{11}Br$ que nous noterons comme cela dans la suite. La hotte est néanmoins toujours nécessaire car ce produit est irritant. Nous avons utilisé la même cuve, munie d'un fond noir, la profondeur de liquide substrat est de 20 mm. Le dispositif de vibration est cette fois-ci constitué d'un haut-parleur dont la partie mobile est reliée à une tige qui oscille ainsi perpendiculairement à la ligne triple. L'éclairage se fait par réflexion sur les interfaces des deux liquides avec l'air. On fait l'image d'un diffuseur éclairé placé au-dessus de la cuve. On réalise des films avec une caméra à 60 images/s (on a utilisé cette caméra rapide dans le reste de la thèse jusqu'à des vitesses de 1000 images/s). Les parties planes des flaques apparaissent claires, les parties inclinées (zone près de la ligne triple) apparaissent sombres et permettent un traitement d'image simple pour repérer le profil de la ligne au cours du temps. On a ainsi fait varier la fréquence de 0.3 Hz à 4 Hz et repéré à différents instant après le début de l'excitation le profil (X_i, Y_i) de la ligne. On repère les profils juste avant que les ondes ne soient réfléchies et ne s'additionnent en revenant vers les ondes incidentes. On a réalisé un ajustement du type :

$$y = y_0 \exp\left(-\frac{x}{a}\right) \sin\left(\frac{2\pi}{\lambda}(x - x_0)\right)$$

On a ainsi pu mesurer la longueur d'onde λ , ainsi que la distance caractéristique a en fonction de la pulsation ω . On présente une image vue de dessus d'une flaque d'eau sur du $C_6H_{11}Br$, ainsi que le profil mesuré par traitement d'image et l'ajustement en exponentielle décroissante (II.14). On remarque à gauche la tige oscillante reliée au haut-parleur.

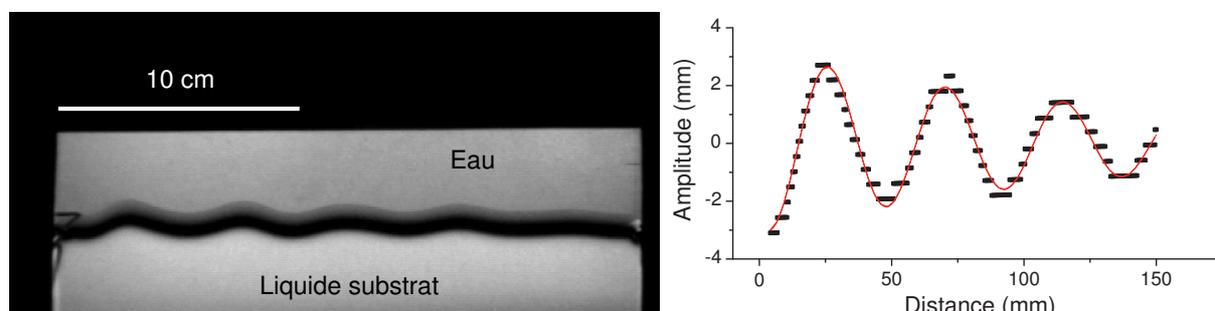


FIG. II.14 – A gauche : triplons observés en vue de dessus par réflexion, Eau sur $C_6H_{11}Br$, $f=1$ Hz. A droite : profil déterminé par traitement d'image ainsi que l'ajustement en exponentielle décroissante pour mesurer a et λ (ici $a = 143 \text{ mm}$ et $\lambda = 44,5 \text{ mm}$).

En réalisant ces mesures pour différentes fréquences, on a obtenu les valeurs de a en fonction de ω . On a choisi de tracer le nombre caractéristique de longueurs d'onde observé, c'est à dire le rapport a/λ , (Fig. II.15) ainsi que la relation de dispersion $\omega(q)$ obtenue.

On trouve que le nombre de longueurs d'onde caractéristique augmente avec la pulsation ω avec un exposant 0.58. Pour la relation de dispersion, on trouve un exposant pour ω en fonction de q valant 1.55, soit très proche de l'exposant 1.51 mesuré pour le CCL_4 .

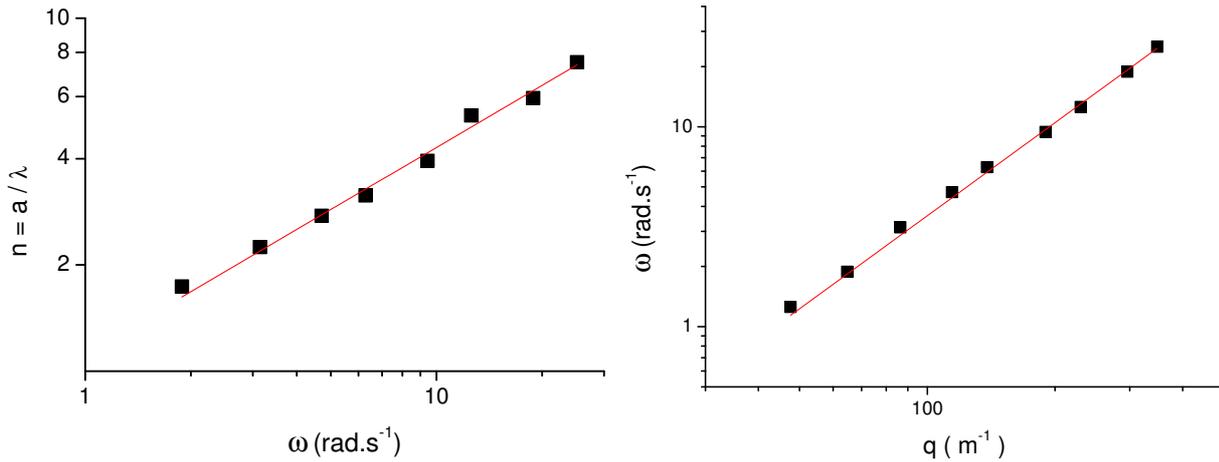


FIG. II.15 – A gauche : rapport a/λ en fonction de la pulsation ω pour de l'Eau sur $C_6H_{11}Br$, l'ajustement donne $a/\lambda = 1.12 \omega^{0.58}$. A droite : relation de dispersion : $\omega(q)$, on retrouve un exposant proche de $3/2$ comme pour le CCL_4 : $\omega = 0.0029 q^{1.55}$.

II.7 Triplons : Interprétation

II.7.1 Calcul en loi d'échelle

Nous calculons ici par une approche dimensionnelle (en ignorant les coefficients numériques) la relation de dispersion des modes. On considère une ligne triple flottante droite à l'équilibre, selon l'axe Ox . La déformation associée au vecteur d'onde q s'écrit : $u = u_q e^{i\omega t} e^{-iqx}$. Les modes observés sont gouvernés par un bilan des forces inertielles, élastiques et visqueuses :

$$M\ddot{u}_q = f_{el,q} - f_V \quad (\text{II.25})$$

M est la masse linéique de liquide en mouvement, \ddot{u} est l'accélération, $f_{el,q}$ est la force élastique dérivant de l'énergie élastique de la ligne : $f_{el,q} = -\frac{\partial E_{el}}{\partial u_q} = -\mathcal{T}q^2 u_q$ et f_V est la force visqueuse associée aux dissipations dans les deux liquides. Pour évaluer la masse M , on suppose que les volumes liquides en mouvement se comportent comme des films

incompressibles d'épaisseur e_c pour le liquide A et $e' = \rho_A e_c / \rho_B$ pour le liquide B substrat (Voir Fig. II.16). Sous l'interface A/B , on a des écoulements induits sur une épaisseur $h_\omega = \sqrt{\frac{\eta_B}{\rho_B \omega}}$. Les écoulements sont écartés à une distance q^{-1} de la ligne (comme nous le vérifierons dans une analyse détaillée). Soit H l'épaisseur de liquide B substrat, on a donc

- Pour $h_\omega < H$: $M \approx \rho_A (e_c + h_\omega) q^{-1}$
- Pour $h_\omega > H$, on a dans le liquide B un simple cisaillement, et : $M = \rho_A (e_c + H) q^{-1}$

En régime inertiel $h_\omega \ll e_c$, et $f_V \simeq 0$ on trouve donc pour la relation de dispersion des triplons :

$$\omega^2 \approx \frac{\mathcal{T} q^3}{\rho_A e_c} \quad (\text{II.26})$$

Calcul du terme visqueux

La force de dissipation f_V a deux sources principales : celle due au gradient de vitesse horizontal, perpendiculaire à la ligne qui s'écrit $f_{Vh} = (\eta_A e_c + \eta_B e') \frac{\dot{u}}{q^{-1}}$ et celle associée au gradient vertical dans la couche limite s'écrivant : $f_{Vv} = \eta_B q^{-1} \frac{\dot{u}}{h_\omega}$. C'est cette dernière contribution qui est dominante aux grandes longueurs d'onde que nous étudions, car :

$$\frac{f_{Vh}}{f_{Vv}} \sim \frac{e h_\omega}{q^{-2}} \ll 1 \quad (\text{II.27})$$

On a ainsi :

$$f_V \approx \frac{\eta_B q^{-1}}{h_\omega} \dot{u}_q \quad (\text{II.28})$$

- Pour $h_\omega > H$ (II.25) s'écrit :

$$\frac{\mathcal{T} q^3}{\rho_A e} = \omega^2 - i\omega\omega_1 \quad (\text{II.29})$$

avec $\omega_1 = \frac{\eta_B}{H\rho_A e}$. On a pour $\omega \gg \omega_1$ un mode propagatif peu amorti de vecteur d'onde :

$$q = q_0(\omega) \left(1 - i \frac{\omega_1}{3\omega} \right) \quad (\text{II.30})$$

Où $q_0(\omega)$ est la solution de (II.26). Les oscillations de la tige $u = u_0 e^{i\omega t}$ induisent une ondulation du contour : $u = u_0 e^{iq_0(\omega)x} e^{-x/a}$ décroissant spatialement selon la longueur a telle que :

$$n = a q_0 = \frac{2\pi a}{\lambda} = \frac{3\omega}{\omega_1} = \frac{3\omega}{\eta_B} H \rho_A e_c \quad (\text{II.31})$$

n représente le nombre de longueurs d'onde observables avant l'amortissement.

- Pour $h_\omega < H$ (II.25) s'écrit :

$$\frac{\mathcal{T} q^3}{\rho_A e} = \omega^2 - i \omega^{3/2} \frac{\eta_B^{1/2} \rho_B^{1/2}}{\rho_A e} = \omega^2 \left(1 - i \left(\frac{\omega_2}{\omega} \right)^{1/2} \right) \quad (\text{II.32})$$

avec $\omega_2 = \frac{\eta_B \rho_B}{(\rho_A e)^2}$. On a, pour $\omega \gg \omega_2$, un mode propagatif peu amorti de vecteur d'onde :

$$q = q_0(\omega) \left(1 - \frac{i}{3} \left(\frac{\omega_2}{\omega} \right)^{1/2} \right) \quad (\text{II.33})$$

Où $q_0(\omega)$ est la solution de (II.26). Le nombre de longueurs d'onde observable avant atténuation est donné par :

$$n = a q_0 = \frac{2\pi a}{\lambda_0} = 3 \left(\frac{\omega}{\omega_2} \right)^{1/2} = 3 \left(\frac{\omega \rho_A^2 e^2}{\eta_B \rho_B} \right)^{1/2} \quad (\text{II.34})$$

II.7.2 Comparaison avec l'expérience

Dans le cas du CCL_4 , le bain de liquide est profond ($h_\omega < H \simeq 40 \text{ mm}$) et la fréquence $\omega_2 \approx 0.005 \text{ Hz}$ (Eq. II.32) est bien inférieure à la plus faible des fréquences utilisées (0.25 Hz) ce qui confirme le caractère inertiel de ces ondes. Le modèle correspondant (Eq. II.26) donne un exposant 3/2 pour la fréquence en fonction du vecteur d'onde, cela confirme les observations pour lesquelles on a mesuré un exposant 1.51 (Fig. II.13). Pour ce qui est du préfacteur numérique, on trouve expérimentalement une valeur de 0.0042 S.I. Le calcul détaillé des modes, exposé au paragraphe suivant, permet de calculer ce préfacteur : $\sqrt{\mathcal{T}/(2\rho_A e_c)}$, en prenant $\rho_A = 1000 \text{ g.cm}^{-3}$, la valeur théorique $\mathcal{T} = 2,09 \cdot 10^{-4} \text{ N}$ et $e_c = 7.03 \text{ mm}$, on trouve un préfacteur valant 0.0039 S.I. On a donc un accord très satisfaisant.

Pour le $C_6H_{11}Br$, le bain est aussi profond (20 mm), on a $h_\omega < H$. La relation de dispersion donne un exposant 1.55 pour la pulsation en fonction du vecteur d'onde, soit un bon accord avec la théorie. En ce qui concerne l'amortissement des ondes, le rapport a/λ en fonction de la pulsation donne un exposant 0.58. Celui-ci est à comparer à l'équation II.34 où l'on trouve un exposant 0.5, soit une valeur assez proche. Il serait intéressant de renouveler ces expériences avec des épaisseurs de liquide substrat devenant très faibles sous la flaque d'eau, sans que celle-ci ne mouille le fond du récipient pour explorer le régime $h_\omega > H$.

II.7.3 Calcul direct en régime inertiel

On considère la géométrie présentée Figure II.16.

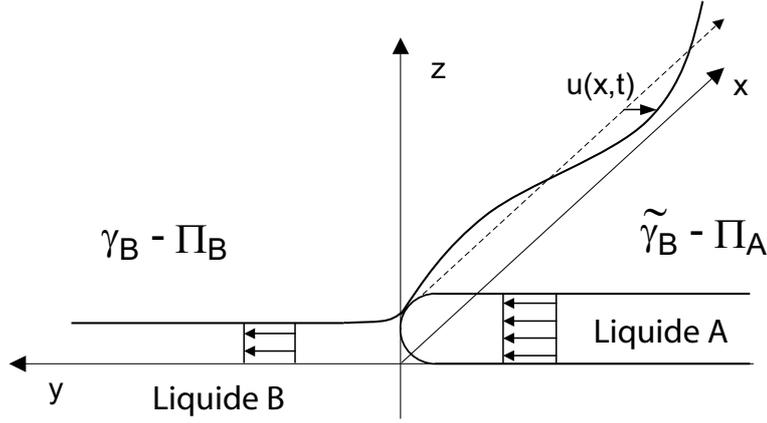


FIG. II.16 – Géométrie simplifiée pour le calcul direct des triplons.

On présente ici un calcul permettant de déterminer les écoulements en régime inertiel et retrouver la relation obtenue par analyse dimensionnelle (Eq. II.26). On utilise une description bidimensionnelle en intégrant les équations usuelles sur la hauteur de la flaque (e_c). Les écoulements sont générés par le gradient des pressions de surface de chaque côté de la ligne (Π_A et Π_B). L'écart $\Pi_A - \Pi_B$ est donné par l'équation de Laplace à 2D (Eq. II.18) :

$$\Pi_A - \Pi_B = \frac{\mathcal{T}}{R} \quad (\text{II.35})$$

Cette relation s'écrit pour les petites déformations :

$$\Pi_A(x, 0, t) - \Pi_B(x, 0, t) = -\mathcal{T} \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} \quad (\text{II.36})$$

Cette modulation des pressions induit des écoulements "bouchon" de part et d'autre de la ligne. On note avec l'indice p (plan), les grandeurs bidimensionnelles dans le plan Oxy. L'équation d'Euler à 2D s'écrit :

$$\rho_A e_c \frac{\partial \vec{v}_{p,i}}{\partial t} = -\vec{\nabla}_p \Pi_i \quad (\text{II.37})$$

On recherche des solutions de la forme :

$$\begin{aligned} \Pi_i &= \Pi_i(y) e^{i(\omega t - qx)} \\ \vec{v}_{p,i} &= \vec{v}_{p,i}(y) e^{i(\omega t - qx)} \\ u &= u_0 e^{i(\omega t - qx)} \end{aligned} \quad (\text{II.38})$$

L'équation (II.37) s'écrit alors :

$$\overrightarrow{v_{p,i}} = -\frac{\overrightarrow{\nabla}_p \Pi_i}{i\omega\rho_A e_c} \quad (\text{II.39})$$

On suppose le film incompressible, on peut donc écrire : $\text{div}(\overrightarrow{v_{p,i}}) = 0$, soit : $\Delta\Pi_i = 0$ et :

$$\frac{\partial^2 \Pi_i}{\partial y^2} - q^2 \Pi_i = 0 \quad (\text{II.40})$$

Du côté A, ($y < 0$), on trouve $\Pi_A(y) = \Pi_{A0} e^{qy}$, du côté B, ($y > 0$), on trouve $\Pi_B(y) = \Pi_{B0} e^{-qy}$. L'équation (II.36) donne :

$$\Pi_{A0} - \Pi_{B0} = \mathcal{T} q^2 u_0 \quad (\text{II.41})$$

Pour les petites déformations, on a la condition cinématique : $v_{y,A}(0) = v_{y,B}(0) = \frac{\partial u}{\partial t}$, soit :

$$v_{y,A}(0) = -\frac{1}{i\omega\rho_A e_c} \frac{d\Pi_A}{dy}(0) = -\frac{q\Pi_{A0}}{i\omega\rho_A e_c} = \frac{q\Pi_{B0}}{i\omega\rho_A e_c} = i\omega u_0 \quad (\text{II.42})$$

On obtient donc $\Pi_{A0} = -\Pi_{B0} = \frac{1}{2} \mathcal{T} q^2 u_0$ et on déduit la relation de dispersion :

$$\omega^2 = \frac{\mathcal{T} q^3}{2\rho_A e_c} \quad (\text{II.43})$$

On retrouve bien la loi d'échelle Eq. II.26, mais l'on a en plus la valeur numérique du préfacteur (discutée en II.7.2).

II.8 Oscillations propres d'une flaque circulaire

On s'intéresse maintenant à une géométrie différente où interviennent ces mouvements de ligne : le cas d'une flaque circulaire flottante de rayon R_{eq} à l'équilibre, présentant des fluctuations de faibles amplitudes de son contour : $\varrho(\theta, t) = R_{eq} + \varepsilon(\theta, t)$. On se place dans le domaine de longueurs d'onde grandes comparées à l'épaisseur de la flaque. On suppose comme précédemment les écoulements à deux dimensions (pas d'écoulements selon z et pas de dépendance en z) de part et d'autre de la ligne.

On peut utiliser un calcul analogue au précédent avec les équations :

$$\Pi_A - \Pi_B = \frac{\mathcal{T}}{\mathcal{R}} \quad , \quad \rho_A e_c \frac{\partial \overrightarrow{v_{p,i}}}{\partial t} = -\overrightarrow{\nabla}_p \Pi_i \quad , \quad \text{div}(\overrightarrow{v_{p,i}}) = 0 \quad , \quad v(R_{eq}) = \frac{\partial \varepsilon}{\partial t}$$

en cherchant des solutions de la forme $\Pi_i = f_i(r) e^{-i\omega t} e^{-im\theta}$, on aboutit au même résultat qu'avec la méthode que nous utilisons maintenant qui se sert de l'équation de Bernoulli.

On introduit les potentiels de vitesse $\Phi_A(r, \theta, t)$ et $\Phi_B(r, \theta, t)$ tels que $\vec{v}_i = \overrightarrow{\text{grad}} \Phi_i$, ils vérifient $\Delta \Phi_i = 0$ (écoulements irrotationnels). Au niveau de la ligne, on écrit l'équation de Bernoulli linéarisée et intégrée sur l'épaisseur de liquide :

$$\rho_A e_c \frac{\partial \phi_A}{\partial t} + \Pi_A(r, t) - \Pi_{A0} = \rho_A e_c \frac{\partial \phi_B}{\partial t} + \Pi_B(r, t) - \Pi_{B0} \quad (\text{II.44})$$

On note $\frac{1}{\mathcal{R}}$ la courbure locale de la ligne, on a donc en utilisant la Loi de Laplace 2D :

$$\rho_A e_c \left(\frac{\partial \phi_A}{\partial t} - \frac{\partial \phi_B}{\partial t} \right) + \mathcal{T} \left(\frac{1}{\mathcal{R}} - \frac{1}{R_{eq}} \right) = 0 \quad (\text{II.45})$$

Calculons la valeur de $\frac{1}{\mathcal{R}}$ pour des petites déformations. On sait que pour une courbe dans le plan en coordonnées cylindriques (paramétrée par θ) : $\varrho(\theta)$, on a ¹, [15] :

$$\frac{1}{\mathcal{R}} = \frac{\varrho^2 + 2\dot{\varrho}^2 - \varrho\ddot{\varrho}}{(\varrho^2 + \dot{\varrho}^2)^{3/2}} \quad (\text{II.46})$$

Sachant que $\varrho = R_{eq} + \varepsilon$, avec $\varepsilon \ll R_{eq}$, en ne gardant que les termes d'ordre 1 en ε et ses dérivées, on obtient :

$$\frac{1}{\mathcal{R}} = \frac{1}{R_{eq}} - \frac{1}{R_{eq}^2} \left(\varepsilon + \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial \theta^2} \right) \quad (\text{II.47})$$

On a aussi au niveau de la ligne la condition cinématique :

$$\left(\frac{\partial \phi_A}{\partial r} \right)_{r=R} = \left(\frac{\partial \phi_B}{\partial r} \right)_{r=R} = \frac{\partial \varepsilon}{\partial t} \quad (\text{II.48})$$

Soit les équations :

$$\Delta \Phi_A = \Delta \Phi_B = 0 \quad (\text{II.49})$$

$$\left(\frac{\partial \phi_A}{\partial r} \right)_{r=R} = \left(\frac{\partial \phi_B}{\partial r} \right)_{r=R} = \frac{\partial \varepsilon}{\partial t} \quad (\text{II.50})$$

$$\rho_A e_c \left(\frac{\partial \phi_A}{\partial t} - \frac{\partial \phi_B}{\partial t} \right)_{r=R} + \mathcal{T} \left(-\frac{\varepsilon}{R_{eq}^2} - \frac{1}{R_{eq}^2} \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial \theta^2} \right) = 0 \quad (\text{II.51})$$

On cherche des solutions en ondes stationnaires : $\Phi_i = e^{-i\omega t} f_i(r, \theta)$, on trouve avec les conditions de non divergence en $r = 0$ et $r \rightarrow +\infty$, ($m \in \mathbb{N}$) :

¹Avec ψ l'angle du vecteur tangent à la courbe avec une direction fixe, s l'abscisse curviligne, on a par définition : $\frac{1}{\mathcal{R}} = \frac{d\psi}{ds}$. On écrit ensuite que $\psi = \theta + \pi/2 - \psi'$, $\tan \psi' = \dot{\varrho}/\varrho$ et $d\theta/ds = 1/(\dot{\varrho}^2 + \varrho^2)^{1/2}$. Après calcul de $d\psi'/ds$, on exprime \mathcal{R} en fonction des dérivées par rapport à θ et on trouve [II.46](#)

$$f_A(r, \theta) = Ar^m(b \cos m\theta + c \sin m\theta) \quad (\text{II.52})$$

$$f_B(r, \theta) = Br^{-m}(d \cos m\theta + e \sin m\theta) \quad (\text{II.53})$$

$$A = -\frac{C}{R^{2m}} \quad (\text{II.54})$$

Avec la relation (II.51), on obtient les fréquences d'oscillations :

$$\omega = \sqrt{\frac{\mathcal{T}}{2\rho_A e_c} \frac{\sqrt{m(m^2 - 1)}}{R^{3/2}}} \quad (\text{II.55})$$

Pour $m = 0$, on a un mode à symétrie cylindrique qui voit la surface varier, donc hors du champ de notre calcul caractérisé par l'incompressibilité et la constance de e_c . Pour $m = 1$, on a un mode de translation. Le premier mode à envisager est donc celui pour $m = 2$.

Si l'on appliquait simplement la condition : $m\lambda = 2\pi R$ on trouverait :

$$\omega = \sqrt{\frac{\mathcal{T}}{2\rho_A e_c} \frac{m^{3/2}}{R^{3/2}}} \quad (\text{II.56})$$

On retrouve la même relation lorsque m devient grand (on se rapproche de la géométrie linéaire).

II.9 Conclusion et Perspectives

Nous avons étudié la statique et la dynamique de lignes triples flottantes. Le substrat liquide ayant la particularité de présenter un hystérésis nul, on a pu observer les fluctuations de la ligne pour des longueurs d'onde aussi grandes que 10 cm. Un des points importants dans cette étude a été la description bidimensionnelle des flaques, possible en régime de gravité. On a vu que la tension de ligne macroscopique était un concept général, présentant des applications en statique comme en dynamique. On a mis au point un tensiomètre de ligne, en attachant la ligne à une tige verticale. En vibrant la tige, on a pu observer les ondes de lignes propagatives baptisées "TRIPLONS". On a mesuré et interprété théoriquement l'équation de dispersion $\omega(q) \sim q^{3/2}$. On a aussi étudié l'amortissement de ces modes, et trouvé un accord qualitatif avec le modèle, des études systématiques plus détaillées restent à faire. Une autre perspective est l'étude des grosses gouttes sur substrat solide. Les modes de grandes longueurs d'onde ne sont pas observables directement, car les défauts de surface suffisent à les bloquer, même sur des surfaces modèles. Nous verrons au Chapitre IV que l'on peut observer les modes d'oscillation des flaques autour de leur forme circulaire en faisant

vibrer le substrat. Nous verrons que l'on peut supprimer les effets de l'hystérésis de l'angle de contact si l'on apporte suffisamment d'énergie.

Bibliographie

- [1] Joanny J.F. and de Gennes P.G., J. Chem. Phys. 81, 552 (1984).
- [2] Sekimoto K., Oguma R., and Kawasaki K., Ann. Phys. 176, 359 (1987).
- [3] Nadkarni G.D., Garoff S., Europhys. Lett. 20, 523 (1992)
- [4] Marsh J. A., Cazabat A.M., Europhys. Lett. 23, 45 (1993)
- [5] Marsh J. A., Cazabat A.M., Phys. Rev. Lett. 71, 15 (1993)
- [6] de Gennes P.G., C. R. Acad. Sci. Paris, 302, 731 (1986).
- [7] Ondarçuhu T., Veyssié M. , Nature 352 (1991)
- [8] Brochard F., Europhys. Lett. 3, 21 (1993)
- [9] Poujade M., Guthmann C., Rolley E., Europhys. Lett. 59, 862 (2002)
- [10] Pockels A., Nature (1891)
- [11] Langmuir I., J. of Chem. Phys. 1, 756 (1933)
- [12] Noblin X., Buguin A., and Brochard-Wyart F., Langmuir 18, 9350 (2002).
- [13] Pujado P.R., Scriven L. E., J. Colloid Interface Sci. 40, 82 (1972).
- [14] Tice J.D., Song H., Lyon A.D., Ismagilov F., Langmuir 19, 9127 (2003).
- [15] Arfken G.B., Weber H.J., *Mathematical methods for physicists, Academic Press, Fourth ed. (1995).*

Chapitre III

Gouttes vibrées (1) : modes axisymétriques.

Sommaire

III.1 Introduction	63
III.2 Dispositif expérimental	66
III.2.1 Vibrations	66
III.2.2 Matériel	68
III.3 Modes de Type I : Ligne de contact circulaire et fixe.	70
III.3.1 Méthode expérimentale	70
III.3.2 Spectres	72
III.3.3 Fréquences de résonances	73
III.3.4 Interprétation	74
III.4 Modes de Type II : Ligne de contact circulaire et mobile.	78
III.4.1 Méthodes expérimentales	79
III.4.2 Courbes Position - Angle	83
III.4.3 Courbes de seuils	85
III.4.4 Spectres	86
III.4.5 Interprétation : Transition modes I - modes II	88
III.4.6 Interprétation : Déplacement des fréquences de résonance	88
III.4.7 Interprétation : Oscillateur avec frottement solide ($\theta = \theta_E$)	89
III.5 Conclusion et Perspectives	98
Bibliographie	102

III.1 Introduction

Nous avons étudié au chapitre précédent les modes de fluctuations d'une ligne triple bordant des flaques flottantes sur un substrat liquide. Du fait de l'absence d'hystérésis de

l'angle de contact ces mouvements sont très facilement observables sur un substrat liquide [1]. Sur substrat solide, ces fluctuations, notamment étudiées par Ondarçuhu et al. [2] ont uniquement été observées pour de faibles longueurs d'onde ($\lambda \leq \kappa^{-1}$) et sont très rapidement amorties. Pour observer des modes de grandes longueurs d'onde sur substrat solide, il est donc nécessaire de fournir au système une certaine quantité d'énergie pour compenser les frottements fluides (dissipation visqueuse près de la ligne de contact) et solides (effet de l'hystérésis de l'angle de contact). Nous étudierons plus particulièrement au chapitre 4 ces modes de fluctuations de la ligne de contact en géométrie cylindrique pour de grosses gouttes aplaties soumises à des vibrations de fortes amplitudes. Pour bien comprendre ces modes, il nous a fallu auparavant étudier l'effet des vibrations de plus faible amplitude. En effet c'est un couplage fort avec des modes d'oscillations axisymétriques qui induit ces oscillations de forme.

Dans ce présent chapitre, nous nous intéressons donc à ce qu'il se passe lorsqu'on fait vibrer modérément un substrat sur lequel est déposée une goutte aplatie par la gravité, une grande partie des résultats ont été publiés dans [3]. Depuis plus d'un siècle, de nombreuses études concernent les oscillations de gouttes libres, maintenues en lévitation ou en état de microgravité. Celles-ci sont sphériques à l'équilibre et présentent des résonances pour des fréquences $\omega_l/2\pi$ calculées par Rayleigh et discutées en détail dans [4]. Elles s'expriment en fonction de l'indice l de l'harmonique sphérique correspondant :

$$\omega_l^2 = \frac{\gamma}{\rho R^3} l(l-1)(l-2) \quad (\text{III.1})$$

où R est le rayon de la goutte, ρ la masse volumique et γ la tension de surface du liquide.

Les problèmes d'oscillations de gouttes supportées, c'est-à-dire en contact partiel avec un substrat n'ont été étudiés que plus récemment. Les premières expériences d'oscillations de gouttes déposées remontent à 25 ans par Rodot et al. et Bisch et al. [5]. Celles-ci étaient motivées par l'étude de l'effet des vibrations lors de la croissance de cristaux en microgravité. Ont suivi des études théoriques et expérimentales dont la motivation principale était de prolonger les travaux précédents sur les gouttes déposées ou de les étendre à l'étude des vibrations d'une goutte pendante [6]-[12]. Ces phénomènes présentent notamment des applications en mesure de tension de surface dynamique. Le phénomène d'éjection de goutelettes pour des gouttes déposées en vibration a été étudié dans [13]. La plupart de ces études se rapportent à une condition de ligne de contact fixe. Seule une étude numérique [14] concerne l'étude de deux modes idéaux de vibration : l'un avec une ligne de contact fixe et l'autre avec un angle de contact fixe et une ligne de contact mobile.

Notre étude est la première consacrée du point de vue expérimental aux deux modes de vibrations pour un même système et à la transition entre les deux (ligne fixe et ligne mobile). L'hystérésis de l'angle de contact empêche le mouvement de la ligne aux faibles amplitudes

de vibration (ligne piégée) par contre, aux fortes amplitudes, la ligne est libérée. On peut donc observer les deux types de modes :

- Type I : ligne de contact fixe et angle variable (amplitude faible).
- Type II : ligne de contact mobile (amplitude plus grande).

De récentes études se sont notamment focalisées sur l'utilisation de vibrations mécaniques pour "annuler" les effets de l'hystérésis de l'angle de contact, faisant suite à [15]. Par exemple pour faciliter les mouvements d'une goutte sur un substrat présentant un gradient chimique [16], ou bien pour pouvoir mesurer un angle de contact moyen θ_E sur un substrat hystérique [17]-[18]. En effet pour la plupart des substrats réels, on peut accéder directement à θ_a ou θ_r mais pas à θ_E . Nous verrons que l'on peut mesurer l'angle moyen d'une goutte alors qu'elle vibre.

Nous nous sommes particulièrement intéressé aux flaques, gouttes aplaties par la gravité, de rayon $R > \kappa^{-1}$. Parmi les études citées précédemment, peu traitent des effets de la gravité. Dans [11], [12] les auteurs utilisent une méthode numérique aux éléments finis (assez lourde). Dans [19] les auteurs font vibrer de grosses gouttes en lévitation sur un film d'air, et développent un modèle d'oscillateur pour la goutte dont nous nous inspirerons. Néanmoins la goutte n'est pas en contact avec le substrat, donc il n'y a pas d'effet d'hystérésis de l'angle de contact et de dynamique de la ligne. C'est justement ce que nous étudions ici.

De nombreuses études concernent la dynamique visqueuse de la ligne de contact (voir Chapitre I), nous nous intéressons ici à la dynamique inertielle. Le mouvement oscillatoire forcé d'une ligne de contact à grande vitesse a été étudié expérimentalement et théoriquement avec comme système, des fibres ou des plaques immergées dans un bain de liquide [20]-[22]. Différents régimes ont été étudiés : ligne de contact fixe, mouvements de Stick-Slip, de pur glissement. Nous allons voir que l'on retrouve ces comportements en faisant vibrer verticalement des gouttes déposées. On détaillera en particulier les effets de l'hystérésis de l'angle de contact.

Nous nous proposons d'abord de décrire le dispositif expérimental général (III.2) puis d'étudier les modes de Type I : ligne de contact fixe (III.3) et enfin les modes de Type II : ligne de contact mobile (III.4).

III.2 Dispositif expérimental

III.2.1 Vibrations

Génération des vibrations

Nous avons utilisé pour générer les vibrations un haut-parleur Monacor SPH 225 muni de trois pieds. Une plaque cylindrique en Dural a été fabriquée au diamètre maximal du cône du haut-parleur (130 mm) et collée sur celui-ci. Elle présente plusieurs séries de trous de fixation pour les pièces supportant les substrats solides.

Le haut-parleur est relié à un amplificateur fabriqué à l'atelier d'électronique à base d'A.O. de puissance. Le signal est envoyé à l'amplificateur via un préamplificateur de conditionnement fabriqué par nos soins (A.O. de précision). Celui-ci permet un réglage supplémentaire de gain et d'offset. Pour le signal lui-même, nous avons utilisé deux configurations : soit un générateur de fonctions digital (SONY-Tektronix AFG 320), soit la sortie "analogique" de la carte d'entrée/sortie de l'ordinateur, pilotée par un programme Labview. La carte utilisée toute au long de la thèse est une National Instrument NI-6035E I/O Multifonctions, 16 bits, 200 000 éch/s en entrée et 12 bits, 10000 éch/s en sortie.

Les signaux envoyés au haut-parleur seront généralement de deux types et conduiront pour le déplacement à deux possibilités :

- Signal sinusoïdal : $u(t) = u_0 \cos(\omega t)$
- Bruit blanc : $u(t) = f(t)$ avec une densité spectrale $F(f)$ constante.

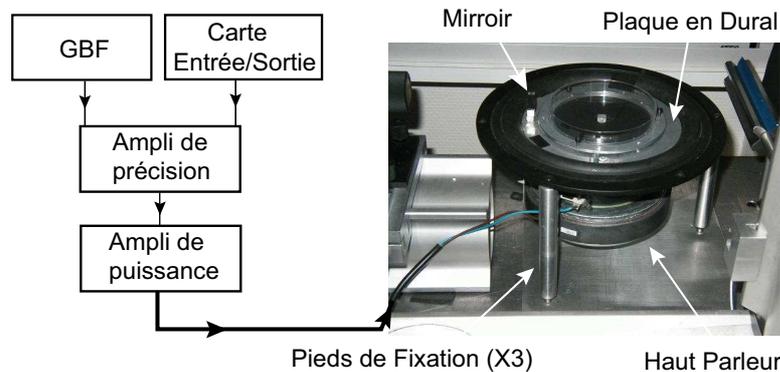


FIG. III.1 – Vue plongeante sur le haut-parleur munis de pieds de fixation. La plaque en Dural permet de fixer les échantillons. Un miroir à 45° redirige un faisceau Laser arrivant verticalement vers un capteur de position situé vers l'avant de la photo.

Une des grandeurs importantes sera l'accélération du support, celle-ci vaut pour un déplacement sinusoïdal : $a(t) = -\omega^2 u_0 \cos(\omega t) = -\Lambda \cos(\omega t)$. La variation correspondante de gravité vue par le liquide sur le support s'écrira (composition des accélérations) :

$$g^* = g - \Lambda \cos(\omega t)$$

La gamme d'accélération explorée va typiquement de $\Lambda = 0$ à $\Lambda = 0,5 g$.

Mesure des vibrations

On mesure directement le déplacement vertical du haut-parleur. L'accélération est déduite de ces mesures après calcul par le programme Labview. Pour ce faire, on place sur la plaque de fixation (liée à la partie mobile du haut parleur) un miroir carré de 10 mm à 45° de l'horizontale. Un Laser (He-Ne, Melles Griot, 5 mW) placé au dessus du haut-parleur envoie un faisceau vertical vers le bas qui après réflexion sur le miroir continue horizontalement vers un détecteur de position (1D-PSD, Hamamatsu) de course $D = 25 \text{ mm}$ placé verticalement, perpendiculairement au faisceau Laser. Les mouvements verticaux du haut-parleur sont ainsi directement transmis au laser et mesurés par le PSD.

Le PSD fonctionne un peu comme une double photodiode, donnant deux courants I_1 et I_2 (variant selon la position du spot sur le capteur) que l'on envoie vers un convertisseur courant-tension à base d'A.O. de précision. Les deux tensions Y_1 et Y_2 correspondantes sont envoyées vers la carte d'acquisition. Pour obtenir la position du faisceau sur le capteur, on doit effectuer l'opération : $\alpha * (Y_1 - Y_2)/(Y_1 + Y_2)$, avec théoriquement $\alpha = D/2$. Dans la pratique, cette constante est mesurée par calibrage pour obtenir une distance en mm. Un circuit analogique à base de composants réalisant les opérations arithmétiques a d'abord été construit. La précision obtenue a été jugée insuffisante, on a donc décidé de réaliser les opérations informatiquement, en temps réel, au fil de l'acquisition.

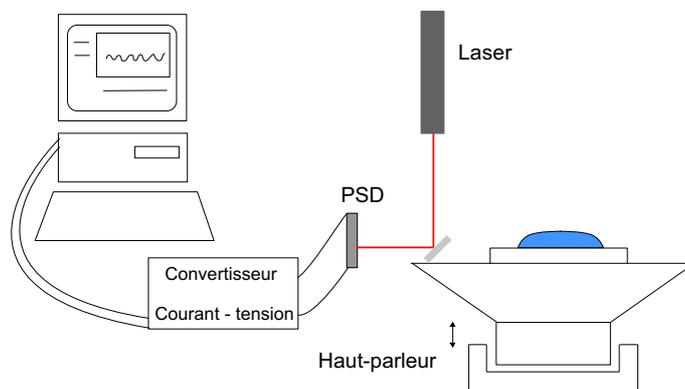


FIG. III.2 – Dispositif de mesure du déplacement : les mouvements du haut-parleur sont transmis directement au niveau du capteur de position (PSD) via un faisceau Laser. Le déplacement et l'accélération sont calculés par le programme informatique.

Ce signal donnant la position verticale du haut-parleur est acquis à 10 kHz en continu en utilisant un tampon correspondant à une seconde de mesure. Le programme calcule les amplitudes des modes de Fourier ($u_1, u_2, u_3, u_4\dots$) en temps réel du signal, pour chaque paquet de données du tampon. L'amplitude de l'accélération est calculée en réalisant l'opération

$$\Lambda = \omega^2 u_1.$$

Caractéristiques du haut-parleur

On a mesuré pour une amplitude de 1 volt, l'amplitude de vibration du haut parleur en fonction de la fréquence ; on trouve un comportement proche de celui d'un passe-bas du deuxième ordre classique. La fréquence de coupure avec la plaque, le support, le substrat, la fenêtre optique et le miroir est de l'ordre de 15 Hz.

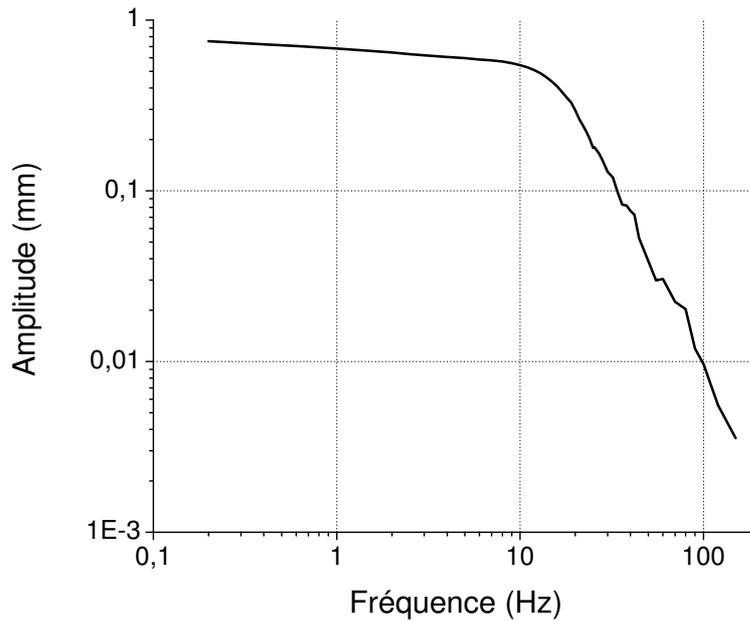


FIG. III.3 – Amplitude de vibration du haut-parleur en mm (muni de la plaque de fixation et d'un substrat) en fonction de la fréquence pour une excitation de 1 volt en entrée.

Le déplacement maximum du haut-parleur est de 16 mm crête à crête. La réponse devient non linéaire à cause de cette saturation à partir de quelques mm. On l'observe en mesurant notamment l'amplitude des harmoniques 2, 3, 4, 5 et le taux de distorsion harmonique. La composante $2f_e$ est fortement réduite par adaptation de l'offset du signal. L'harmonique $3f_e$ est dominante pour les grandes amplitudes de vibration. On est donc limité en accélération pour les fréquences inférieures à quelques Hz.

III.2.2 Matériel

Pour l'étude des modes axisymétriques, le substrat utilisé est, sauf exception, une boîte de Pétri en Polystyrène (PS) (Greiner, Fisher-Labosi) de diamètre 95 mm. On a mesuré les angles d'avancée et de reculée pour ce système Eau/PS (voir Table IV.10).

TAB. III.1 – Angle d'avancée et de reculée : eau sur PS

θ_a	θ_r	$\Delta\theta = \theta_a - \theta_r$
$92 \pm 1^\circ$	$78.5 \pm 1^\circ$	$13.5 \pm 2^\circ$

Les boîtes de Pétri sont légèrement déformées pour adopter une forme concave, ce qui évite aux gouttes de se déplacer sur le substrat (mode de translation). Cette forme de cuvette est réalisée en fixant, à l'aide d'une vis, le fond de la boîte de Pétri sur la plaque de fixation et en sur-élevant les bords de la boîte à l'aide d'un anneau cylindrique supporté par trois vis de niveau ajustables (Fig. III.4).

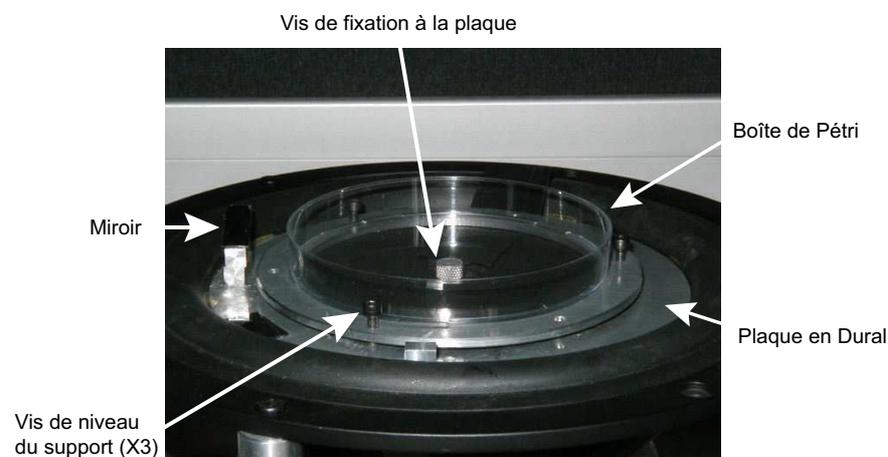


FIG. III.4 – Dispositif de fixation d'une boîte de Pétri sur la plaque en Dural mobile. Les 3 vis de niveau surélèvent un anneau soutenant les bords de la boîte de Pétri. Celle-ci est fixée en son centre par une vis dans la plaque de Dural. Le miroir utilisé pour la mesure des déplacements du haut-parleur est sur la gauche.

Pour éviter les phénomènes de contamination et d'évaporation, la boîte est fermée par une fenêtre optique en verre présentant un très faible coefficient de réflexion. Celle-ci est maintenue avec des petites pièces de caoutchouc par déformation des bords de la boîte de Pétri.

Le choix de ce substrat a été motivé au départ par différentes raisons : très facile à se procurer, en quantité illimitée, il permettait d'observer facilement les modes non-axisymétriques étudiés au chapitre suivant du fait du faible hystérésis de l'angle de contact. Un élément déterminant a été la simplicité avec laquelle on peut le déformer, ce qui n'est pas le cas de la plupart des surfaces préparées par traitement sur des substrats solides. Les désavantages sont un certain vieillissement de la surface par contamination qui a pour effet de modifier les propriétés de mouillage au bout de plusieurs heures. Le lavage de ces surfaces est assez limité du fait de leur relative fragilité vis-à-vis de différentes espèces chimiques et souvent

insuffisant pour retrouver les propriétés initiales de mouillage. Nous évitons ce problème en changeant régulièrement de substrat, pour lesquels les propriétés statiques (θ_a, θ_r) sont assez homogènes entre les échantillons, pourvu qu'ils soient utilisés depuis peu de temps.

III.3 Modes de Type I : Ligne de contact circulaire et fixe.

Lorsque l'on met en vibration le support à faible accélération (inférieure à 0.05 g), on observe des modes de déformation axisymétrique de la surface de la goutte dont la ligne reste accrochée par le substrat. Les modes principaux de vibration sont repérés par le nombre j , qui est égal à la moitié du nombre de noeuds de vibration le long du profil de la goutte (Fig. III.5).

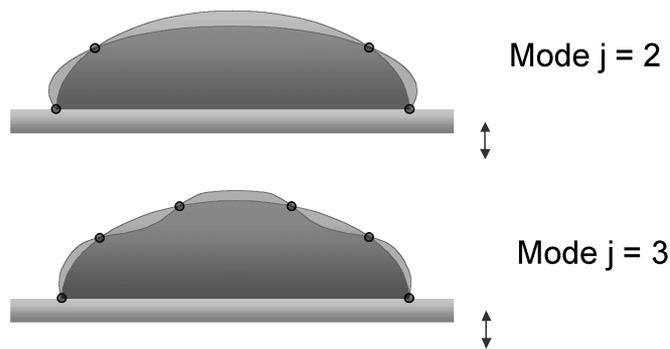


FIG. III.5 – Représentation schématique d'une goutte vue de profil avec, en gris clair, la forme d'équilibre et en gris foncé, la déformation pour un mode $j=2$ (4 noeuds) et $j=3$ (6 noeuds).

Chaque mode j présente une fréquence de résonance $f_j(V)$ dépendant du volume V de la goutte, nous avons donc mis en oeuvre une méthode pour mesurer l'amplitude de ces modes en fonction de la fréquence et du volume de la goutte.

III.3.1 Méthode expérimentale

La méthode choisie pour sonder ces modes utilise un faisceau Laser (Spectra-Physics, 10 mW) qui traverse la goutte par dessous à une distance r de son centre et qui est réfracté à l'interface eau/air. Lorsque la goutte est en vibration, la pente de l'interface varie de façon périodique, ainsi le faisceau est plus ou moins dévié et l'on mesure sa déflexion sur un second capteur de position (PSD) (III.6).

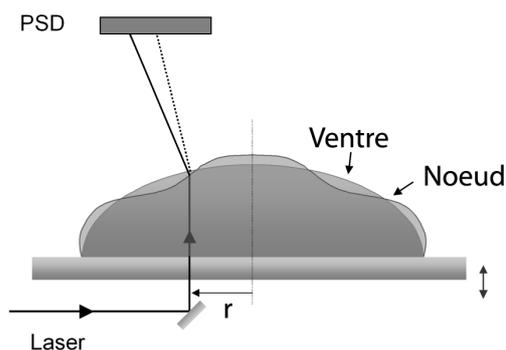


FIG. III.6 – Déflexion du faisceau Laser donnant la pente instantanée à la distance r du centre de la goutte.

La méthode de base consiste à envoyer un signal sinusoïdal et à incrémenter la fréquence pas à pas. On constate que la réponse est linéaire : la variation de pente est sinusoïdale à la fréquence d'excitation avec une amplitude proportionnelle à l'accélération. La méthode est assez longue pour obtenir, à V et r fixés, le spectre de vibration d'une goutte. On utilise, en fait, plutôt la carte d'entrée/sortie et un signal "bruit blanc". On acquiert pendant quelques dizaines de secondes la réponse, ainsi que le signal du déplacement du haut-parleur. On réalise les transformées de Fourier des deux signaux. Le spectre du déplacement est converti en spectre d'accélération par multiplication de chacune des composantes par ω^2 . Enfin, on divise composante par composante les deux spectres pour obtenir un spectre de réponse normalisé par l'accélération. Le temps requis pour avoir une bonne résolution est ainsi notablement réduit par rapport à l'utilisation d'un signal sinusoïdal. La précision est néanmoins inférieure, mais cela nous importe peu puisque nous nous intéressons surtout à la valeur des fréquences de résonance.

Une attention particulière doit être portée au dépôt des gouttes sur le substrat. En effet, du fait de l'hystérésis de l'angle de contact, l'angle de contact immédiatement après le dépôt peut avoir n'importe quelle valeur dans $[\theta_r, \theta_a]$. Or les fréquences dépendent à priori de l'angle de contact, on peut donc avoir des différences selon la façon de déposer la goutte. Notre procédure a consisté à vibrer à une assez grande amplitude la goutte pour mettre la ligne de contact en mouvement comme nous le verrons plus tard (III.4). Ensuite l'amplitude est lentement diminuée; dans le nouvel état de repos, la goutte présente un angle égal à l'angle d'équilibre θ_E . Nous avons vérifié notamment pour tous les échantillons utilisés que l'angle obtenu après vibrations vaut $\theta_E = \theta_m$ tel que $\cos\theta_m = \frac{\cos\theta_a + \cos\theta_r}{2}$. Cette dernière relation est bien vérifiée pour les substrats pas trop rugueux, comme mentionné dans [17].

III.3.2 Spectres

Nous avons mesuré les spectres pour des volumes V de gouttes de 0.1 mL à 3 mL. L'angle de contact étant fixé à θ_E , à chaque volume V correspond un rayon R qui varie ainsi de 4.2 mm à 17.6 mm soit toujours supérieur à la longueur capillaire $\kappa^{-1} = 2.7 \text{ mm}$. On obtient des spectres présentant différents pics correspondant aux différents modes $j = 2, j = 3, j = 4 \dots$. On vérifie que lorsque la distance r varie, la position fréquentielle des pics reste inchangée (Fig. III.9) mais que leur amplitude relative change. Pour $r = 0$, l'amplitude est nulle pour tous les modes car le sommet de la goutte est toujours un ventre de vibration du fait de la symétrie de révolution, et donc la variation de pente est nulle. L'amplitude est maximale pour chacun des modes au niveau de leurs noeuds de vibration et parmi eux pour le noeud le plus proche du centre de la goutte. Lorsqu'on augmente r , on se trouve pour certains modes près d'un noeud, pour d'autres plus près d'un ventre, ainsi les amplitudes relatives des modes varient constamment lorsqu'on déplace le faisceau vers l'extérieur de la goutte.

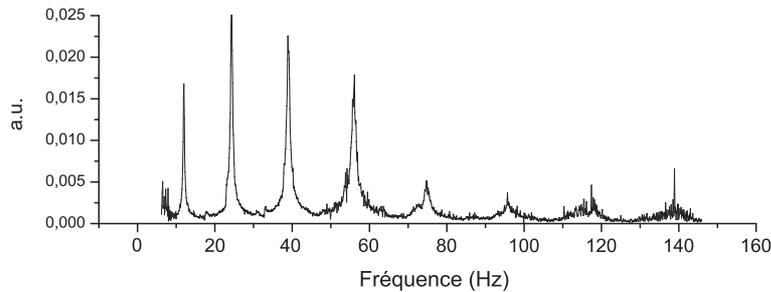


FIG. III.7 – Spectre normalisé pour $r = 1.5 \text{ mm}$, $R = 10.7 \text{ mm}$, $V = 1 \text{ mL}$.

Sur la Fig. III.7 on constate qu'à une distance de 1.5 mm (pour une goutte de rayon $R=10.7 \text{ mm}$) le premier pic (mode $j=2$) a une amplitude plus faible car le premier noeud se situe plus loin, les modes suivants ont une amplitude plus grande car on se trouve proche d'un de leurs noeuds.

On a étudié pour les modes 2 et 3 la variation de l'amplitude avec la distance r pour une goutte de 1 mL ($R=10,7 \text{ mm}$). r varie de 0 à 7 mm (Fig. III.8).

L'exploration des rayons plus grand était impossible avec le dispositif. De toute façon une autre limitation de la méthode apparaît. Lorsqu'on s'approche de la ligne de contact, la pente de l'interface devient de plus en plus forte : à la déflexion due à la variation de pente s'ajoute un déplacement du faisceau au niveau du PSD. Il est dû à la variation de hauteur du point d'intersection du faisceau avec l'interface. Ainsi, cette méthode par réfraction du faisceau devient approximative lorsqu'on s'approche de la ligne de contact. Pour vraiment bien étudier les variations de l'angle en tout point, il faudrait être capable d'arriver orthogonalement à l'interface en chacun des points que l'on sonde et utiliser une méthode par réflexion. Cette méthode est beaucoup plus difficile à mettre en place, notamment lorsque l'angle est grand et pour contrôler le rayon où l'on réalise la mesure.

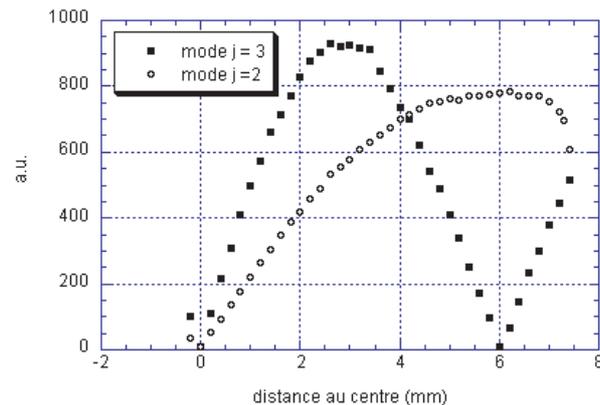


FIG. III.8 – Amplitude des modes 2 et 3 en fonction de la distance r au centre de la goutte. $R = 10.7 \text{ mm}$, $V = 1 \text{ mL}$.

Les spectres (toujours pour une goutte de rayon 10.7 mm , de volume 1 mL) ont été mesurés pour différentes valeurs de r et portés sur le même graphique (Fig. III.9). On observe que le maximum d'amplitude de chacun des modes j décroît lorsque j augmente.

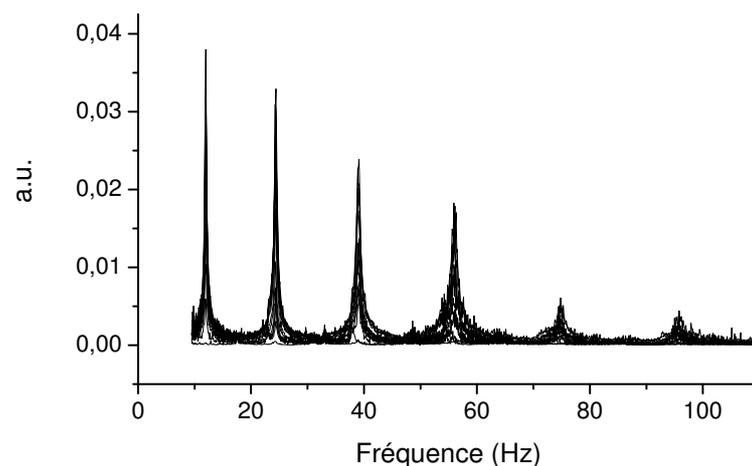


FIG. III.9 – Superposition de spectres mesurés pour 8 positions différentes du faisceau (r varie de 0 à 6.5 mm), $R = 10.7 \text{ mm}$, $V = 1 \text{ mL}$.

En répétant la mesure de ces spectres pour une valeur de r pour laquelle on peut mesurer simultanément les premiers modes (de $j=2$ à $j=6$), on a pu déterminer pour différents volumes de goutte (de 0.1 ml à 3 ml) leurs fréquences de résonance.

III.3.3 Fréquences de résonances

Nous avons tracé la valeur des fréquences f_j en fonction du volume des gouttes (Fig. III.10, diagramme log-log). Les droites représentent un ajustement en puissance pour chacun des modes, l'exposant trouvé augmente de 0.45 à 0.53 lorsque j varie de 2 à 6 . En régime de

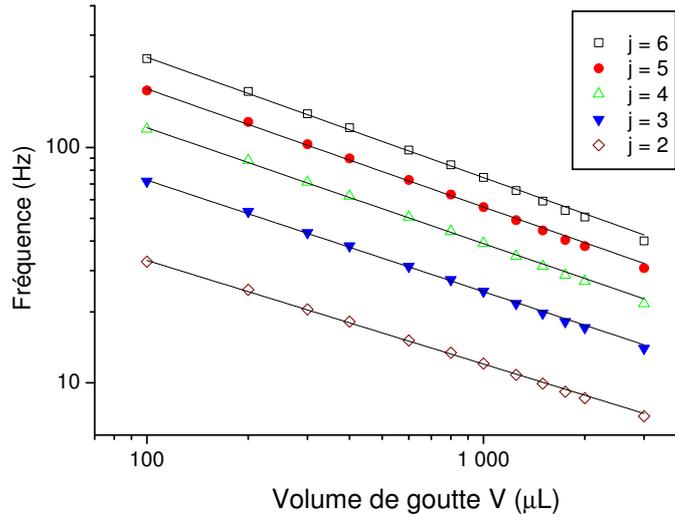


FIG. III.10 – Représentation en diagramme Log-Log des fréquences de résonance en fonction du volume V . Les variations sont bien décrites par une loi de puissance (ligne droites) avec un exposant augmentant de 0.45 pour $j = 2$ à 0.53 pour $j = 6$.

gravité comme en régime de capillarité, on montre que $f \propto V^{0.5}$, mais avec des coefficients numériques différents. Dans notre cas, on se trouve souvent entre les deux régimes, la relation fréquence-volume est alors plus complexe.

III.3.4 Interprétation

Les différents modes observés avec une ligne de contact fixe sont caractérisés par des fluctuations axisymétriques de l'interface eau/air. Ces modes sont en fait des ondes de surface dans une géométrie compliquée puisque la surface d'équilibre est le profil d'une goutte aplatie dont on ne connaît pas l'expression analytique exacte pour des angles de contact quelconques. Un cas proche est celui du récipient cylindrique vibré de profondeur H pour lequel on observe des ondes de capillarité-gravité (expérience de Faraday). Ici ce sont des ondes vraiment tridimensionnelles sachant que la normale à la surface a une direction variable et que la profondeur du liquide varie aussi. Basaran et al.[11] puis Wilkes et al. [12] ont traité ce problème pour une goutte accrochée aux bords d'un cylindre en utilisant des méthodes numériques complexes, il n'y a pas de relation disponible pour calculer les fréquences de résonance. Une solution analytique exacte peut être utilisée pour des gouttes de rayon inférieur à la longueur capillaire (régime de capillarité) ([6]). Celle-ci demande néanmoins des calculs matriciels complexes tabulés dans [9] uniquement pour des angles de contact supérieurs à 100° .

Nous nous proposons d'utiliser un modèle d'onde stationnaire avec la relation de dispersion des ondes de capillarité-gravité qui permettent d'avoir une relation simple donnant les

fréquences de résonance des modes en fonction des caractéristiques de la goutte.

Pour simplifier le problème, on considère des ondes se propageant à une dimension, décrites par la relation de dispersion $\omega(q)$ des ondes de capillarité-gravité. On va donc calculer un vecteur d'onde effectif $q_j(V)$ pour chaque mode et chaque taille de goutte et calculer ainsi les fréquences naturelles des modes.

Pour calculer les longueurs d'onde effectives $\lambda_j = \frac{2\pi}{q_j}$, on écrit qu'elles correspondent à la distance moyenne entre deux noeuds consécutifs le long du profil de la goutte. On note p la longueur de l'arc de méridienne (intersection de l'interface et d'un plan vertical passant par le centre de la goutte) du centre de la goutte à la ligne de contact (voir Fig. III.11). On trouve la relation : $(j - 1/2)\lambda_j = 2p$. Donc :

$$q_j \equiv \frac{2\pi}{\lambda_j} = \frac{\pi(j - 1/2)}{p} \quad (\text{III.2})$$

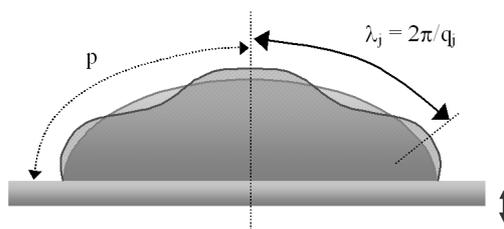


FIG. III.11 – Longueur d'onde effective pour le mode $j=3$.

Pour une goutte à l'équilibre, p dépend du volume de la goutte V et de l'angle de contact θ_E (85° pour notre système). En régime de capillarité, l'expression analytique de p peut se calculer, mais dans le cas général, il n'y en a pas. Nous avons donc calculé numériquement les profils exacts de goutte et déduit les valeurs de p . Nous avons pour cela utilisé la même méthode qu'au chapitre précédent pour vérifier les effets de la tension de ligne pour les grandes flaques. Cette fois pour chaque volume de goutte qui nous intéresse, pour un angle donné (85°), on calcule les valeurs de p (Voir pour plus de détails l'Annexe B). On en déduit finalement les valeurs des vecteurs d'onde effectifs q_j .

Le nombre de Reynolds se calcule avec la vitesse de phase des ondes et leur longueur d'onde : $Re = \frac{c_g \lambda}{\nu}$ (ν est la viscosité cinématique). On a tracé Fig. III.12 pour des ondes de capillarité-gravité pour un bain d'eau pure de profondeur $h = 3\text{ mm}$ le Logarithme décimal du nombre de Reynolds ainsi calculé en fonction du vecteur d'onde.

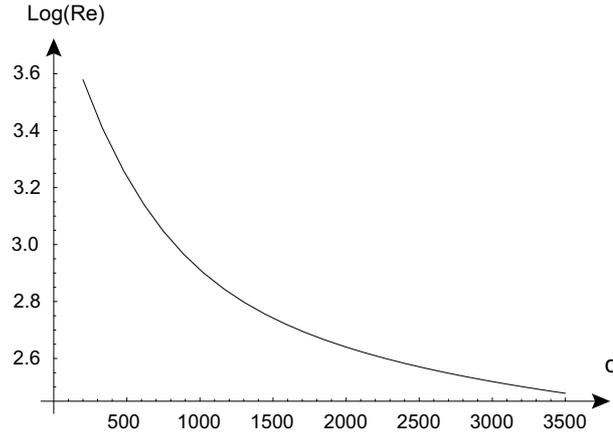


FIG. III.12 – $\text{Log}(\text{Re})$ en fonction du vecteur d'onde pour un bain d'eau pure de profondeur 3 mm.

Expérimentalement nous avons exploré le domaine $q = [200, 3500] \text{ m}^{-1}$, on trouve donc $300 < R_e < 4000$: les effets inertiels sont dominants devant les effets visqueux.

Les modes observés sont découplés et présentent un comportement linéaire du fait de la faible amplitude des oscillations. On a ainsi un phénomène classique de résonance avec des effets non linéaires et dissipatifs négligeables, qui conduit à des fréquences forcées proches des fréquences naturelles des modes que nous allons maintenant calculer.

Pour des ondes de capillarité-gravité sur un bain liquide de profondeur h et de vecteur d'onde q , nous avons ([23], [24]) :

$$\omega^2 = \left(gq + \frac{\gamma}{\rho} q^3 \right) \tanh(qh) \quad (\text{III.3})$$

Nous utilisons pour les valeurs de q la relation approximative donnant la valeur $q_j(V)$ pour chaque mode (Eq. III.2).

Pour la profondeur h , nous avons considéré la hauteur moyenne h_M de la goutte définie par ¹ :

$$h_M = \frac{V}{\pi R^2} \quad (\text{III.4})$$

Notre modèle est donc approximatif pour le calcul des vecteurs d'onde effectifs, qui ne

¹On peut écrire de façon exacte, pour des angles de contact inférieurs à 90° :

$$h_M = \frac{\int h(r) 2\pi r dr}{\int 2\pi r dr} = \frac{V}{\pi R^2}$$

tiennent pas compte de la géométrie cylindrique, le modèle est meilleur pour les grandes valeurs de j . Il est aussi approximatif quant à l'évaluation de l'épaisseur h , car lorsqu'on s'approche de la ligne de contact, le profil descend brusquement, la hauteur varie rapidement vers 0, une description un peu plus poussée serait nécessaire.

On obtient ainsi :

$$\omega_j^2 = \left(gq_j + \frac{\gamma}{\rho} q_j^3 \right) \tanh \left(q_j \frac{V}{\pi R^2} \right) \quad (\text{III.5})$$

On a comparé dans le tableau III.2 les résultats expérimentaux et les valeurs calculées avec notre modèle 1D, pour deux volumes différents de goutte. On a pris $\gamma = 72.8 \text{ mN.m}^{-1}$, $\rho = 998 \text{ kg.m}^{-3}$ et $g = 9.81 \text{ m.s}^{-2}$. On note un bon accord, à part pour le mode $j = 1$, pour lequel notre modèle devient trop approximatif.

TAB. III.2 – Comparaison des fréquences de résonances (en Hz) mesurées et calculées ($R = 4.6 \text{ mm}$ et $R = 14.6 \text{ mm}$ (0.1 et 2 mL)).

Numéro du mode j	R=4.6 mm		R=14.6 mm	
	expérience	modèle	expérience	modèle
2	32.7	35.5	8.6	9.1
3	71.8	75.2	17.2	17.3
4	119.8	123.5	27.0	27.1
5	174.7	178.9	38.1	38.1
6	238.6	240.9	50.7	50.4

On a tracé en diagramme Log-Log les fréquences de résonances en fonction des vecteurs d'onde q (Figure III.13). On montre sur le graphe les pentes $3/2$ et 1 correspondant respectivement aux régimes de capillarité et de gravité. Les courbes pleines représentent les valeurs calculées avec notre modèle.

Toutes les fréquences "s'alignent" sur une courbe maîtresse : cela signifie que le modèle simple pour les vecteurs d'onde est bon. L'accord est excellent pour les grandes valeurs de q : c'est normal puisque i) l'effet de la hauteur est négligeable ($qh \gg 1$), donc une mauvaise évaluation de sa valeur ne change pas grand chose ; ii) pour les grandes valeurs de j , la différence entre géométrie cylindrique et linéaire s'estompe, et la faible valeur de la longueur d'onde comparée aux tailles caractéristiques de la goutte (κ^{-1} , R) confère vraiment un caractère unidimensionnel aux ondes.

Un point important est que la réponse est harmonique (ou synchrone), c'est-à-dire que la fréquence d'oscillation de la goutte correspond à la fréquence d'excitation. Ce n'est pas la cas

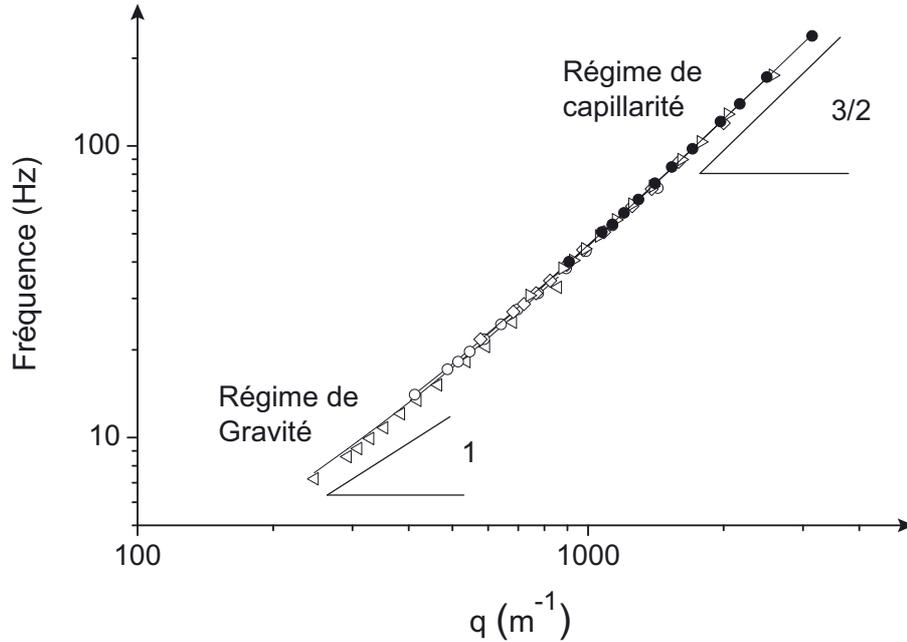


FIG. III.13 – Fréquences de résonance en fonction du vecteur d’onde. (\triangleleft) $j=2$, (\circ) $j=3$, (\diamond) $j=4$, (\triangleright) $j=5$ et (\bullet) $j=6$. Lignes pleines : modèle. $R=4.6 \rightarrow 17.6$ mm, $V = 0.1 \rightarrow 3$ mL.

dans l’expérience de Faraday. Comme nous l’avons déjà mentionné, cette expérience consiste à observer les ondes générées à la surface d’un grand bain rempli de liquide soumis à des vibrations verticales. On observe des ondes de surfaces sous harmoniques, dont la fréquence est égale à la moitié de la fréquence d’excitation. C’est un phénomène de volume dont le mécanisme ne dépend pas des conditions aux bords. Les ondes stationnaires observées dans notre expérience peuvent être vues comme la superposition d’ondes émises par le ménisque vers le centre. A la résonance, ces ondes interfèrent constructivement, la condition aux bords y est donc déterminante, contrairement à l’expérience de Faraday, et conduit à une réponse harmonique.

III.4 Modes de Type II : Ligne de contact circulaire et mobile.

A faible amplitude d’excitation, nous avons vu que la ligne de contact reste accrochée par le substrat. Celle-ci est un noeud de vibration pour ces modes de Type I, donc l’angle de contact instantané varie de façon sinusoïdale avec le temps à la fréquence d’excitation. A des amplitudes d’excitation suffisantes, les valeurs extrêmes de l’angle de contact peuvent sortir de l’intervalle $[\theta_r, \theta_a]$. Cela signifie que la force au niveau de la ligne de contact peut devenir supérieure à l’hystérésis de l’angle de contact et ainsi être suffisante pour mettre la ligne en mouvement. Celle-ci présente alors un mouvement périodique caractéristique des modes de

Type II.

Sur un substrat parfait, sans hystérésis ni dissipation visqueuse, on observerait des modes de Type II purs, avec une condition d'angle de contact constant : $\theta = \theta_E$ comme dans l'étude numérique de Bixler et Benner [14]. Cette même condition s'applique dans le cas général du mouvement inertiel d'une ligne de contact [25]. Avec cette condition, le nombre de longueurs d'onde le long de l'arc de méridienne serait diminué de 1/2 (voir Fig. III.14). Pour les modes de Type I, nous avons utilisé le nombre j , nous caractériserons ces modes avec le nombre k , qui est la moitié du nombre de nœuds le long de la goutte (Fig. III.14). On a donc la nouvelle relation pour les modes purs : $k\lambda_k = 2p$ au lieu de $(j - 1/2)\lambda_j = 2p$.

Dans notre cas (substrat non parfait présentant un hystérésis non nul), les oscillations du rayon de la goutte sont couplées à des oscillations de l'angle de contact. On ne peut pas restreindre le mouvement à une simple condition d'angle de contact constant. Nous conserverons le nombre k pour caractériser toutes les oscillations pour lesquelles la ligne a un mouvement bien que ce ne soient pas des modes purs.

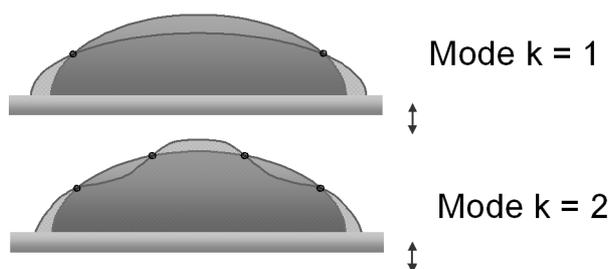


FIG. III.14 – Modes $k=1$ (2 noeuds) et $k=2$ (4 noeuds).

III.4.1 Méthodes expérimentales

Pour avoir une bonne compréhension des phénomènes, nous avons utilisé différentes méthodes complémentaires, que nous présentons maintenant avec leurs inconvénients et leurs avantages. Un des problèmes rencontrés a été la différence à faire entre la ligne de contact réelle et la position du rayon maximal de la goutte en projection verticale, pour des angles supérieurs à 90° .

1) La première méthode utilise une ligne Laser et donne une valeur locale et instantanée du rayon de la goutte $R(t)$.

La ligne Laser est projetée verticalement sur la goutte selon une direction radiale, une partie débordant sur le substrat nu (Fig. III.16). Les rayons arrivant sur le substrat sont réfléchis par un miroir placé en-dessous puis par une lame semi transparente et sont collectés par une photodiode. Les rayons arrivant sur la goutte, près de la ligne de contact sont réfléchis

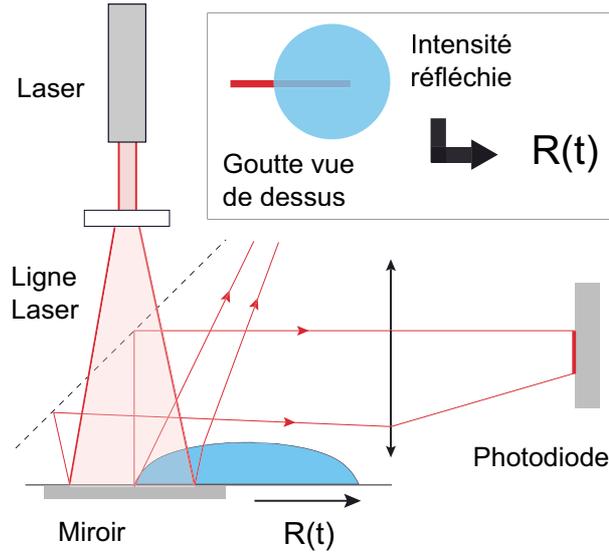


FIG. III.15 – Méthode (1) : Mesure des variations locales du rayon avec une ligne laser.

ou réfractés et repartent avec un angle assez grand et ne sont pas collectés par la photodiode.

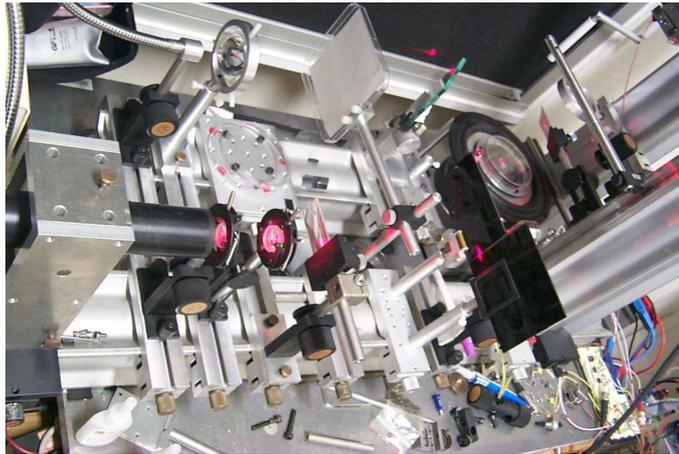


FIG. III.16 – Montage expérimental. En bas à gauche : Laser suivis de lentilles circulaires et cylindriques formant la ligne Laser. Au -dessus du Laser : fibre optique d'éclairage. En haut à droite : Haut-Parleur et substrat polystyrène.

La ligne laser est fabriquée à l'aide d'une lentille divergente de très petite distance focale suivie d'une lentille cylindrique. Le faisceau est donc très concentré dans la direction orthoradiale au niveau de la goutte avant de s'élargir et d'être reconcentré par une lentille convergente vers la photodiode. Il est au contraire très élargi dans la direction radiale. Ainsi la partie utile explorée par la goutte (2 mm maximum) reste très faible devant la longueur de la ligne laser (plusieurs dizaine de mm), cela permet d'avoir une ligne laser à intensité uniforme pour la zone qui nous intéresse. *Quantitativement, on peut s'en convaincre facilement sachant que l'intensité du faisceau Laser décroît dans la direction de la ligne Laser Ox selon $I(x)/I(0) = e^{-(x/a)^2}$ avec $a \sim 20$ mm. Ainsi au niveau du substrat en prenant $a = 20$ mm,*

et $x = 1 \text{ mm}$ on trouve que $(I(0) - I(x))/I(0) \simeq 0.25\%$. L'intensité est bien uniforme dans la zone explorée par la goutte (de l'ordre du mm) et l'intensité mesurée par la photodiode est proportionnelle à la position de la ligne de contact.

On peut donc écrire, en notant $I(t)$ l'intensité mesurée par la photodiode, avec I_{eq} et K deux constantes :

$$I(t) - I_{eq} = \frac{1}{K}(R(t) - R_{eq}) \quad \text{et} \quad (R(t) - R_{eq}) = K(I(t) - I_{eq})$$

Comme nous l'avons mentionné, si l'angle de contact est supérieur à 90° , on mesure le rayon maximal de la goutte, c'est-à-dire le rayon de la projection verticale de la goutte et non la position de la ligne de contact. Cet effet n'est pas très important pour les valeurs d'angle explorées avec le substrat utilisé, en effet pour un angle de 105° , la différence est de 1%. Or l'angle d'avancée étant de 92° , ce n'est qu'à grande amplitude que nous observerons des angles supérieurs à 105° . Cet effet peut-être très gênant pour des substrats présentant des angles plus grands, notamment près de la transition entre les deux types de modes. En effet une grande variation de l'angle de contact pourrait être vue comme une variation du rayon alors que la ligne est complètement fixe, ainsi la valeur du seuil à la transition ne serait pas bien déterminée.

Cette méthode présente dans le cas général différents inconvénients (méthode locale, uniformité du laser et angles inférieurs à 100° nécessaires) auxquels il faut prêter attention. Néanmoins son grand avantage est qu'elle donne directement (temps réel) les variations du rayon avec une résolution temporelle limitée uniquement par la carte d'acquisition, soit quelques dizaines de kHz. De plus on peut incrémenter fréquence et accélération de façon automatisée et réaliser les mesures en utilisant les fonctions d'entrées/sorties de la carte.

2) La deuxième méthode utilise une caméra rapide (Photron Fastcam 1000) que nous avons utilisée tout au long de la thèse. Sa résolution maximale est de 512×480 Pixels, pour laquelle on peut acquérir jusqu'à 250 images/secondes, et 1000 images/secondes pour une résolution deux fois moindre (256×240 pixels). Elle est utilisée en vue de dessus, on mesure les coordonnées du contour de la ligne de contact pour chaque image, on en déduit notamment le rayon moyen de la goutte en fonction du temps. On a une information globale, plus précise et moins dépendante des irrégularités du substrat le long du contour de la goutte que la méthode locale. Comme pour la méthode de la ligne Laser, on mesure le rayon de la projection verticale de la goutte. Cette méthode de visualisation sera la seule utilisée dans le chapitre suivant pour étudier les modes non-axisymétriques. On présentera à ce moment-là le traitement d'image plus en détail.

3) La troisième méthode utilise la caméra rapide en vue de côté, ainsi qu'un miroir incliné, fixé sur la partie mobile du haut-parleur, la caméra étant selon l'axe vertical, l'image du substrat est fixe dans le champ de vision. Le miroir fait un angle de 46.5° avec l'horizontale, ainsi l'axe de vision est incliné de 3° au dessus de l'horizontale. On voit le profil de la goutte

et son image par réflexion sur le substrat (Fig. III.17). Pour avoir une meilleure résolution spatiale, on réduit le champ de vision à une petite partie de la goutte près de la ligne de contact.

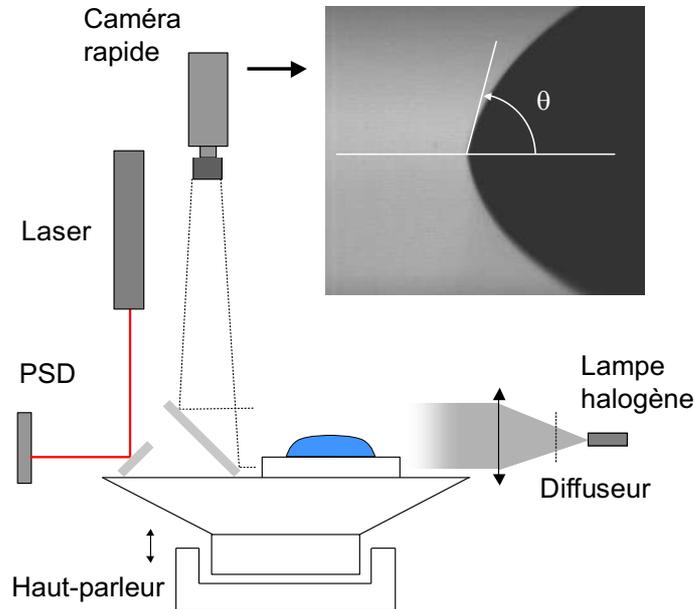


FIG. III.17 – Dispositif expérimental utilisant une visualisation de côté durant les vibrations avec la caméra rapide.

Par analyse d'image avec Labview et Imaq Vision, on détermine les coordonnées du profil de la goutte près de la ligne de contact. Le programme détermine la ligne de base par symétrie, la position de la ligne de contact et réalise un fit polynomial du profil (en général d'ordre 3). On en déduit la valeur de l'angle de contact pour chaque image. On donne à l'Annexe C un exemple illustré de cette méthode. Même pour des angles de contact plus grand que 90° , il n'y a pas d'effet de projection verticale. L'avantage de cette méthode est de pouvoir mesurer simultanément l'angle de contact et la position exacte de la ligne. La résolution temporelle (1 kHz) est suffisante, le plus gros inconvénient est le temps nécessaire pour faire une mesure (fréquence et accélération données) puisque la caméra n'enregistre sur sa mémoire vive qu'un film de quelques secondes à la fois et qu'il faut le transférer à l'ordinateur à chaque fois, l'automatisation est de plus beaucoup plus difficile.

Du fait de l'hystérésis de l'angle de contact et des grandes amplitudes d'excitation, les phénomènes étudiés sont non linéaires. Par conséquent, nous n'avons pas utilisé d'excitation en bruit blanc et de méthode de Transformée de Fourier temporelle. On a fait varier la fréquence $f = \omega/2\pi$ et l'accélération a_0 d'un pur signal sinusoïdal. Deux types de mesures pour explorer l'espace (f, a_0) ont été réalisées :

i) Fréquence constante pour obtenir des diagrammes d'amplitude montrant la transition entre modes de Type I et de Type II lorsque l'accélération augmente. Nous avons utilisé pour

cela la caméra rapide de côté (méthode 3).

ii) Accélération constante, pour obtenir des spectres de réponse fréquentielle. Nous avons utilisé pour cela la méthode de ligne Laser (méthode 1) de façon automatisée. La méthode 2 (caméra vue de dessus) permet de contrôler que la goutte reste circulaire durant les oscillations.

III.4.2 Courbes Position - Angle

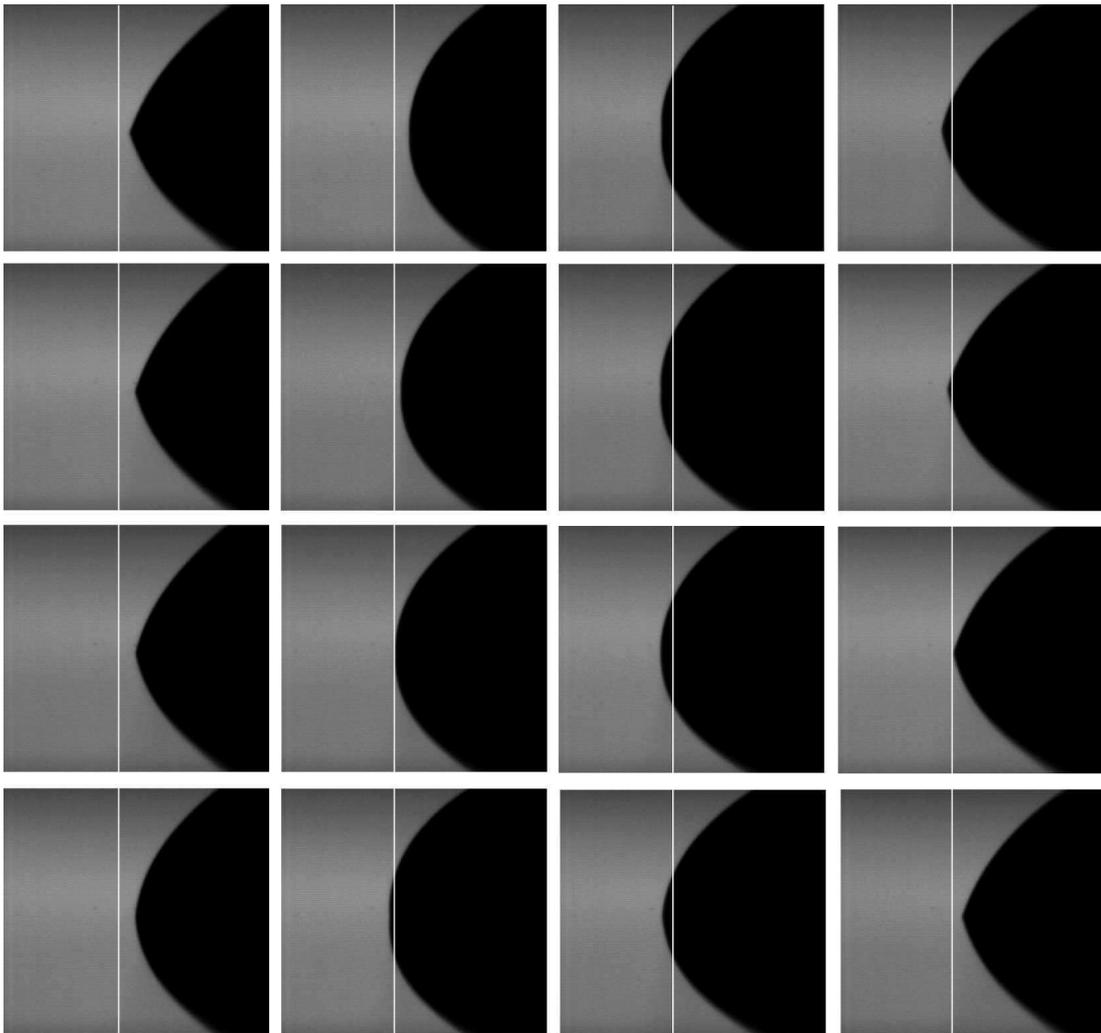


FIG. III.18 – Images successives (de haut en bas et de gauche à droite), toutes les 7 ms. Vue de côté du bord d'une goutte d'eau ($R=10.7$ mm) sur du Polystyrène. $a=0.228g$, $f=9$ Hz, soit une période au total. Ces images ont servi à déterminer les courbes pour l'angle et la position de la ligne à la Fig. III.19 pour $a = 0.228g$. Pour les quatre images de gauche, la ligne est quasiment immobile et reculée, pour les quatre suivantes, la ligne avance, ensuite pour les quatre d'après, la ligne est fixe et sur les quatre dernière elle recule. La ligne blanche représente la position moyenne de la ligne de contact.

On a principalement étudié le premier mode (transition de $j=2$ à $k=1$) du fait de sa plus grande amplitude. Il n'y a pas d'autres différences particulières pour les modes plus élevés.

On a mesuré les variations de l'angle de contact et de la position de la ligne de contact avec la méthode 3) (vue de côté). La fréquence est constante et l'accélération est augmentée au fur et à mesure. On présente une succession d'images obtenues pour de l'eau sur du Polystyrène, avec $R=10.7$ mm, $f=9$ Hz, $a=0.228$ g III.18. C'est à partir de telles images que l'on a obtenu les courbes de la Fig. III.19.

A faible amplitude, la ligne de contact est complètement accrochée par le substrat. On observe clairement que lorsque la variation de l'angle de contact dépasse l'hystérésis, la ligne de contact commence à bouger (la transition est proche de la troisième courbe, de la Fig. III.19 pour 0.143 g).

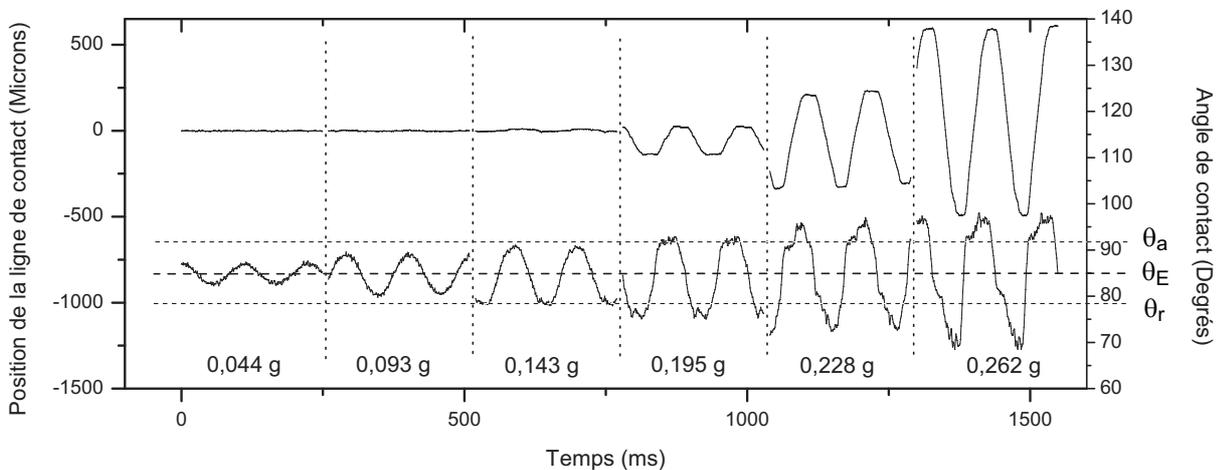


FIG. III.19 – Transition entre mode de Type I "stick" et de Type II saccadés "stick-slip". En bas : angle de contact (degrés) en fonction du temps, on a représenté les valeurs mesurées de θ_E , θ_a et θ_r . En haut : position de la ligne de contact (microns) autour de la position initiale avant vibration. Les six courbes pour différentes amplitudes d'accélération sont mises côte à côte pour comparaison. $f = 9$ Hz, $R = 10.7$ mm, $V = 1$ mL.

A excitation plus grande, l'amplitude des oscillations du rayon augmente rapidement, l'amplitude des variations de l'angle de contact continue d'augmenter et ne sont plus sinusoïdales. En regardant de plus près les variations du rayon, on voit clairement un comportement de "Stick-Slip" : La ligne est accrochée durant un moment (Stick), puis avance (Slip), s'arrête (Stick), recule (Slip) et le cycle recommence. Plus grande est l'amplitude d'excitation, plus court est le temps d'arrêt de la ligne. On explique ce mouvement particulier comme un effet simple de l'hystérésis de l'angle de contact qui agit comme une force de frottement solide sur la ligne de contact (voir III.4.5).

A très grande excitation (pour des amplitudes que nous explorerons dans le Chapitre

suivant), la ligne a un mouvement quasiment sinusoïdal.

Les oscillations du rayon se font autour de la valeur d'équilibre R_{eq} . Si elles sont d'amplitude faible, on peut déterminer R_{eq} en prenant la valeur moyenne des positions de la ligne sur plusieurs périodes. A cette valeur d'équilibre, pour un volume donné de la goutte, correspond une valeur de l'angle de contact qui est l'angle d'équilibre θ_E . Ainsi en rediminuant l'amplitude des oscillations graduellement, le rayon oscille toujours autour de R_{eq} , et l'on peut alors le mesurer précisément. En utilisant la méthode de mesure de l'angle de contact (voir Annexe C), qui fait correspondre à tout volume et rayon de goutte son angle de contact, on a pu mesurer l'angle d'équilibre pendant les vibrations, ou après arrêt des vibrations, et vérifier la relation $\cos\theta_E = \frac{1}{2}(\cos\theta_r + \cos\theta_a)$ dont on a discuté précédemment (III.3.1). Si les vibrations sont arrêtées brutalement, le rayon de la goutte n'est pas forcément le rayon d'équilibre, et l'angle ainsi déterminé peut être assez différent de θ_E .

III.4.3 Courbes de seuils

On a tracé pour différentes fréquences (autour du mode $k = 1$), les courbes de l'amplitude crête à crête des oscillations du rayon ΔR en fonction de l'accélération (III.20). Lorsque $\Delta R = 0$, on a uniquement le mode de Type I. Au-delà de la transition, $\Delta R > 0$, on observe les modes de Type II.

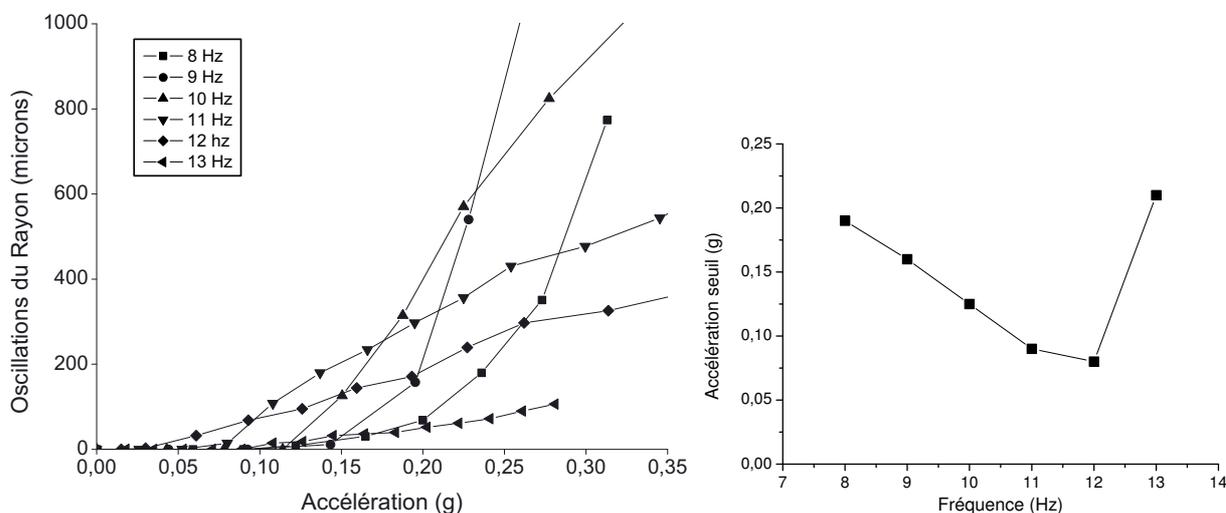


FIG. III.20 – A gauche : amplitude des oscillations du rayon en fonction de l'accélération pour différentes fréquences. A droite : seuils en accélération de mise en mouvement de la ligne déduit de la courbe précédente (critère $\Delta R/R = 0.002$, $R = 10.7 \text{ mm}$, $V = 1 \text{ mL}$).

On note que la forme des courbes dépend fortement de la fréquence. La fréquence de résonance des modes accrochés pour une goutte de 1 mL ($R=10.7 \text{ mm}$) est de 12 Hz. i) Près de cette fréquence et pour de faibles accélérations, l'amplitude des modes de Type II est

d'abord nulle, puis en augmentant l'accélération, on observe un seuil avec une rupture de pente et l'apparition des modes de Type II dont l'amplitude augmente graduellement. Cela correspond à la courbe à 12 Hz. ii) A des fréquences plus basses, la transition est moins abrupte et l'augmentation de l'amplitude progressive, la pente ne cesse d'augmenter avec l'accélération dans le domaine étudié. Le seuil en accélération augmente lorsqu'on s'éloigne de la résonance du mode de Type I. Néanmoins, au delà d'une certaine excitation, l'amplitude du mode de Type II devient supérieure à celle que l'on mesure pour une fréquence plus grande.

III.4.4 Spectres

Au lieu de mesurer ΔR en fonction de l'accélération à fréquence constante, nous avons aussi réalisé des mesures à accélération constante pour obtenir des spectres de réponse temporelle comme pour les modes de Type I (Fig. III.9).

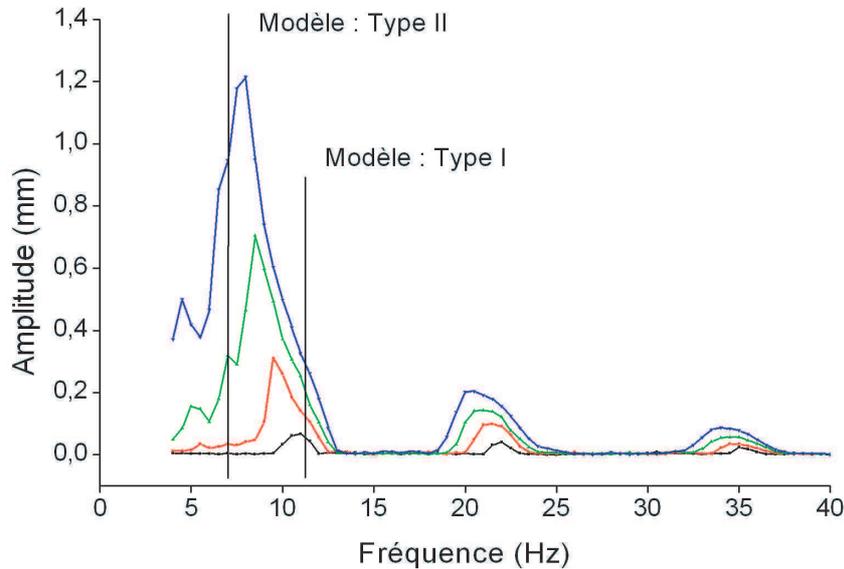


FIG. III.21 – Amplitude crête-à-crête de l'oscillation du rayon en mm pour une goutte de rayon $R = 11.8$ mm ($V = 1.25$ mL) à accélération constante (0.1 g, 0.2 g, 0.3 g, 0.4 g). Les deux lignes verticales représentent les valeurs calculées avec notre modèle d'ondes stationnaires pour le Type I (11.35 Hz) et le Type II pur (6.95 Hz).

On observe sur la Fig. III.21 qu'à faible amplitude (courbe la plus basse à 0.1 g) le rayon de la ligne de contact ne varie que très près des fréquences de résonance des modes de Type I. En dehors de ces zones de résonances, l'amplitude des oscillations du rayon est strictement nulle : la ligne est accrochée par le substrat. A amplitude plus grande, les maxima des pics augmentent, ainsi que leur largeur. L'amplitude de la réponse décroît avec le mode k comme pour les modes de Type I (plus rapidement encore). Ainsi le mode fondamental $k = 1$ est vraiment dominant par rapport aux autres modes.

On note clairement que les fréquences correspondant aux maxima des pics sont déplacées vers les faibles valeurs. Cet effet classique que l'on observe pour des oscillateurs non linéaires forcés peut ici s'expliquer en utilisant de nouveau le modèle des ondes avec une condition aux bords différente. Nous verrons cela plus en détail dans la section suivante. On a indiqué les fréquences théoriques ainsi calculées pour les modes I et II purs sur la figure III.21. On voit que lorsque l'amplitude augmente les modes complexes observés (présentant une condition aux bords mixte) se rapprochent des modes de Type II purs.

On présente en complément les mêmes spectres pour différentes tailles de gouttes. On vérifie que lorsque la taille des gouttes augmente, les fréquences de résonance diminuent. Si l'on regarde l'amplitude maximale des pics, celle-ci augmente avec la taille de la goutte. Les spectres présentés précédemment pour $R = 11.8 \text{ mm}$ ont une amplitude un peu plus élevée que ceux à $R = 12.8 \text{ mm}$. De telles disparités apparaissent ainsi entre les échantillons. Il faut aussi noter que l'utilisation d'une méthode locale au niveau de la ligne de contact est dépendante des effets des défauts ponctuels qui peuvent accrocher la ligne et réduire ses mouvements. On pourrait y remédier en moyennant sur tout le contour en utilisant la caméra rapide vue de dessus. Cependant la durée d'une telle expérience avec tous les points à prendre (un par film) est très longue.

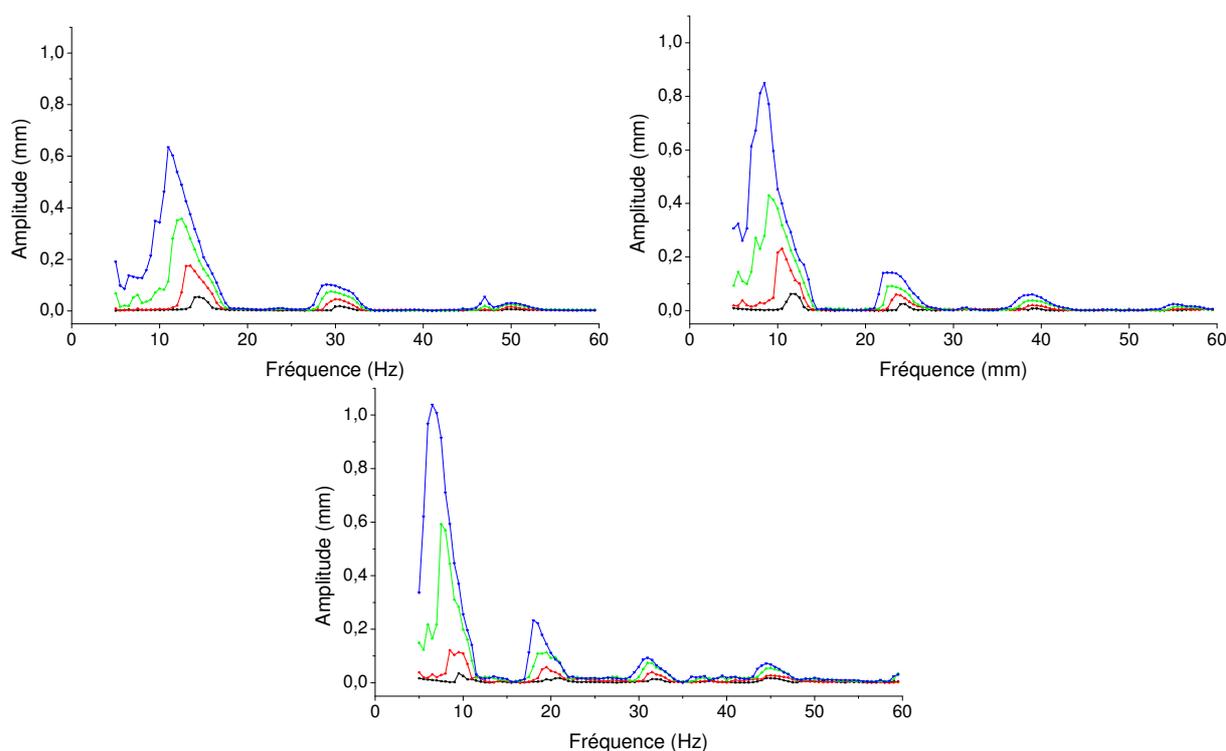


FIG. III.22 – Amplitude crête-à-crête de l'oscillation du rayon en mm à accélération constante (0.1 g, 0.2 g, 0.3 g, 0.4 g) pour $R=8.6 \text{ mm}$ (0.6 mL) en haut à gauche, $R=10.7 \text{ mm}$ (1 mL) en haut à droite, $R=12.8 \text{ mm}$ (1.5 mL) en bas.

III.4.5 Interprétation : Transition modes I - modes II

Nous avons étudié la dynamique de gouttes déposées soumises à des vibrations verticales, d'amplitudes plus élevées qu'à la section précédente et pour lesquelles la ligne de contact est mobile. Dans le domaine de fréquence et d'accélération étudié, les mouvements sont axisymétriques. Nous avons particulièrement observé la transition entre les modes "ligne accrochée" et les modes "ligne mobile". Cette transition est directement due au phénomène d'hystérésis de l'angle de contact. A faible amplitude l'angle de contact oscille autour de sa valeur d'équilibre : $\theta = \theta_E + \frac{\Delta\theta}{2}\cos(\omega t)$, tout en restant compris dans l'intervalle $[\theta_r, \theta_a]$: $\Delta\theta < (\theta_a - \theta_r)$. Lorsque $\Delta\theta$ devient plus grand que l'hystérésis de l'angle de contact : $\Delta\theta > (\theta_a - \theta_r)$, la ligne se met en mouvement. C'est pour cette raison que pour chaque taille de goutte et chaque fréquence d'excitation il y a une valeur particulière de l'accélération, a_c , au-dessus de laquelle le rayon de la goutte se met à varier. Pour les fréquences situées loin des zones de résonance, le seuil a_c peut s'avérer être très élevé : ainsi, à amplitude modérée, entre chaque zone de résonance on a observé sur les spectres des zones où la ligne est complètement fixée.

La variation du rayon est périodique (à la fréquence d'excitation) mais non sinusoïdale, et assez complexe. On observe un phénomène de stick-slip : la ligne est fixe pendant une partie du temps et mobile pendant une autre. De plus l'angle de contact oscille en même temps que la ligne. On n'a donc pas un mode de Type II pur (angle de contact constant égal à θ_E). Cela est principalement dû à l'hystérésis de l'angle de contact.

III.4.6 Interprétation : Déplacement des fréquences de résonance

Pour interpréter le déplacement vers les basses fréquences des fréquences de résonance on utilise le même modèle d'ondes stationnaires et de pseudo vecteurs d'onde que pour les modes de Type I avec une condition aux bords différente. L'angle de contact est supposé fixé à θ_E (voir Fig. III.14), ce qui conduit à un nouvel ensemble de valeurs. On a pour les longueurs d'onde : $k\lambda_k = 2p$, et les vecteurs d'onde :

$$q_k = \frac{\pi k}{p} \quad (\text{III.6})$$

Au mode j correspond le mode $k = j - 1$, on a donc : $q_k = \left(\frac{2k}{2k+1}\right) q_{j=k+1}$. On calcule les fréquences de résonance de la même façon que précédemment avec ces nouveaux vecteurs d'onde (cf. Eq. III.5) :

$$\omega_k^2 = \left(gq_k + \frac{\gamma}{\rho}q_k^3\right) \tanh\left(q_k \frac{V}{\pi R^2}\right) \quad (\text{III.7})$$

Expérimentalement on trouve que le déplacement vers les basses fréquences est progressif lorsque l'amplitude augmente, car les modes ont un caractère Type II de plus en plus prononcé, mais l'angle de contact voit aussi l'amplitude de ses oscillations augmenter. La condition au bord est donc mixte et conduit à des fréquences intermédiaires. Plus l'amplitude augmente, plus on se rapproche de la condition de mode de Type II purs, les valeurs observées dans le domaine d'amplitude exploré restent supérieures aux valeurs calculées, comme on le constate sur la Fig. III.21.

III.4.7 Interprétation : Oscillateur avec frottement solide ($\theta = \theta_E$)

Pour expliquer certaines caractéristiques du mouvement de la ligne de contact, nous allons utiliser un autre modèle, fondé sur une analyse énergétique pour obtenir une équation d'oscillateur forcé vérifiée par le rayon en fonction du temps. La particularité de cet oscillateur est qu'il contient un terme de frottement solide du à l'hystérésis de l'angle de contact.

Analogie avec le frottement solide

On a une analogie entre les phénomènes de frottement solide régis par la loi de Coulomb et les effets de l'hystérésis de l'angle de contact. Considérons un solide A en contact avec un autre solide support B (Fig. III.23).

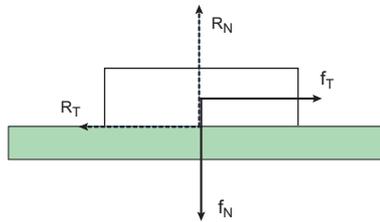


FIG. III.23 – Contact entre deux solides : frottement sec.

A est soumis à des forces extérieures normale \vec{f}_N et tangentielle \vec{f}_T à la surface de contact. Le support B exerce des réactions normale \vec{R}_N et tangentielle \vec{R}_T sur A opposées aux forces extérieures. Tant qu'il y a contact, on a toujours $\vec{f}_N + \vec{R}_N = \vec{0}$ et en projection sur la direction tangentielle, on a équilibre tant que $|\vec{f}_T| < \mu_s |\vec{f}_N|$ soit tant que :

$$-\mu_s f_N \leq f_T \leq \mu_s f_N \quad (\text{III.8})$$

μ_s est appelé coefficient de frottement, il dépend des deux solides en contact. Pour mettre le solide en mouvement on doit dépasser un seuil pour la force tangentielle, on doit avoir : $|\vec{f}_T| \geq \mu_s |\vec{f}_N|$.

Pour l'hystérésis de l'angle de contact on peut écrire des relations analogues quant à la condition d'équilibre ou de mouvement de la ligne de contact. La force tangentielle exercée

par le liquide sur celle-ci vaut $f = -\gamma \cos \theta$.

On a équilibre lorsque $-\gamma \cos \theta_r \leq f \leq -\gamma \cos \theta_a$. En notant comme au III.3.1 l'angle moyen θ_m tel que $\cos \theta_m = \frac{\cos \theta_a + \cos \theta_r}{2}$, on introduit la force moyenne $f_m = -\gamma \cos \theta_m$. L'hystérésis de l'angle de contact vaut $H = \cos \theta_r - \cos \theta_a$, la condition d'équilibre s'écrit donc :

$$\boxed{-\gamma \frac{H}{2} \leq f - f_m \leq \gamma \frac{H}{2}} \quad (\text{III.9})$$

Comme on l'a rappelé au III.3.1, dans nos conditions expérimentales, on a toujours $\theta_m = \theta_E$, on a donc $f - f_m = \gamma(\cos \theta_E - \cos \theta)$ qui est égal à la force extérieure tirant ou poussant sur la ligne (voir chapitre 1, I.5) que l'on peut noter $f_T = f - f_m$:

$$-\gamma \frac{H}{2} \leq f_T \leq \gamma \frac{H}{2} \quad (\text{III.10})$$

On a bien une relation analogue à l'Eq. III.8 avec une force seuil donnée par $\gamma \frac{H}{2}$.

L'hystérésis de l'angle de contact a donc pour effet d'opposer au mouvement de la ligne une force de frottement solide linéique d'amplitude égale à $\gamma \frac{H}{2}$. On va donc montrer que l'on peut écrire une équation d'oscillateur forcé soumis à une force de frottement solide pour décrire le comportement de la goutte. On note $u = R - R_{eq}$:

$$\ddot{u} + \omega_k^2 u + \mu \operatorname{sgn}(\dot{u}) = A \cos(\omega t) \quad (\text{III.11})$$

où μ est un coefficient (différent du coefficient de frottement) qui dépend de la taille de la goutte et de l'hystérésis H . $\operatorname{sgn}(u)$ est la fonction qui à u associe son signe :

$u > 0 \Rightarrow \operatorname{sgn}(u) = 1$ et $u < 0 \Rightarrow \operatorname{sgn}(u) = -1$. ω_k est la fréquence naturelle de l'oscillateur.

Calcul détaillé pour le mode $k=1$

Nous présentons maintenant un modèle énergétique permettant d'obtenir une équation du type III.11 et d'en calculer ses paramètres pour le mode $k = 1$ dans le cas de larges gouttes aplaties par la gravité. On s'est inspiré de calculs assez similaires utilisés dans [19] et [26].

L'énergie totale de la goutte est la somme de l'énergie de gravité E_g , de l'énergie de surface E_s et de l'énergie cinétique E_c . On réduit le terme dissipatif pour simplifier au travail de la force de frottement solide L_s . Le bilan d'énergie s'écrit :

$$\frac{d}{dt} (E_g + E_s + E_c) = -\frac{d}{dt} (L_s) \quad (\text{III.12})$$

Les termes de surface et de gravité représentent une énergie potentielle $E = E_g + E_s$. La gravité tend à aplatir les gouttes, alors que l'énergie de surface tend à les rendre sphériques et réduire leur rayon. La taille d'une goutte à l'équilibre est donnée par le minimum d'énergie

potentielle. Pour l'énergie de gravité, on a simplement : $E_g = \rho V g z_m$, avec z_m la hauteur du centre de masse de la goutte. Pour l'énergie de surface, on ne s'intéresse qu'à sa partie variable qui s'écrit : $E_s = \gamma A_{LV} + A_{SL} (\gamma_{SL} - \gamma_{SV})$ avec A_{LV} et A_{SL} les aires des interfaces Liquide/Vapeur et Solide/Liquide.

Pour des petites oscillations et un angle de contact constant $\theta = \theta_E$, le potentiel a la forme générale :

$$E = E_{eq} + \frac{1}{2} \left[\frac{d^2 E}{dR^2} \right] (R - R_{eq})^2 \quad (\text{III.13})$$

qui conduit à une équation classique d'oscillateur après calcul de l'énergie cinétique. Le calcul exact de $\frac{d^2 E}{dR^2}$ est complexe dans le cas général, mais simple à la limite de très grandes gouttes ($R \gg \kappa^{-1}$). On suppose une forme cylindrique de rayon R et de hauteur $h = \frac{V}{\pi R^2}$.

Le centre de masse de la goutte est simplement $z_m = h/2$. Par conséquent, le terme de gravité s'exprime par :

$$E_g = \frac{\rho g V^2}{2\pi R^2} \quad (\text{III.14})$$

Pour le terme de surface, on écrit : $A_{LV} \approx A_{SL} \approx \pi R^2$ et on utilise le paramètre d'étalement $S = \gamma_{SV} - (\gamma_{SL} + \gamma) = -\gamma (1 - \cos(\theta_E))$. On a donc :

$$E_s = -S\pi R^2 = \gamma (1 - \cos(\theta_E)) \pi R^2 \quad (\text{III.15})$$

Le potentiel est :

$$E(R) = \gamma (1 - \cos(\theta_E)) \pi R^2 + \frac{\rho g V^2}{2\pi R^2} \quad (\text{III.16})$$

On peut en déduire une force résultante :

$$F(R) = -\frac{\partial E}{\partial R} = -\gamma (1 - \cos(\theta_E)) 2\pi R + \frac{\rho g V^2}{\pi R^3} \quad (\text{III.17})$$

Le rayon d'équilibre est donné par : $F(R_{eq}) = 0$. Donc :

$$\frac{\rho g V^2}{\pi R_{eq}^4} = 2\pi\gamma (1 - \cos(\theta_E)) \quad (\text{III.18})$$

On a ainsi :

$$E(R) = \gamma (1 - \cos(\theta_E)) \pi R_{eq}^2 \left(\frac{R^2}{R_{eq}^2} + \frac{R_{eq}^2}{R^2} \right) \quad (\text{III.19})$$

Et :

$$F(R) = -2\gamma (1 - \cos(\theta_E)) \pi R_{eq} \left(\frac{R}{R_{eq}} - \frac{R_{eq}^3}{R^3} \right) \quad (\text{III.20})$$

On peut calculer $h_{eq} = \frac{V}{\pi R_{eq}^2} = 2\kappa^{-1} \sin\left(\frac{\theta_E}{2}\right)$. On retrouve ainsi avec ce modèle la hauteur d'une flaque infinie (Eq. I.11).

On a :

$$\left[\frac{d^2 E}{dR^2} \right]_{R=R_{eq}} = 8\pi\gamma (1 - \cos(\theta_E)) \quad (\text{III.21})$$

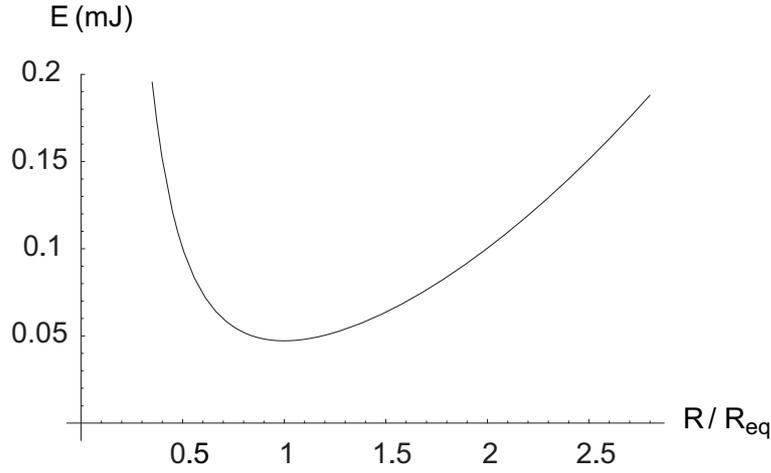


FIG. III.24 – Allure de l'énergie potentielle (en mJ) en fonction de R/R_{eq} (tiré de l'Eq. III.19) pour une goutte de 1 mL ($R_{eq} = 10.5$ mm, $\theta_E = 85^\circ$).

et autour de l'équilibre, le potentiel est :

$$E(R) \simeq 2\gamma(1 - \cos(\theta_E))\pi R_{eq}^2 + 4\pi\gamma(1 - \cos(\theta_E))(R - R_{eq})^2 \quad (\text{III.22})$$

Pour l'énergie cinétique, on suppose des écoulements simples. On note v_r et v_z les composantes radiale et verticale de la vitesse. La condition d'incompressibilité $\text{div} \vec{V} = 0$ conduit à :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(rv_r) + \frac{\partial v_z}{\partial z} = 0 \quad (\text{III.23})$$

On cherche des solutions simples telles que $v_r(r, t)$ et $v_z(z, t)$, on trouve : $v_r = \frac{r}{R} \frac{dR}{dt}$ et $v_z = -\frac{2z}{R} \frac{dR}{dt}$. On obtient la densité d'énergie cinétique :

$$e_c = \frac{1}{2} \frac{\rho}{R^2} \left(\frac{dR}{dt} \right)^2 (r^2 + 4z^2) \quad (\text{III.24})$$

On a pour l'énergie cinétique totale, dans la limite des grandes gouttes :

$$E_c = \frac{1}{4} \rho V \left(\frac{dR}{dt} \right)^2 \quad (\text{III.25})$$

La force de frottement solide par unité de longueur de la ligne, discutée précédemment, a la même valeur absolue à l'avancée et à la reculée : $F = \frac{\gamma H}{2}$. Le travail infinitésimal réalisé contre cette force vaut pour les petites oscillations :

$$dL_s = \text{sgn}(dR) 2\pi R dR \frac{\gamma H}{2} \simeq \text{sgn}(dR) 2\pi R_{eq} dR \frac{\gamma H}{2} \quad (\text{III.26})$$

La dérivée temporelle du bilan d'énergie (III.12) conduit à une équation classique d'oscillateur libre avec frottement solide, en notant $u = R - R_{eq}$:

$$\boxed{\ddot{u} + \omega_1^2 u + \mu \text{sgn}(\dot{u}) = 0} \quad \text{avec} \quad \omega_1^2 = - \left(\frac{16\pi S}{\rho V} \right) \quad \text{et} \quad \mu = \frac{2\pi R_{eq} \gamma H}{\rho V} \quad (\text{III.27})$$

On peut en déduire $\omega_1^2 = -\frac{16\pi S}{\rho\pi R^2 e_c} = \frac{8ge_c^2}{R^2 e_c} = \frac{8ge_c}{R^2}$.

On retrouve ainsi la relation de dispersion des ondes de gravité en eau peu profonde : $\omega_1 \simeq \sqrt{ge_c}q$ (voir III.7) avec $qR \sim 1$. Le modèle d'ondes de surface vu précédemment et ce modèle donnent quasiment les mêmes valeurs pour la fréquence de résonance du mode fondamental $k = 1$.

La flaque vibrée voit une accélération $g^* = g - a \cos \omega t$. La force résultante (Eq. III.17) est maintenant

$$F^*(R) \simeq F(R) - \frac{\rho V^2}{\pi R_{eq}^3} a \cos(\omega t) \quad (\text{III.28})$$

On obtient finalement l'Eq. III.11 pour le mode ω_1 :

$$\omega_1^2 = \frac{-16\pi S}{\rho V} \quad (\text{III.29})$$

$$\boxed{\ddot{u} + \omega_1^2 u + \mu \operatorname{sgn}(\dot{u}) = -A \cos(\omega t)} \quad \text{avec} \quad A = \frac{-4\pi S R_{eq} a}{\rho V g} \quad (\text{III.30})$$

$$\mu = \frac{2\pi R_{eq} \gamma H}{\rho V} \quad (\text{III.31})$$

Caractéristiques de l'oscillateur à frottement solide

Nous détaillons ici quelques particularités de ce type d'oscillateur en régime libre puis forcé, en comparant avec l'oscillateur à frottement fluide.

- Régime libre

□ L'oscillateur à frottement fluide a une équation du type :

$$\ddot{u} + \omega_k^2 u + 2\lambda \dot{u} = 0 \quad (\text{III.32})$$

Dans le régime quasi-périodique ($\lambda\omega \ll 1$), on a une décroissance exponentielle de l'amplitude :

$$u = u_0 e^{-\lambda t} \cos(\omega_k t) \quad (\text{III.33})$$

□ Pour l'oscillateur à frottement solide, on a l'équation :

$$\ddot{u} + \omega_k^2 u + \mu \operatorname{sgn}(\dot{u}) = 0 \quad (\text{III.34})$$

Pendant chaque demi-période où \dot{u} a le même signe, u a une variation sinusoïdale mais centrée autour de $u = \pm \mu/\omega_k^2$. Ainsi à chaque demi-période, l'amplitude u_m des oscillations

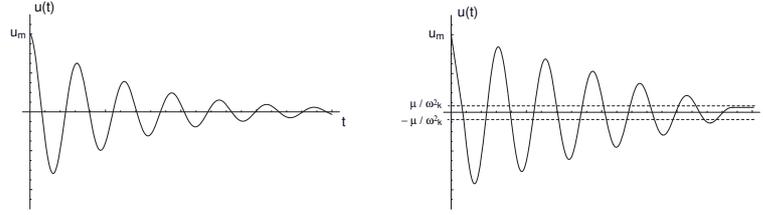


FIG. III.25 – Décroissance exponentielle à gauche pour un frottement fluide. Décroissance linéaire et arrêt brutal des oscillations à droite pour un frottement solide.

est diminuée d'une valeur constante : $4\mu/\omega_k^2$ et la décroissance est cette fois-ci linéaire et non exponentielle.

On vérifie cela en calculant le travail de la force de frottement à chaque période (en introduisant la masse m) : $\Delta E_T = 4m\mu u_m$. Sachant que l'énergie potentielle s'écrit : $E_p = 1/2m\omega_k^2 u_m^2$, on écrit : $dE_p/dt = m\omega_k^2 u_m \dot{u}_m = -4m\mu u_m/T = -4m\omega_k \mu u_m/(2\pi)$. On obtient ainsi :

$$\dot{u}_m = -\frac{2\mu}{\pi\omega_k} \quad (\text{III.35})$$

et : $u_m = U_0 - 2\mu t/(\pi\omega_k)$.

Tant que $u_m \gg \mu/\omega_k^2$, on peut ainsi écrire, avec $V = \frac{2\mu}{\pi\omega_k}$:

$$u = (U_0 - Vt) \cos(\omega_k t) \quad (\text{III.36})$$

La décroissance est bien linéaire. Pour u proche de quelques μ/ω_k^2 on doit tenir compte du caractère discret de la décroissance. L'amplitude atteint une valeur nulle au bout d'un temps fini. En fait on a arrêt des oscillations si $\dot{u} = 0$ alors que $|u| < \frac{\mu}{\omega_k^2}$.

- Régime forcé

□ On considère maintenant l'oscillateur à frottement fluide forcé, on a l'équation :

$$\ddot{u} + \omega_k^2 u + 2\lambda \dot{u} = A \cos(\omega t) \quad (\text{III.37})$$

L'amplitude des oscillations est donnée par :

$$u_m = \frac{A}{\sqrt{(\omega_k^2 - \omega^2)^2 + 4\omega^2 \lambda^2}} \quad (\text{III.38})$$

□ Pour l'oscillateur à frottement solide forcé, on a l'équation :

$$\ddot{u} + \omega_k^2 u + \mu \operatorname{sgn}(\dot{u}) = A \cos(\omega t) \quad (\text{III.39})$$

La théorie globale d'un tel oscillateur est complexe, elle a été étudiée notamment dans [27]-[29]. La dynamique est contrôlée par les deux rapports

$$\Gamma = \frac{A}{\mu} \quad \text{et} \quad \Omega = \frac{\omega}{\omega_k}$$

On revient au problème lié à la dynamique de la ligne. A différentes régions du plan (Ω, Γ) correspondent différents mouvements possibles (ligne accrochée, stick-slip avec deux arrêts ou plus par période, pur glissement... voir Fig. III.26).

- Pour $\Gamma < 1$ la ligne est accrochée par le substrat quelle que soit la fréquence.
- Pour $\Gamma \geq 1$, la ligne peut bouger et présenter un mouvement de stick-slip.
- Un deuxième seuil correspond au passage du mouvement de stick slip à celui de pur glissement. Dans le cas particulier où $\Omega = 1$, on a un pur glissement pour $\Gamma \geq \frac{4}{\pi}$.

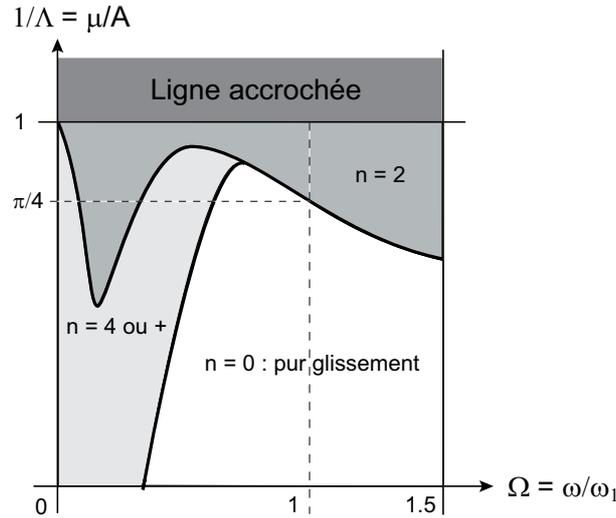


FIG. III.26 – Allure du diagramme $1/\Gamma - \Omega$ d'après [29] (obtenu par simulation numérique). n représente le nombre d'arrêts par période.

On peut discuter assez simplement le cas où $\Gamma = A/\mu$ est élevé, le mouvement est de pur glissement et supposé sinusoïdal. On montre que l'on peut calculer l'amplitude des oscillations en déterminant un coefficient effectif λ_s équivalent pour le frottement solide au coefficient de dissipation visqueuse. λ_s est tel que le travail dissipé pendant une période par l'oscillateur à frottement solide est le même que celui à frottement fluide. On écrit $du_m/dt = -\lambda_s u_m = -\frac{2\mu}{\pi\omega_k}$ d'après III.35. On trouve ainsi ([27]) :

$$\lambda_s = \frac{2\mu}{\pi\omega\omega_k} \quad (\text{III.40})$$

L'amplitude des oscillations se déduit de l'Eq. III.38 avec $\lambda = \lambda_s$.

$$u_m = \frac{A}{\sqrt{(\omega_k^2 - \omega^2)^2 + 4\omega^2\lambda_s^2}} = \frac{A}{\sqrt{(\omega_k^2 - \omega^2)^2 + \frac{16\mu^2}{\pi^2 u_m^2}}} \quad (\text{III.41})$$

Soit :

$$u_m^2 \left((\omega_k^2 - \omega^2)^2 + \frac{16\mu^2}{\pi^2 u_m^2} \right) = A^2 \Rightarrow u_m^2 (\omega_k^2 - \omega^2)^2 = A^2 - \frac{16\mu^2}{\pi^2} \quad (\text{III.42})$$

et :

$$u_m = A \frac{\sqrt{1 - \left(\frac{4\mu}{\pi A}\right)^2}}{|\omega_k^2 - \omega^2|} = \frac{A}{\omega_k^2} \frac{\sqrt{1 - \left(\frac{4}{\pi} \frac{1}{\Gamma}\right)^2}}{|1 - \Omega^2|} \quad (\text{III.43})$$

Cette relation n'est valable que pour des valeurs élevées de Γ où le mouvement est de pur glissement. Lorsque Γ devient plus faible, la ligne a un mouvement de stick-slip.

Régime "quasi-statique"

Nous nous intéressons maintenant au cas des basses fréquences, c'est à dire pour $\Omega \ll 1$, que l'on appellera régime quasistatique. On verra au chapitre suivant l'importance de l'amplitude de variation du rayon et sa dépendance en fréquence. Ce cas particulier nous permet de comparer notre modèle avec un calcul direct. Dans le régime quasi-statique, on peut en effet calculer simplement l'amplitude ΔR de vibration du rayon de la goutte sans hystérésis. On écrit que les vibrations induisent une modulation de la gravité $\Delta g \cos(\omega t)$. Le volume pour ces grosses gouttes s'écrit : $V \sim \kappa^{-1} R^2 \sim g^{-1/2} R^2$, Soit $R/g^{1/4} = cste$. Ainsi :

$$\frac{\Delta R}{R_{eq}} = \frac{u_m}{R_{eq}} = \frac{\Delta g}{4g} \quad (\text{III.44})$$

Le régime à très basses fréquences est quasi-statique cela signifie qu'à tout instant la goutte adapte sa forme d'équilibre correspondant à la valeur instantanée de la gravité. Quand celle-ci augmente elle s'étale, donc le rayon augmente et inversement.

Dans le cas du frottement fluide, l'amplitude dans le régime quasi-statique vaut (Eq. III.38) :

$$u_m = \frac{A}{\omega_k^2} \quad (\text{III.45})$$

En utilisant les relations III.27 et III.31, on trouve $\Delta R = \frac{A}{\omega_k^2} = \frac{R}{4} \frac{a}{g}$, soit :

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{a}{4g}$$

On retrouve donc la relation calculée précédemment (Eq. III.44).

Pour le frottement solide on a une valeur inférieure :

$$\boxed{u_m = \frac{A}{\omega_k^2} \sqrt{1 - \left(\frac{4}{\pi} \frac{1}{\Gamma}\right)^2}} \quad (\text{III.46})$$

Pour un frottement fort, cette relation n'est plus valable, le mouvement est de type "stick-slip"; pour un frottement très faible ($\Gamma \gg 1$), on retrouve le cas de l'oscillateur à frottement fluide. On montre Fig. III.27 l'allure de la courbe de résonance pour les deux types d'oscillateurs. La droite horizontale représente le régime quasi-statique, on constate que pour l'oscillateur à frottement solide, son amplitude est d'abord inférieure au régime quasi-statique puis supérieure près de la résonance et de nouveau inférieure aux hautes fréquences.

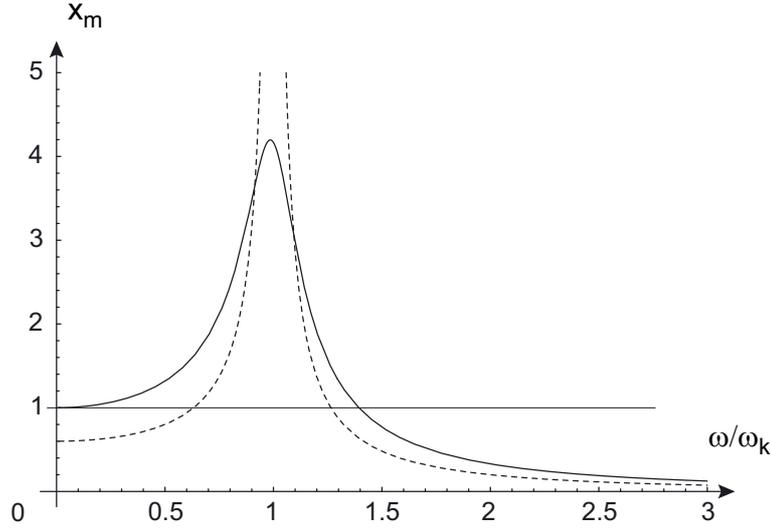


FIG. III.27 – Amplitude d'un oscillateur à frottement fluide (trait plein, $\lambda/\omega_k = 0.12$) et solide (pointillés, $\Gamma = 5/\pi$). Le trait horizontal représente le régime quasi-statique.

Comparaison avec l'expérience

A partir de l'Eq. III.27 et de l'Eq. III.31, le modèle permet de calculer le coefficient Λ pour notre système, on a : $\Gamma = \frac{(1-\cos\theta_E) a}{H} g$. La condition pour mettre la ligne en mouvement ($\Gamma > 1$) s'écrit donc :

$$\frac{a}{g} > \frac{H}{(1 - \cos\theta_E)} \simeq 0.26 \quad (\text{III.47})$$

Cette valeur est en bon accord avec les valeurs expérimentales pour des fréquences proches de la résonance du mode de Type II (voir la Fig. III.20). On trouve un seuil de $0.19g$ à 8 Hz , alors que la fréquence théorique est proche de 7.7 Hz , soit un seuil de l'ordre de $0.2g$ à la résonance. Pour des fréquences plus proches de la résonance du mode de Type I, les seuils sont plus faibles (jusqu'à $a/g \simeq 0.08$) du fait du couplage avec les oscillations de l'angle de contact qui ne sont pas inclus dans ce modèle.

Un deuxième seuil correspond au passage du mouvement de stick slip à celui de pur glissement. Dans le cas particulier où $\Omega = 1$, on a un pur glissement pour $\Gamma \geq \frac{4}{\pi}$ (voir Fig.

III.27), c'est-à-dire :

$$\frac{a}{g} > \frac{4H}{\pi(1 - \cos \theta_E)} \simeq 0.32 \quad (\text{III.48})$$

cette valeur est assez proche de celle observée.

III.5 Conclusion et Perspectives

Nous avons étudié l'effet de vibrations verticales sur des grosses gouttes aplaties par la gravité (flaques) et déposées sur un substrat solide présentant un hystérésis de l'angle de contact fini. En faisant varier la fréquence et l'amplitude, on observe deux types d'oscillations :

- A faible amplitude, la ligne de contact reste piégée par le substrat, la goutte présente alors des modes propres de surface autour de différentes fréquences de résonance (Type I).
- A amplitude plus élevée, la ligne de contact se met en mouvement : elle reste circulaire mais son rayon oscille à la fréquence d'excitation (modes de Type II).

- Nous avons vu que l'on pouvait utiliser un modèle d'ondes de surfaces, avec des conditions aux bords différentes, pour prévoir les fréquences de résonance des deux Types de modes. On explique ainsi le décalage vers les basses fréquences des résonances de Type II.

- La transition entre les deux type de modes se passe lorsque la variation de l'angle de contact dépasse l'hystérésis. Celui-ci a donc un rôle fondamental. Il agit comme un frottement solide, induisant un mouvement de stick-slip pour la ligne de contact à amplitudes intermédiaires.

- A l'aide d'un modèle énergétique, on a décrit la dynamique des modes de Type II à l'aide d'une équation d'oscillateur soumis à un frottement solide, interprétant ainsi les mouvements particuliers de la ligne.

- La taille finie des gouttes induit de grosses différences de comportement selon la fréquence. Dans certaines zones de fréquences, la ligne de contact est complètement piégée par le substrat alors qu'à même excitation, dans d'autres régions elle présente des mouvements de grandes amplitudes. Cela n'est pas observable dans les expériences où l'on fait osciller une plaque dans un bain infini car les modes ne sont plus discrets.

La dissipation visqueuse n'a pas été introduite dans le modèle, elle peut être très importante dans la région de la ligne de contact et induire une dissymétrie de comportement entre l'avancée et la reculée qui pourrait être très intéressante à observer. Une étude plus approfondie serait nécessaire pour mieux comprendre la relation entre vitesse et angle de contact. Les effets non linéaires dus à la grande amplitude des oscillations auraient aussi besoin d'être pris en compte dans une étude plus détaillée.

Les applications pour l'étude des phénomènes de mouillage sur substrat solide à grande

vitesse semblent ainsi très nombreuses.

Comme nous l'avons vu, ainsi que d'autres auteurs très récemment, les vibrations permettent d'atteindre l'angle d'équilibre θ_E et de le mesurer. Ce qui n'est pas possible en présence d'hystérésis avec les méthodes usuelles. On a notamment vérifié dans nos conditions expérimentales la relation $\cos\theta_E = \frac{1}{2}(\cos\theta_r + \cos\theta_a)$. De plus nous avons élaboré et utilisé une méthode qui permet de mesurer l'angle de contact pendant les vibrations, alors que dans toutes les études précédentes, les vibrations sont stoppées puis l'angle mesuré.

Ensuite la dynamique de mouillage non stationnaire et à grande vitesse a été peu étudiée, nous avons montré que notre dispositif expérimental peut permettre ainsi d'étudier la relation entre vitesse et angle instantanés. Les effets inertiels non-stationnaires peuvent aussi être étudiés, ce qui a été très peu fait jusqu'à aujourd'hui.

Un autre aspect concerne une application qui peut être de premier intérêt : l'utilisation des vibrations pour faciliter le déplacement de gouttes sur un substrat solide. Dans [16], les auteurs ont utilisé des vibrations horizontales pour aider au déplacement de gouttes sur des surfaces présentant un gradient de tension de surface. Nous avons observé que les vibrations verticales peuvent de la même façon aider au mouvement des gouttes par réduction des effets de l'hystérésis de l'angle de contact. C'est d'ailleurs pour cette raison qu'il nous a fallu incurver légèrement les substrats pour ne pas que les gouttes s'échappent. Le moindre défaut d'horizontalité les entraîne par gravité avec très peu de résistance.

Nous verrons au chapitre suivant qu'en augmentant l'amplitude d'excitation, les modes de variation du rayon peuvent induire l'apparition de modes non-axisymétriques.

Bibliographie

- [1] Noblin X., Buguin A., and Brochard-Wyart F., *Langmuir* **18**, 9350 (2002).
- [2] Ondarçuhu T., Veyssié M. , *Nature* **352** (1991)
- [3] Noblin X., Buguin A. and Brochard-Wyart F., *Eur. Physical Journal E*, **14**, 4, 395 (2004)
- [4] Lamb, H. *Hydrodynamics* (Cambridge University Press, 1932).
- [5] Rodot H., Bisch C. and Lasek A., *Acta Astronautica*, **6**, (1979) 1083; Bisch C., Lasek A., and Rodot H., *J. Méc. Théor. Appl* **1**, (1982) 165.
- [6] Strani M. and Sabetta F., *J. Fluid Mech.* **141**, (1984) 233-247; Strani M. and Sabetta F., *J. Fluid Mech.* **189**, (1988) 397
- [7] Watanabe Y., *Japanese Journal of Applied Physics* **24**, (1985) 351; Watanabe Y., *Japanese Journal of Applied Physics* **27**, (1988) 2409.
- [8] Tsukada T., Sato M., Imaishi N., et al., *J. Chem. Eng. Jpn.* **20**, (1987) 88.
- [9] Smithwick R. W. and Boulet J. A. M., *Journal of Colloid and Interface Science* **130**, (1988) 588; Smithwick R. W. and Hembree D. M., *Journal of Colloid and Interface Science* **140**, (1990) 57.
- [10] DePaoli D. W., Scott T. C., and Basaran O. A., *Sep. Sci. Technol.* **27**, (1992) 2071.
- [11] Basaran O. A. and DePaoli D.W., *Physics of Fluids* **6**, (1994) 2923.
- [12] Wilkes E. D. et al., *Physics of Fluids* **9**, (1997) 1512.
- [13] Vukasinovic B., Glezer A., and Smith M. K., *Phys. Fluids* **12**, (2000) S12; James A. J., Vukasinovic B., Smith M. K., et al., *J. Fluid Mech.* **476**, (2003) 1. et **476**, (2003) 29.
- [14] Bixler N. E. and Benner R. E., *4th International Conference on Numerical Methods in Laminar and Turbulent Flow* (Swansea, 1985) 1336.
- [15] Andrieu C., Sykes C. and Brochard F., *Langmuir* **10**, (1994) 2077.
- [16] Daniel S., Sircar S., Gliem J. and Chaudhury M. K., *Langmuir* **20**, (2004) 4085.
- [17] Fabretto M., Sedev R., and Ralston J., *Proceedings of the Third International Symposium on Contact Angle, Wettability and Adhesion* Vol. 3, (2003) 161.
- [18] Meiron T.S., Marmur A., Saguy I.S., *Journal of Colloid and Interface Science* **274**, (2004) 637.

-
- [19] Perez M., Bréchet Y., Salvo L., et Suery M., *Europhysics Lett.* **47**, (1999) 189.
- [20] Hocking L. M., *J. Fluid Mech.* **179**, (1987) 267.
- [21] Young G.W. and D. S.H., *J. Fluid Mech.* **174**, (1987) 327.
- [22] Ting C-L. and Perlin M., *J. Fluid Mech.* **295**, (1995) 263.
- [23] Landau L. and Lifshitz M., *Mécanique des Fluides, 2 ème éd. MIR (1989)*.
- [24] Guyon E., Hulin J.P., Petit L., *Hydrodynamique Physique, nouvelle édition, EDP Sciences / CNRS Editions (2001)*.
- [25] Joanny J.F., Thèse de doctorat d'état, Université Paris VI, 1985.
- [26] Gu Y. and Li D., *Colloids Surfaces A : Physicochem. Eng. Aspects* **142**, (1998) 243.
- [27] Den Hartog J. P., *Transactions of the American Society of Mechanical Engineers* **53**, (1931) 107. Den Hartog J. P., *Vibrations mécaniques, 2 ème éd., Dunod (1960)*.
- [28] Shaw S.W., *Journal of Sound and Vibration* **108**, (1986) 305.
- [29] Hong H.-K. and Liu C.-S. , *Journal of Sound and Vibration* **229**, (2000) 1171.

Chapitre IV

Gouttes vibrées (2) : modes non-axisymétriques.

Sommaire

IV.1 Introduction	103
IV.2 Matériels et méthodes	106
IV.2.1 Dispositif expérimental	106
IV.2.2 Matériel	107
IV.2.3 Traitement des images	107
IV.2.4 Procédures expérimentales	109
IV.3 Résultats	109
IV.3.1 Régime transitoire : temps de montée de l'instabilité	111
IV.3.2 Régime stationnaire : amplitude du mode instable	113
IV.3.3 Diagramme de stabilité	114
IV.3.4 Effets d'hystérésis de l'amplitude des modes	115
IV.3.5 Modes harmoniques	116
IV.3.6 Fréquences de résonance	116
IV.4 Interprétation	117
IV.5 Conclusion et Perspectives	125
Bibliographie	126

IV.1 Introduction

Nous avons étudié au Chapitre II les modes de fluctuation d'une ligne de contact flottante sur un substrat liquide. En régime inertiel, ces modes sont propagatifs et traduisent un échange entre énergie potentielle élastique de la ligne et énergie cinétique. Nous avons étudié

ces modes propagatifs dans le cas d'une ligne. La relation de dispersion s'écrit [1] :

$$\omega^2 = \frac{\mathcal{T}}{2\rho e_c} q^3 \quad (\text{IV.1})$$

Notre but est ici d'observer ces modes de fluctuation de la ligne de contact sur substrat solide. Ceux-ci interviennent dans la dynamique d'une ligne de contact piégée par des défauts qui régit la dynamique des gouttes et des interfaces. Sur un substrat liquide, on a vu que l'on peut agiter la ligne comme une corde en la tenant par une tige. Ceci est impossible sur substrat solide, car la ligne n'est pas mobile. La difficulté d'observation de ces modes est donc liée à l'hystérésis de l'angle de contact. On a par conséquent utilisé des vibrations verticales du substrat qui en fournissant globalement de l'énergie en chaque point de la ligne, vont permettre de surmonter les effets de l'hystérésis.

On dépose des flaques ($R > \kappa^{-1}$) qui sont circulaires au repos. Notre but est d'étudier les fluctuations du contour de ces grosses gouttes appelées "Triplons". L'équation de dispersion associée à ces modes discrets, en fonction du nombre de longueurs d'onde le long du contour de la goutte ($qR = m$), déjà calculée pour une flaque flottante (II.8), s'écrit en régime inertiel :

$$\omega^2 = \frac{\mathcal{T}}{2\rho e_c} \frac{m(m^2 - 1)}{R^3} \quad (\text{IV.2})$$

Lorsque m devient grand, on retrouve la situation unidimensionnelle, $\omega^2 \sim q^3$, décrite en détail pour une ligne flottante (II.7).

C'est dans la perspective d'observer ces modes sur un substrat solide que nous avons ainsi commencé par étudier l'effet de vibrations d'amplitude modérée sur une goutte déposée en mouillage partiel. Nous avons vu qu'au-dessus d'un seuil en accélération, Λ_u (dépendant de l'hystérésis de l'angle de contact, de la fréquence d'excitation et de la taille de la goutte), la ligne se décroche du substrat et le rayon de la goutte se met à osciller périodiquement [2]. Ces modes (Type II) sont axisymétriques, la ligne étant à tout instant circulaire. Pour des amplitudes encore plus grandes, on peut observer les modes non-axisymétriques qui nous intéressent : on les appellera **modes de contour**. Ils consistent en des oscillations régulières du contour de la goutte caractérisées par le nombre m ($m = 2, 3, 4, \dots$) qui est le nombre de lobes.

De tels modes appelés aussi modes "polygonaux" ont été étudiés pour la première fois pour des gouttes aplaties en évaporation rapide (gouttes de Leidenfrost ¹), pour lesquelles ils apparaissent spontanément [4], [5]. L'expérience consiste à déposer des gouttes de liquide cryogénique (Azote, Oxygène, ...) sur des plaques à température ambiante, soit nettement supérieure à la température de vaporisation T_V . Au delà d'une température critique (point de Leidenfrost), un film de vapeur se forme entre le liquide et le solide support, la goutte n'est plus en contact avec celui-ci et la dissipation associée aux mouvements horizontaux

¹Pour une étude récente de ces gouttes particulières, (phénomène de caléfaction) voir [3]

de la goutte est très faible. C'est une autre façon d'éviter les effets d'hystérésis de l'angle de contact : on peut considérer la goutte en situation de mouillage nul ($\theta = 180^\circ$, $H = 0$). La goutte s'évapore lentement du fait de la faible conduction thermique à travers le film de vapeur. Son rayon moyen diminue petit à petit (la durée de vie d'une goutte de 1 mL est de l'ordre de plusieurs minutes). Dans le même temps la goutte présente spontanément des modes polygonaux. Au fur et à mesure de l'évaporation, des transitions se produisent spontanément et le nombre m change. La même expérience peut être réalisée en utilisant des gouttes d'eau déposées sur des plaques portées à $250^\circ\text{C} - 300^\circ\text{C}$. Adachi et al. [6] ont étudié théoriquement ces modes spontanés. Ils ont déterminé pour des gouttes de rayon grand devant la longueur capillaire ($R \gg \kappa^{-1} = \sqrt{\gamma/(\rho g)}$) la fréquence naturelle du mode m :

$$\omega_m^2 = \frac{\gamma m(m^2 - 1)}{\rho R^3} \quad (\text{IV.3})$$

qui est identique à l'expression que nous avons calculée pour des ondes de lignes (IV.2) avec $\theta_E = \pi$. Dans notre cas, ω_m dépend de l'angle de contact par le biais de \mathcal{T} et e_c .

D'autres études ont été réalisées pour observer ces modes en régime forcé, sur des substrats en situation de mouillage nul. Aussillous et al. [7] les ont observés en vibrant verticalement des "gouttes enrobées" de poudre présentant des propriétés de mouillage très particulières et un angle de contact proche de 180° . Fautrelle et al. [8] ont utilisé de grandes gouttes de mercure sur du plexiglass dépoli et soumises à un champ magnétique vertical oscillant. Ils observent des modes d'oscillation très réguliers. Dans [9], les auteurs ont étudié l'éjection de gouttelettes lors de la vibration verticale de grosses gouttes déposées à haute fréquence (centaines de Hz). Ils ont observé qualitativement des modes non-axisymétriques avec $m \simeq 15 - 20$.

Enfin, Yoshiyasu et al. [10] ont publié la seule étude (à notre connaissance) consistant à observer les modes polygonaux pour des gouttes déposées sur un substrat très hydrophobe et vibré verticalement. Les surfaces qu'ils ont utilisées sont texturées et présentent des angles de contact de l'ordre de 140° .

- Ils ont réalisé une étude qualitative et montré que la fréquence des modes est égale à la moitié de la fréquence d'excitation (modes subharmoniques). Nous étudions ici ces modes de façon quantitative pour détailler leurs différentes caractéristiques. Nous verrons de plus que l'on peut aussi les observer à la même fréquence que celle d'excitation (modes harmoniques).
- Ils expliquent la nature paramétrique de l'excitation de ces oscillations avec un modèle simple qui correspond à une vision quasi-statique du phénomène. Nous verrons comment leur modèle peut-être amélioré en tenant compte des résultats du chapitre précédent sur les modes de Type II. Nous verrons notamment que pour prédire l'apparition des modes linéairement instables, le modèle quasi-statique n'est valable qu'à basse fréquence.
- En outre ils affirment que ces modes ne peuvent apparaître que pour des angles supérieurs à 90° . Ils les associaient sans doute non pas à la déformation de la ligne de contact

mais à celle de l'équateur, défini uniquement pour $\theta > 90^\circ$. Nous montrerons que ces modes sont des modes de ligne (Triplons) et qu'on peut les observer pour tout angle θ_E , en particulier pour $\theta_E = 50^\circ$ pour des flaques d'éthanol sur du Téflon. L'utilisation de surfaces super hydrophobes comme les gouttes enrobées, les substrats texturés et aussi en quelque sorte les gouttes de Leidenfrost présente l'avantage de s'affranchir de l'hystérésis car les gouttes reposent sur un coussin d'air [11]. Elles ressemblent à nos flaques flottantes sur un liquide. Nous allons voir qu'on peut même les observer en utilisant de simples surfaces de Polystyrène ou de Téflon (à condition de s'affranchir de l'hystérésis). L'hystérésis de l'angle de contact sera ici un paramètre important pour délimiter le domaine d'apparition de ces modes.

Nous présentons d'abord le dispositif expérimental puis les résultats concernant la mesure des seuils d'instabilité, la croissance des modes, leur diagramme de stabilité. Enfin nous présentons un modèle permettant d'interpréter nos résultats. Nous discutons le rôle des paramètres comme le rayon de la goutte R , l'angle de contact d'équilibre θ_E , l'hystérésis de l'angle de contact $H = \cos\theta_r - \cos\theta_a$.

IV.2 Matériels et méthodes

IV.2.1 Dispositif expérimental

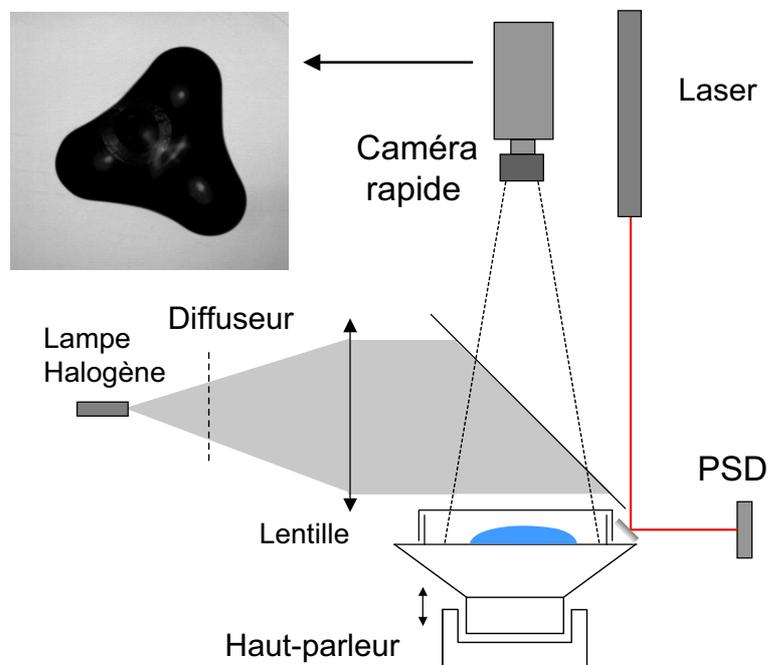


FIG. IV.1 – Dispositif expérimental pour étudier les modes de contour.

Nous avons utilisé le même dispositif expérimental que celui présenté au chapitre précédent

pour générer les vibrations et les mesurer. La méthode d'observation et de mesure utilisée correspond à la méthode 2) du chapitre précédent pour les modes de Type II (voir III.4.1). On utilise la caméra rapide en vue de dessus comme indiqué à la Fig. IV.1.

Comme précédemment on suit la dynamique de gouttes de volume V déposées sur un substrat solide soumis à une accélération sinusoïdale : $a = -(2\pi f)^2 u_0 \cos(2\pi ft) = -\Lambda \cos(2\pi ft)$, avec u_0 le déplacement vertical du substrat.

IV.2.2 Matériel

Dans la plupart des expériences, le liquide utilisé est de l'eau Ultra Pure. Les volumes déposés sont de l'ordre de 0.6 mL à 3 mL (flaques de rayon de 6 à 18 mm). On a aussi utilisé de l'éthanol pour obtenir sur les mêmes substrats des angles de contact plus faibles.

On a majoritairement utilisé deux types de substrat :

1. Les boîtes de Pétri en Polystyrène identiques à celles utilisées pour les expériences présentées au chapitre III, présentant les angles : $\theta_a = 92 \pm 1^\circ$, $\theta_r = 78 \pm 1^\circ$ et l'hystérésis $H = 0.24$.
2. Des wafers de Silicium recouverts d'un film de Téflon amorphe (Teflon AF 1601) par spin-coating avec $\theta_a = 125 \pm 1^\circ$, $\theta_r = 115 \pm 1^\circ$ et l'hystérésis $H = 0.15$. Ce deuxième type de substrat présente donc un angle de contact plus grand et surtout un hystérésis plus faible.

Comme précédemment, les substrats sont légèrement incurvés pour éviter la fuite des gouttes. La méthode est la même que précédemment. Les wafers de silicium doivent être pris peu épais (0.5 mm) et assez grands (3 pouces : 76 mm) pour pouvoir être déformés facilement. Un certain soin doit cependant être apporté pour éviter qu'ils ne se cassent. De manière générale la différence de hauteur entre le fond de la boîte de Pétri et ses bords est inférieur à 1 mm (pour un diamètre de 100 mm). Pour les wafers on est limité à 0.5 mm.

IV.2.3 Traitement des images

Pour chaque valeur de fréquence f , accélération Λ et volume de goutte V qui nous intéresse, on enregistre un film avec la caméra rapide qui contient au maximum 546 images à 250 image/seconde. Les images sont ensuite transférées sur le disque dur de l'ordinateur et le traitement se fait à posteriori en utilisant un programme Labview Imaq Vision.

L'éclairage utilisé est quasi parallèle et arrive verticalement sur la goutte. La faible ouverture numérique de l'objectif de la caméra limite l'inclinaison avec la verticale des rayons qu'elle collecte. Ainsi seuls les rayons réfléchis sur des parties peu inclinées de la goutte sont collectés par la caméra. Les régions de l'interface présentant un angle faible avec l'horizon-

tales apparaissent donc en clair (ainsi que le substrat qui est proche d'être plat), les zones de l'interface inclinées apparaissent en foncé, c'est toujours le cas de la zone du ménisque près de la ligne de contact. C'est cette propriété qui est utilisée pour déterminer les coordonnées du contour de la goutte. La forte différence de niveau de gris entre la goutte et le substrat permet de repérer facilement par une opération de détection de bord le contour de la goutte.

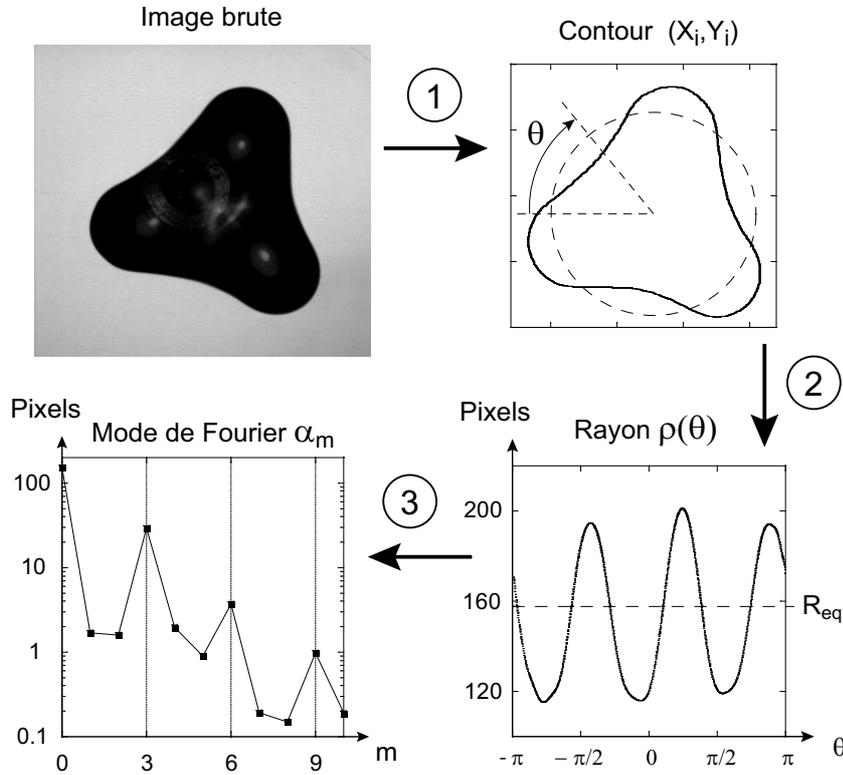


FIG. IV.2 – Traitement des images : détermination du contour (X_i, Y_i) puis $\rho(\theta)$ et enfin sa transformée de Fourier pour obtenir les modes α_m en diagramme Log-Log.

Pour arriver à mesurer les modes de Fourier du contour α_m , on procède à un traitement en étape :

1. A l'aide d'un programme Labview Imaq Vision, on détermine les pixels du contour par détection de bord, les coordonnées des pixels du contour sont enregistrées dans un fichier (X_i, Y_i) , puis le centre de la goutte est calculé (isobarycentre).
2. On déduit en coordonnées cylindriques la position de la ligne (θ_i, ρ_i) , que l'on calcule ensuite pour des valeurs régulièrement espacées de l'angle : $\rho(\theta)$ avec $\theta = \left(\frac{2\pi n}{N}\right)$, $n = 0 \dots 360$.
3. On calcule enfin la transformée de Fourier de cette fonction pour obtenir l'amplitude de chaque mode de nombre azimutal m : $\alpha_m = \sum_{n=0}^{N-1} \rho\left(\frac{2\pi n}{N}\right) e^{((2\pi i m n)/N)}$.

On traite toutes les images d'un film pour obtenir les séries temporelles $\alpha_m(t)$. Nous avons vu qu'on ne mesure pas la position réelle de la ligne de contact en vue de dessus mais le

rayon maximal de la goutte, la différence est de 2% pour des angles de $\theta = 120^\circ$, on négligera donc cet effet.

IV.2.4 Procédures expérimentales

La goutte est initialement au repos, et présente une forme circulaire. On commence alors l'excitation à une fréquence f et une amplitude d'accélération Λ données, que l'on incrémente ensuite. On réalise deux types de mesures (procédures 1. et 2.) :

1. On enregistre des films depuis la période transitoire de croissance à la saturation de l'instabilité et l'on en déduit les séries temporelles $\alpha_m(t)$.
2. On enregistre les films en variant la période d'oscillations. Lorsqu'un régime permanent a été atteint, on mesure les séries temporelles de l'amplitude des modes $\alpha_m(t)$, et on calcule l'amplitude des oscillations crête à crête de chaque mode : A_m .

IV.3 Résultats

En faisant varier le rayon de la goutte, la fréquence et l'accélération nous avons observé une très grande variété de comportements. S'ajoutent à ces paramètres l'angle de contact et l'hystérésis de l'angle de contact qui rendent encore plus riches les possibilités de comportements différents.

Lorsqu'on augmente l'accélération, on observe d'abord les modes de Type I puis la transition vers les modes de Type II (variations périodiques du rayon à la fréquence d'excitation représentant le mode $m = 0$) que l'on a décrit au chapitre précédent. Ces modes se produisent près de fréquences de résonance notées ω_k , on a surtout travaillé près du mode fondamental ($k = 1$).

Au-dessus d'un deuxième seuil en accélération, on peut observer l'apparition des modes polygonaux. Les principaux modes sont sous-harmoniques, leur fréquence vaut la moitié de la fréquence d'excitation. Si l'on regarde deux phases de l'oscillation, séparées d'une demi-période, pour lesquelles l'amplitude du mode m concerné est la plus grande, on trouve la même image à une rotation de π/m près, voir Fig. IV.3 (mode $m=2$) et Fig. IV.4 (mode $m=3$).

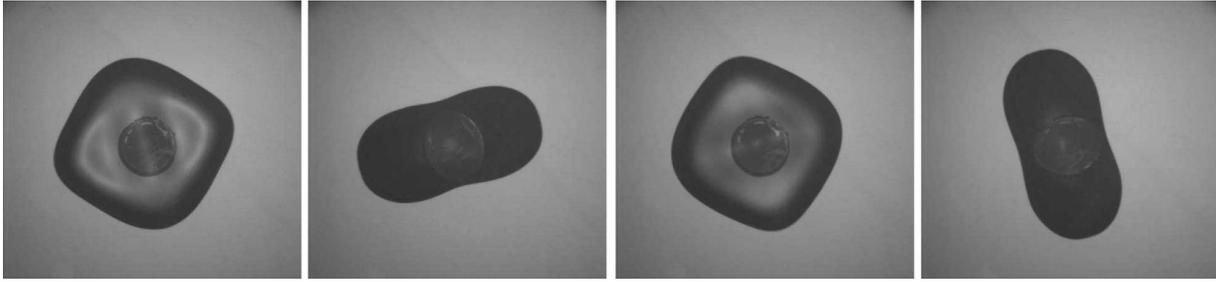


FIG. IV.3 – Mode sous-harmonique $m=2$, chaque image est séparée d'une demi période d'excitation. Eau sur Polystyrène, $f_e = 7.6Hz$, $\Lambda = 0.46g$, $V=1$ mL, $R_e = 10.7$ mm. Largeur image : 39 mm.

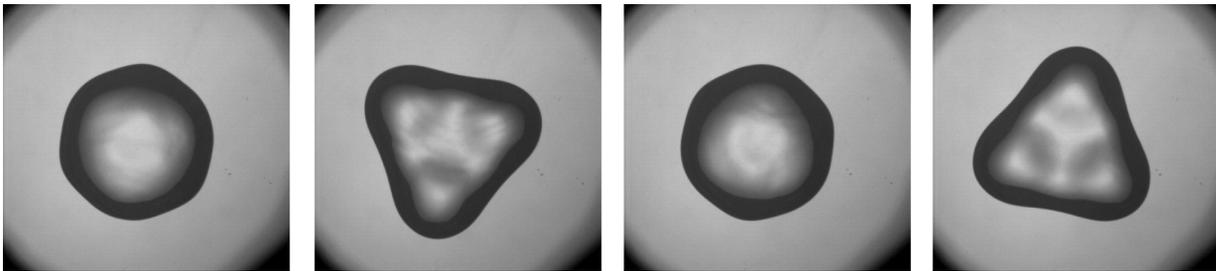


FIG. IV.4 – Mode sous-harmonique $m=3$, chaque image est séparée d'une demi période d'excitation. Eau sur Téflon, $f_e = 6.8Hz$, $\Lambda = 0.22g$, $V=2.6$ mL, $R_e = 14$ mm. Largeur image : 50 mm.

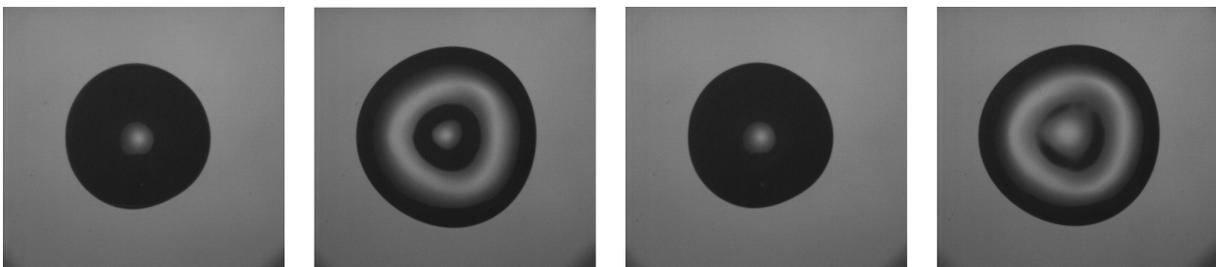


FIG. IV.5 – Mode harmonique $m=3$, chaque image est séparée d'une demi période d'excitation. Eau sur Téflon, $f_e = 5.9Hz$, $\Lambda = 0.39g$, $V=1.45$ mL, $R_e = 11$ mm. Largeur image : 38 mm.

On a aussi observé des modes polygonaux harmoniques (leur période d'oscillation étant égale à celle d'excitation, et non le double), de faible amplitude. Deux phases de l'oscillation, séparées d'une demi-période, pour lesquelles l'amplitude du mode m concerné est la plus grande, ne présentent pas le même motif car ces modes se superposent au mode $m=0$ d'amplitude beaucoup plus grande (voir Fig. IV.5).

Très souvent, le mode $m = 3$ harmonique apparaît dans le même domaine de fréquence que le mode $m = 2$ sous-harmonique, il en est de même pour les modes $m = 4$ ou 5 harmo-

niques avec le mode $m=3$ sous harmonique. Cela complique un peu l'analyse expérimentale, on a plusieurs modes en même temps, mais leur amplitude est faible. Nous allons donc tenter de faire ressortir différentes caractéristiques particulières des modes non-axisymétriques observés.

IV.3.1 Régime transitoire : temps de montée de l'instabilité

Nous avons suivi la procédure 1. (IV.2.4) pour étudier la croissance de l'amplitude des modes.

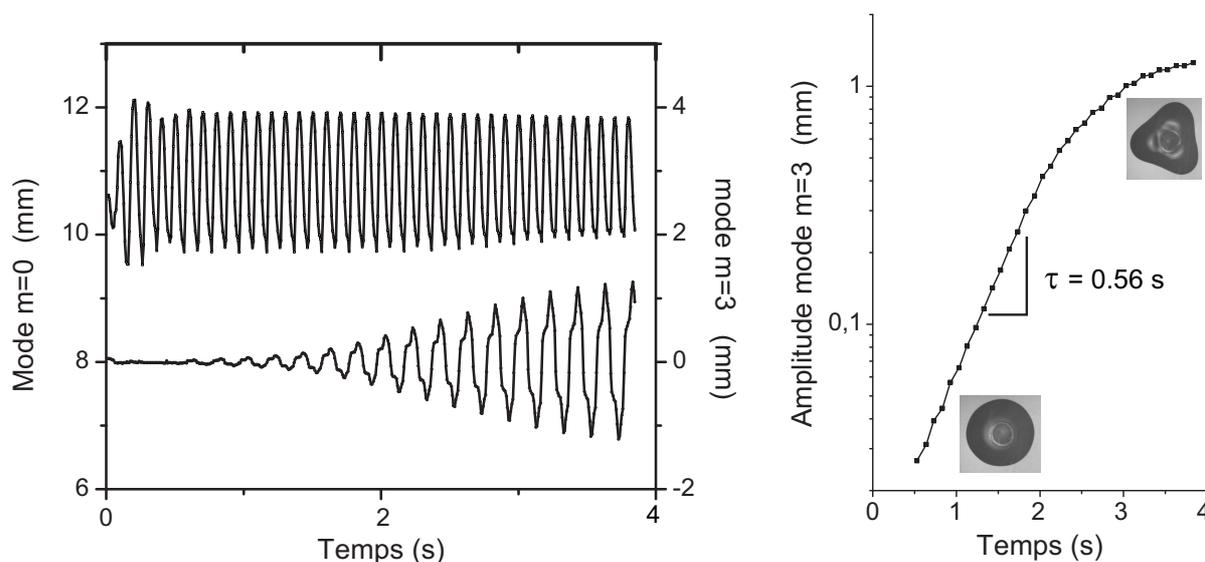


FIG. IV.6 – A gauche : amplitude des modes $m=0$ (en haut, échelle à gauche) et $m=3$ (en bas, échelle à droite) en mm, en fonction du temps, $f=10$ Hz, $\Lambda = 0.69$ g, $R = 10.8$ mm. Le temps $t=0$ correspond au début de l'excitation. A droite : graphique semi-Log représentant l'amplitude crête à crête du mode $m=3$ en fonction du temps. La partie droite est une exponentielle, ensuite on observe la saturation due aux effets non-linéaires.

Sur la Fig. IV.6, nous pouvons voir qu'après le début de l'excitation à $t=0$, le rayon commence à osciller pendant une première période transitoire classique des oscillateurs forcés. On peut même voir l'enveloppe de la courbe $R(t)$ qui présente quelques oscillations dues à la différence entre fréquence naturelle et fréquence forcée. Ensuite les oscillations du rayon atteignent un régime permanent, l'amplitude est constante.

On constate ensuite la croissance du mode $m = 3$ puis sa saturation. Les oscillations ne sont pas sinusoïdales. On voit aussi que l'amplitude du mode $m = 0$ diminue légèrement lorsque celle du mode $m = 3$ devient conséquente. Ce phénomène montre que le couplage qui est très fort du mode $m = 0$ vers le mode $m = 3$, existe aussi dans l'autre sens. Cela complique le traitement expérimental puisque l'amplitude du mode $m = 0$ n'est pas vraiment

un paramètre que l'on maintient fixé comme l'accélération. En tout cas on atteint en général un régime permanent avec une amplitude constante pour les modes $m = 0$ et $m = 3$. Ce sont ces amplitudes que l'on reportera dans les diagrammes d'amplitudes (procédure 2., voir la section suivante). Dans certaines régions du diagramme (f, Λ) , on observe un régime quasi-périodique pour lequel les amplitudes des modes varient plus ou moins lentement.

En traçant en diagramme semi-logarithmique l'amplitude crête à crête du mode $m = 3$, on vérifie que l'on a une croissance exponentielle du mode, avec un temps caractéristique τ ; cela a aussi été vérifié pour le mode $m = 2$. Ce résultat est important et confirme la grande différence entre le mode forcé et harmonique $m=0$ et les modes sous-harmoniques $m=2, 3, 4...$ résultants d'une instabilité. Ensuite on a une saturation de l'amplitude vers une valeur constante due aux effets non linéaires qui tendent à limiter l'amplitude des oscillations.

Nous avons vérifié que le temps de croissance de l'instabilité augmente lorsqu'on se rapproche du seuil par valeurs supérieures. On montre Fig. IV.7 la variation de l'inverse du temps de croissance $1/\tau$ pour le mode $m = 2$ en fonction de la variation du rayon ΔR pour laquelle on utilise le paramètre $3\Delta R/R$. On a aussi tracé $1/\tau$ en fonction de l'accélération en utilisant le paramètre : $3\Lambda/(4g)$. On verra l'utilité de ces deux paramètres dans la suite (IV.4). On a simplement, d'après III.4.7, en basses fréquences : $3\Delta R/R = 3/4 \Lambda/g$.

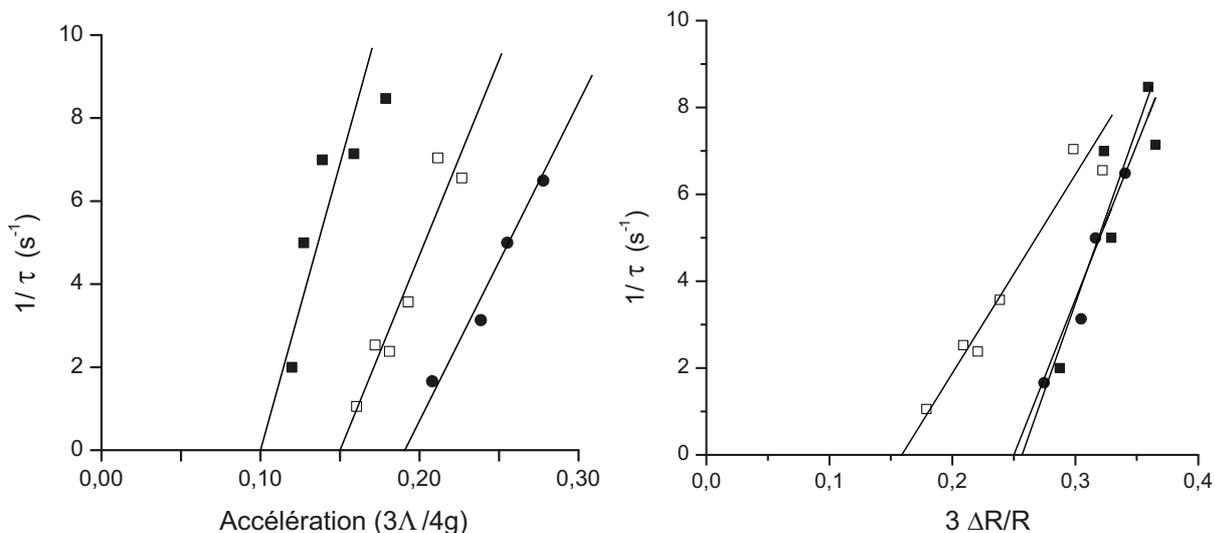


FIG. IV.7 – A gauche : temps de croissance de l'instabilité du mode $m=2$ en fonction de l'accélération ($3\Lambda/4g$) ; ■ : 9.3 Hz, □ : 8 Hz, ● : 7.4 Hz. A droite : idem en fonction de la variation du rayon ($3\Delta R/R$), on a fait figurer un ajustement linéaire pour la courbe à 8 Hz. Téflon, $R=9.3$ mm. ■ : 9.3 Hz, □ : 8 Hz, ● : 7.4 Hz.

On constate que les courbes sont différentes suivant le paramètre utilisé pour les tracer (accélération ou variation du rayon). La variation du rayon utilisée est mesurée dans le régime stationnaire d'oscillation, après le régime transitoire. Nous verrons dans la partie interprétation que la variation instantanée du rayon au début des oscillations est très im-

portante. A grande amplitude, le temps caractéristique devient très faible. Les mesures sont alors difficiles puisque τ devient inférieur à une demi-période d'oscillation.

IV.3.2 Régime stationnaire : amplitude du mode instable

Nous avons suivi la procédure 2. (IV.2.4) pour étudier la variation de l'amplitude des modes avec l'accélération. Selon la taille des gouttes, les modes observés et la fréquence, les diagrammes ont une allure générale commune, mais présentent des différences notamment quant à l'évolution de l'amplitude du mode $m=0$ après l'apparition des modes non-axisymétriques, et à la présence des modes polygonaux harmoniques.

Nous présentons d'abord un diagramme caractéristique de l'amplitude des modes $m = 0$ et $m = 2$ pendant le régime permanent et avec une accélération d'amplitude Λ croissante. (Fig. IV.8). Les amplitudes crête à crête des modes sont normalisées par le rayon moyen de la goutte.

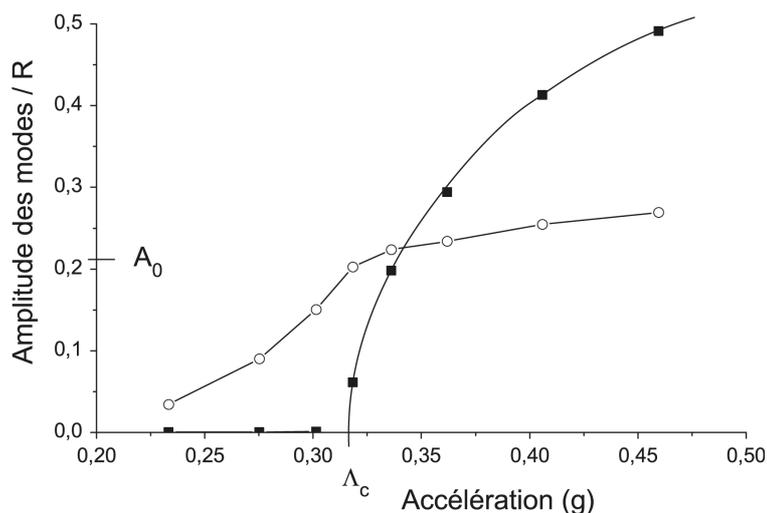


FIG. IV.8 – Diagramme d'amplitude pour de l'eau sur du PS, $f=7.3$ Hz, $R=10.6$ mm. ■ : mode $m=2$, ○ : mode $m = 0$. L'amplitude est normalisée par le rayon de la goutte R .

On constate qu'au-dessus d'une amplitude de l'ordre de 0.2 g le mode $m=0$ voit son amplitude augmenter régulièrement jusqu'à une valeur crête à crête valant environ 20 % du rayon moyen ($\Delta R/R = 0.2$). A cette amplitude, correspondant à l'accélération seuil $\Lambda_c = 0.32g$ apparaît le mode $m=2$. Sa croissance est ensuite rapide, alors que l'amplitude du mode $m=0$ devient quasiment constante du fait du couplage "inverse" entre mode $m=2$ et mode $m=0$ que l'on a déjà évoqué. L'amplitude du mode $m=2$ croît ensuite beaucoup plus lentement. Ce diagramme a l'allure du diagramme de bifurcation classique que l'on attend pour un oscillateur paramétrique.

IV.3.3 Diagramme de stabilité

En traçant des diagrammes d'amplitude à différentes fréquences, on a déterminé à chaque fois les seuils en accélération Λ_c et en amplitude A_0 du mode 0 juste avant l'apparition des modes polygonaux. Cela nous a permis de tracer des diagrammes de stabilité (fréquence-amplitude) définissant les régions pour lesquelles on a apparition des modes polygonaux (zones d'instabilité linéaire). La Fig IV.9 représente de tels diagrammes pour deux substrats différents, pour le mode $m = 2$.

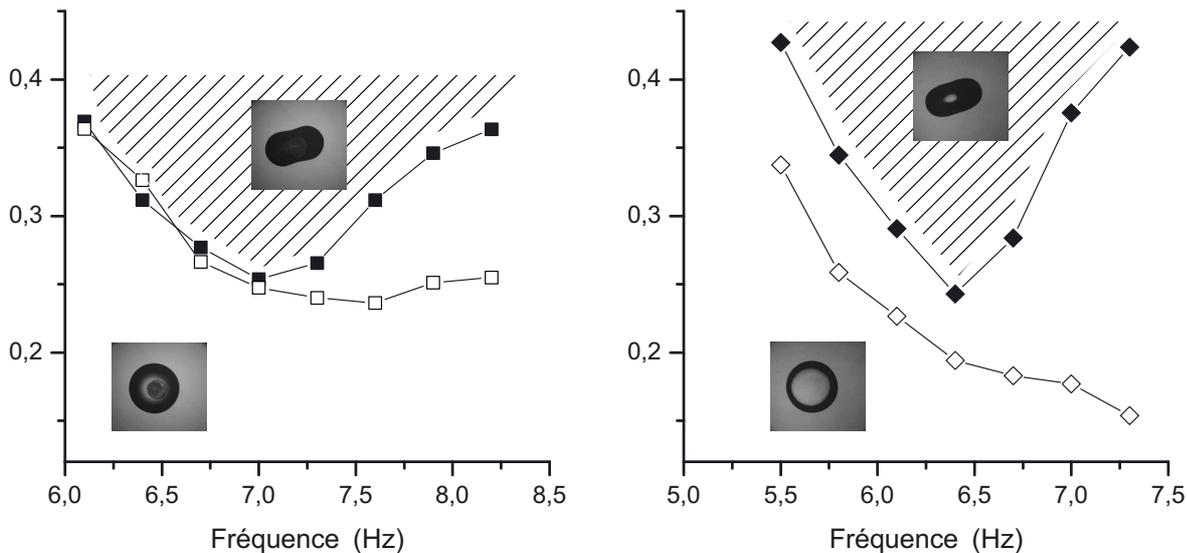


FIG. IV.9 – Diagramme de stabilité : les zones hachurées sont linéairement instables pour le mode $m=2$. A gauche : Eau sur Polystyrène ($\theta_E = 85^\circ$, $H=0.24$, $R=10.6$ mm). A droite : Eau sur Téflon ($\theta_E = 120^\circ$, $H=0.15$, $R=11.2$ mm). Les ■ et ◆ représentent les seuils d'instabilités : $3\Delta R/R$; les □ et ◇ représentent les seuils d'accélération : $3\Lambda_c/4g$.

En utilisant comme précédemment (on en verra la raison en IV.4) l'amplitude de l'accélération $3\Lambda_c/4g$ comme paramètre, les limites de la zone d'instabilité décroissent lorsque la fréquence augmente (symboles vides). Tandis que l'autre courbe (symboles pleins) montrant les valeurs de l'amplitude d'oscillation du rayon $3\Delta R/R$ présente un minimum et ressemble plus à la forme de langue que l'on observe pour les oscillateurs paramétriques. Sous la courbe, la goutte oscille mais reste circulaire, son rayon varie périodiquement. Au dessus de la courbe (zone hachurée) on observe les modes de déformation du contour $m = 2$ qui sont linéairement instables.

D'après le modèle de Yoshiyasu et al. [10], qui fait une hypothèse quasi-statique pour les fluctuations du rayon ($\frac{3\Delta R}{R_{eq}} = \frac{3\Delta g}{4g}$), les deux courbes devraient être identiques. En fait il n'en est rien du fait de la forte dépendance fréquentielle des variations du rayon, ainsi que l'effet de l'hystérésis et de la dissipation visqueuse. i) A basses fréquences, les deux courbes sont effectivement proportionnelles pour les deux substrats ce qui s'explique par le

fait que l'approche quasi-statique est vérifiée pour $\omega < \omega_{k=1}$. Pour le Teflon, la courbe du seuil en accélération est plus basse. Cela s'explique simplement d'après ce qu'on a vu en III.4.7 : la force d'excitation radiale ($A \propto (1 - \cos\theta_E)$) est plus grande et le terme de frottement solide ($\mu \propto H$) est plus faible. ii) A plus hautes fréquences, l'oscillation du rayon présente sa première résonance et une faible accélération est suffisante pour obtenir une grande réponse du mode $m=0$. Si l'on augmente encore la fréquence, on peut observer le mode sous-harmonique $m=3$. Mais au-delà de la zone de résonance du mode $m=0$, à moins d'avoir une excitation très forte, la ligne reste accrochée par le substrat et nous n'avons pu observer aucune fluctuation du contour. Ce point est crucial : pour pouvoir observer les modes de contour, les oscillations du rayon doivent être suffisamment grandes, on doit avoir un accord entre une résonance du mode $m=0$ et le double de la fréquence d'un mode m que l'on veut observer.

Ces diagrammes de stabilité ne sont pas évidents à tracer en fonction de l'amplitude du mode $m=0$ car celle-ci peut varier assez rapidement près du seuil. De plus nous présentons ici des diagrammes pour le mode $m=2$, que l'on peut tracer plus facilement car pour les tailles de gouttes utilisées, la première résonance du mode $m=0$ correspond à celle du mode sous-harmonique $m=2$. Lorsque les résonances du mode $m=0$ et celles des modes m ne se recouvrent que partiellement, le tracé est plus difficile. Des expériences complémentaires seraient nécessaires pour étudier les mêmes diagrammes pour les autres modes $m=3, 4 \dots$

IV.3.4 Effets d'hystérésis de l'amplitude des modes

Nous avons vu que pour chaque fréquence, il existe un seuil en accélération Λ_c au-dessus duquel on observe le mode m qui nous intéresse. Les diagrammes d'amplitude ont l'allure de celui présenté en IV.3.2. Nous avons observé selon la fréquence que la bifurcation associée au phénomène pouvait être supercritique (même comportement lorsque l'amplitude d'excitation augmente et diminue) mais aussi sous-critique, c'est-à-dire que l'on observe un effet d'hystérésis, lorsque l'amplitude est augmentée puis diminuée, on ne décrit pas la même courbe. On continue à observer les modes en diminuant l'excitation à une valeur inférieure au seuil mesuré en augmentant l'amplitude. On a observé ce phénomène de manière notable pour des fréquences supérieures à la résonance du mode de contour. Une étude plus approfondie pourrait déterminer les domaines où le phénomène apparaît, et préciser si la cause est uniquement liée au couplage paramétrique ou si la dynamique particulière du mode $m=0$ entre en jeu. On présente Fig. IV.10 l'amplitude du mode $m=3$ lorsqu'on augmente progressivement l'accélération puis lorsqu'on la diminue.

On vérifie la nette différence de comportement entre l'augmentation et la diminution de l'accélération.

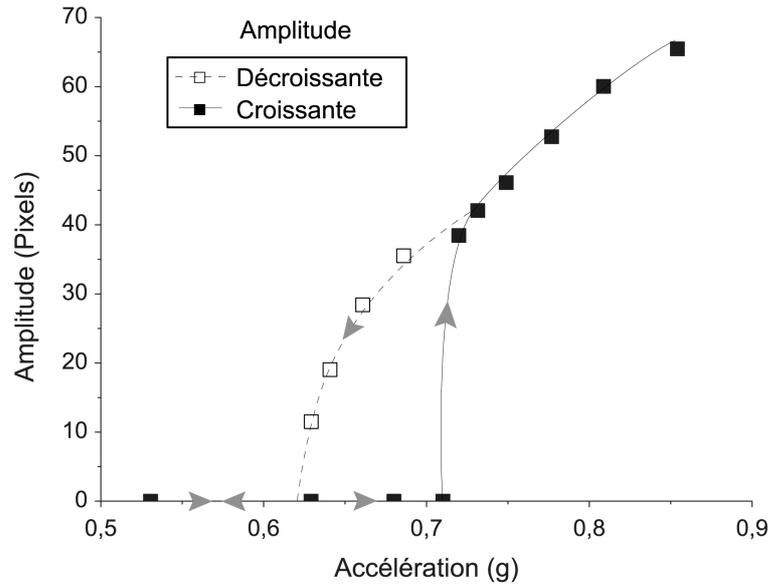


FIG. IV.10 – Amplitude du mode $m=3$ en fonction de l'accélération, eau sur PS, $f=10$ Hz, $R=10.5$ mm. ■ : amplitude croissante, □ : amplitude décroissante. Les courbes sont des guides pour les yeux.

IV.3.5 Modes harmoniques

Nous avons vu que l'on pouvait observer différents modes harmoniques, c'est-à-dire dont la fréquence d'oscillation vaut celle d'excitation. Souvent ces modes apparaissent avant les modes sous-harmoniques lorsqu'on augmente l'amplitude, ils disparaissent lorsque les modes sous-harmoniques ont une certaine amplitude. La dynamique de croissance dans le domaine exploré est différente, elle ressemble fortement à celle du mode $m=0$, c'est-à-dire celle du régime transitoire d'un oscillateur forcé.

IV.3.6 Fréquences de résonance

La détermination précise des fréquences de résonance des différents modes est assez fastidieuse. Il faut tracer pour chaque goutte le diagramme de stabilité en fonction de la variation du rayon. Il faut donc faire varier la fréquence et l'amplitude pour obtenir un nombre suffisant de points qui sont autant de films à réaliser avec la caméra rapide. Une fois le diagramme obtenu, la fréquence est déterminée comme étant la valeur correspondant au minimum de la courbe (seuil le plus faible). La plus grosse difficulté dans la détermination de ces fréquences de résonance, notamment pour les modes m supérieurs à 3, est de pouvoir tracer le diagramme complètement, c'est-à-dire avoir dans la zone de résonance une amplitude suffisante des oscillations du rayon. Ce n'est pas toujours le cas. On a tracé quelques valeurs des fréquences de résonance mesurées pour le mode $m = 2$ en fonction de l'inverse $1/R$ du rayon

maximal de la goutte (Fig. IV.11) pour de l'eau sur du Téflon.

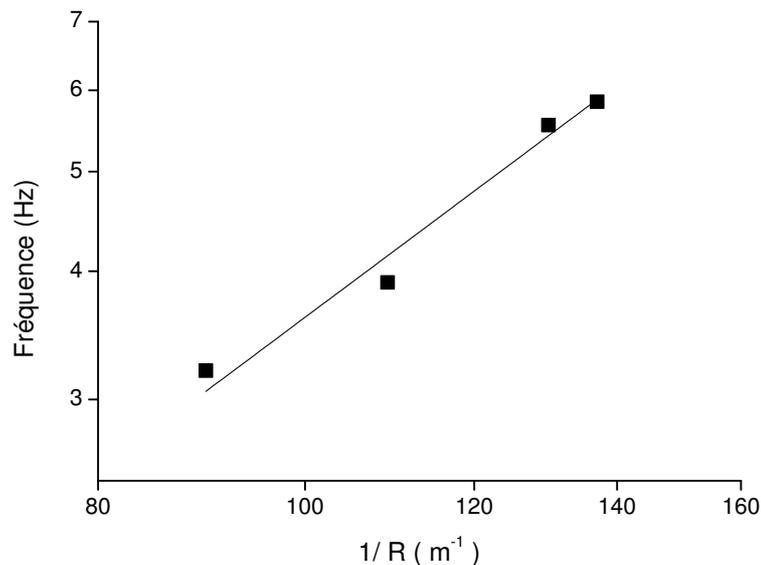


FIG. IV.11 – Fréquence du mode $m = 2$ en fonction de $1/R$, eau sur Téflon. L'ajustement en puissance donne $f = 0.0029 (1/R)^{1.55}$

On trouve un exposant 1.55 proche de l'exposant théorique 1.5. Il faut noter tout de même que le domaine de variation du rayon est assez restreint. Le préfacteur vaut théoriquement 0.0027 S.I. On le calcule en écrivant $f = (1/2\pi)\sqrt{\mathcal{T}m(m^2 - 1)/(\rho e_c)}R^{-3/2}$, $m=2$, e_c et \mathcal{T} sont déduits des relations I.11 et II.8 en prenant $\theta_E = 120^\circ$. Le meilleur ajustement donne une valeur (0.0029) proche de celle donnée par le calcul.

IV.4 Interprétation

Nous avons étudié au chapitre II les modes de fluctuation se propageant le long de lignes triples flottantes pour des longueurs d'onde grandes devant la longueur capillaire et nous avons présenté un calcul théorique des fréquences naturelles de ces modes en géométrie cylindrique pour des flaques flottantes de rayon grand devant la longueur capillaire (II.8). Les fréquences naturelles des modes sur substrat solide se déduisent en retirant simplement le coefficient 2 de la relation II.55 puisqu'il n'y a qu'un liquide à considérer, on a :

$$\omega_m^2 = \frac{\mathcal{T}}{\rho e_c} \frac{m(m^2 - 1)}{R_{eq}^3} \quad (\text{IV.4})$$

Avec \mathcal{T} la tension de ligne macroscopique, m le numéro du mode (correspondant au nombre de lobes), R_{eq} est le rayon d'équilibre de la goutte.

L'utilisation des valeurs théoriques (voir chapitre II) pour \mathcal{T} et e_c permet de calculer en fonction de l'angle de contact les fréquences naturelles des modes (Eq. IV.4). On obtient dans la limite des petits angles la relation : $\omega_m^2 = \frac{\gamma\theta_E}{2\rho} \frac{m(m^2-1)}{R^3}$.

Sans dissipation

Dans l'approximation linéaire, sans dissipation, l'amplitude de chaque mode m est régie par une équation d'oscillateur harmonique :

$$\frac{d^2\alpha_m}{dt^2} + \omega_m^2 \alpha_m = 0 \quad (\text{IV.5})$$

La relation IV.4 nous indique que la fréquence dépend fortement du rayon de la goutte, par conséquent chaque mode m se comporte comme un oscillateur (Eq. IV.5) dont au moins un de ses paramètres varie avec le temps, c'est un oscillateur paramétrique. On a $\omega_m(t)$.

On écrit en première approximation que le rayon de la goutte suit des variations sinusoïdales de petite amplitude : $R = R_{eq} - \Delta R \cos(\omega_e t)$, on a ainsi :

$$\omega_m^2(t) = \omega_m^2(R_{eq}) \left(\frac{R_{eq}^3}{(R_{eq} - \Delta R \cos(\omega_e t))^3} \right) \simeq \omega_m^2(R_{eq}) \left(1 + 3 \frac{\Delta R}{R_{eq}} \cos(\omega_e t) \right) \quad (\text{IV.6})$$

L'équation de l'oscillateur est un cas particulier d'oscillateur paramétrique décrit par l'équation de Mathieu :

$$\ddot{\alpha}_m + \omega_m^2(R_{eq}) (1 + b \cos(\omega_e t)) \alpha_m = 0 \quad \text{avec} \quad b = \frac{3\Delta R}{R_{eq}} \quad (\text{IV.7})$$

Le paramètre b est donc directement relié à l'amplitude des oscillations du rayon que nous avons décrite au chapitre III.

- On a vu qu'à très basses fréquences (voir III.4.7), on avait un régime quasi-statique pour lequel :

$$\frac{3\Delta R}{R_{eq}} = \frac{3a}{4g} \quad (\text{IV.8})$$

- Pour des fréquences quelconques, le paramètre b varie fortement avec la fréquence (résonances centrées autour des fréquences ω_k), on détermine b expérimentalement. Pour pouvoir observer un mode de contour m , la fréquence d'excitation ω_e doit non seulement vérifier $\omega_e \sim 2\omega_m$ mais on doit aussi avoir un accord $\omega_e \sim \omega_k$. Nous avons surtout considéré le cas $k = 1$ discuté au chapitre III, mais on peut observer des modes de contour à fréquences élevées, autour des différentes résonances pour les oscillations du rayon. On a dans la limite des grosses gouttes :

$$\omega_{k=1} \propto \frac{1}{R}$$

Les modes de contour présentent des résonances pour

$$\omega_m \propto \left(\frac{m}{R}\right)^{3/2}$$

Cette différence d'exposant pour le rayon induit donc des comportements différents selon la taille de la goutte, car l'accord entre les différentes résonances change.

Nous décrivons maintenant quelques caractéristiques de l'équation de Mathieu (voir notamment [12]) qui permettent d'interpréter nos résultats.

Sa résolution globale est très complexe. Une propriété importante est l'existence de domaines d'instabilité dans le plan (ω_e, b) . Dans ces différents domaines, on observe un phénomène de résonance qui voit l'amplitude augmenter exponentiellement : c'est la résonance paramétrique. En réalité les oscillations saturent du fait d'effets non linéaires non inclus dans l'équation de Mathieu (IV.7). On considère la résonance principale : elle se produit pour $\omega_e = 2\omega_m$, on note donc $\omega_e = 2\omega_m + \varepsilon$, avec $\varepsilon \ll \omega_m$. On cherche des solutions de la forme : $y = y_0 e^{st} \cos((\omega_m + \frac{\varepsilon}{2})t)$. On trouve au premier ordre en ε [12] :

$$s^2 = \frac{1}{4} \left(\left(\frac{b\omega_m}{2} \right)^2 - \varepsilon^2 \right) \quad (\text{IV.9})$$

La condition de résonance est donnée par s réel, soit :

$$-\frac{b\omega_m}{2} < \varepsilon < \frac{b\omega_m}{2} \quad (\text{IV.10})$$

La résonance paramétrique peut aussi s'observer autour des fréquences $\omega_e = 2\omega_m/n$, avec $n = 1$ (correspondant à la résonance principale), $n = 2$ (mode harmonique), $n = 3, 4, \dots$

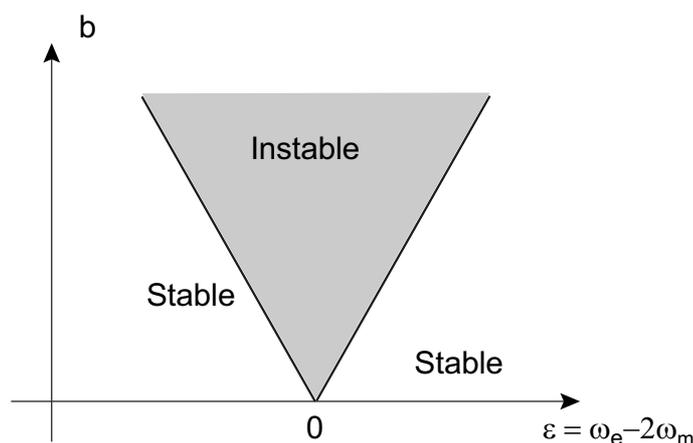


FIG. IV.12 – Diagramme de stabilité pour la résonance principale de l'équation de Mathieu sans dissipation, dans le plan (b, ε) .

On constate à la Fig. IV.9 que le diagramme de stabilité expérimental à l'allure de celui calculé ci-dessus, néanmoins on constate que le seuil le plus bas est nettement supérieur à 0,

c'est le signe d'une dissipation. Dans notre cas celle-ci a deux sources principales : un terme de frottement fluide et un terme de frottement solide.

Effets de la dissipation

On rajoute ainsi deux termes de friction à l'Eq. IV.7 :

i) Une force de dissipation visqueuse, au niveau de la couche limite près du solide, décrite par un terme : $2\lambda\dot{\alpha}_m$.

ii) Une force de friction solide due à l'hystérésis de l'angle de contact, (déjà discutée au chapitre III pour des modes axisymétriques) : $\mu \operatorname{sgn}(\dot{\alpha}_m)$.

En présence de ces deux forces de friction, l'Eq. IV.7 devient :

$$\boxed{\ddot{\alpha}_m + \omega_m^2(R_{eq})(1 + b \cos(\omega_e t)) \alpha_m + 2\lambda\dot{\alpha}_m + \mu \operatorname{sgn}(\dot{\alpha}_m) = 0} \quad (\text{IV.11})$$

On a pour le coefficient b dans le régime quasi-statique :

$$b = \frac{3\Delta R}{R_{eq}} \simeq \frac{3\Lambda}{4g} \sqrt{1 - \left(\frac{4}{\pi} \frac{\mu}{A}\right)^2} \quad (\text{IV.12})$$

où μ est le coefficient de frottement associé à l'hystérésis de l'angle de contact et A l'amplitude de la force radiale induite par les vibrations (proportionnelle à Λ/g). Lorsque $\mu/A \rightarrow 0$, on retrouve le modèle utilisé par Yoshiyasu et al. [10] :

$$\frac{3\Delta R}{R_{eq}} = \frac{3a}{4g} \quad (\text{IV.13})$$

Pour calculer les termes de dissipation, on écrit en loi d'échelle l'équation de la dynamique de fluctuation d'une ligne droite pour un vecteur d'onde q et une déformation u (comme en II.7.1). Le terme inertiel s'écrit : $\rho e q^{-1} \ddot{u}$, la force de rappel élastique vaut : $\mathcal{T} q^2 u$. Pour le terme visqueux, on a : $\eta \dot{u} q^{-1} / \ell_\omega$, où $\ell_\omega = \sqrt{\nu / \omega_m}$ est l'épaisseur de la couche limite. Enfin pour le terme de frottement solide : $(\gamma H / 2) \operatorname{sgn}(\dot{u})$. On a ainsi l'équation :

$$\rho e q^{-1} \ddot{u} + \mathcal{T} q^2 u + \frac{\eta q^{-1}}{\ell_\omega} \dot{u} + \frac{\gamma H}{2} \operatorname{sgn}(\dot{u}) = 0 \quad (\text{IV.14})$$

En divisant par $\rho e c q^{-1}$, on obtient :

$$\ddot{u} + \frac{\mathcal{T} q^3}{\rho e c} u + \frac{\eta}{\rho e c \ell_\omega} \dot{u} + \frac{\gamma H q}{2 \rho e c} \operatorname{sgn}(\dot{u}) = 0 \quad (\text{IV.15})$$

On repasse à la description d'une ligne circulaire en prenant $q \simeq m / R_{eq}$, on retrouve pour les deux premiers termes l'Eq. IV.5. On en déduit par identification les coefficients :

$$\boxed{\lambda = \eta / (2 \rho e c \ell_\omega) = \sqrt{\nu \omega_m} / 2 e c}, \text{ et } \boxed{\mu = (m \gamma H) / (2 \rho e c R_{eq})}.$$

- Frottement fluide

• Dans le cas où $\mu = 0$, le domaine de résonance n'est plus donné par l'Eq. IV.10, on a des solutions de la forme $y = y_0 e^{(s-\lambda)t} \cos((\omega_m + \frac{\varepsilon}{2})t)$, la limite d'instabilité est donnée par :

$$-\sqrt{\left(\frac{b\omega_m}{2}\right)^2 - 4\lambda^2} < \varepsilon < \sqrt{\left(\frac{b\omega_m}{2}\right)^2 - 4\lambda^2} \quad (\text{IV.16})$$

A n'importe quelle fréquence, on doit dépasser un seuil fini pour observer la résonance ($b > 4\lambda/\omega_m$). On montre l'allure dans le diagramme (ω_e, b) du domaine de stabilité de la résonance principale avec frottement fluide Fig. IV.13, d'après l'Eq. IV.16.

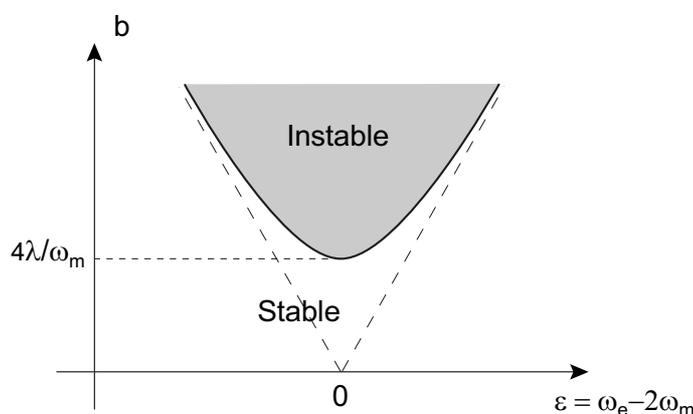


FIG. IV.13 – Diagramme de stabilité pour la résonance principale de l'équation de Mathieu avec frottement fluide, dans le plan (b, ε)

Ce diagramme correspond au diagramme expérimental (Fig. IV.9) mesuré pour le mode $m=2$ sur du polystyrène et du Téflon. On note que les symboles pleins (paramètre $b = 3\Delta R/R$) représentent mieux la forme caractéristique de langue pour le domaine instable. L'accélération n'est pas le paramètre direct pour juger de la stabilité des modes. On note aussi, comme mentionné précédemment que la dissipation visqueuse n'est pas négligeable puisque le seuil minimal est de l'ordre de $b_c = 0.25$. Cela permet de calculer λ pour ces mesures : $\lambda \simeq 0.06 \omega_{m=2} \sim 1.2 \text{ s}^{-1}$. Le calcul (IV.15) donne $\lambda_{th} = 0.6 \text{ s}^{-1}$, l'ordre de grandeur est donc très bon. La différence s'explique vraisemblablement par le fait que l'on n'a pas tenu compte de la dissipation particulière dans le coin de liquide au niveau de la ligne de contact qui augmenterait la valeur de λ_{th} .

D'un point de vue quantitatif, on trouve expérimentalement que les limites asymptotiques des domaines d'instabilité (droites de l'Eq. IV.10) ont une pente plus faible que ce qui est prévu par la théorie (plusieurs dizaines de %). Cela nous indique que l'on observe les modes pour des excitations inférieures à ce qui est prévu. Il est possible que la variation d'angle de contact ou de hauteur de la goutte contribue aussi à l'excitation des modes via

les termes \mathcal{T} et e_c comme le fait la variation du rayon dans notre modèle de base. Un autre problème dont on a déjà parlé (et que l'on abordera de nouveau pour expliquer les valeurs du temps de montée de l'instabilité), est la différence d'amplitude pour $\Delta R/R$ entre le régime transitoire où les modes ont une faible amplitude et le régime permanent. Dans ce régime, une partie de l'énergie injectée excite les modes de contour et l'amplitude de ΔR peut diminuer nettement, ce qui conduit à une mesure des seuils plus faibles, car on a mesuré ces seuils en régime permanent. En réalisant de nouvelles expériences en régime transitoire et en mesurant l'amplitude maximale atteinte par $3\Delta R/R$ au seuil d'instabilité ($3\Delta R_{max}/R$), on a pu déterminer un diagramme de stabilité (Fig. IV.14) en très bon accord quantitatif avec les prévisions théoriques de IV.16.

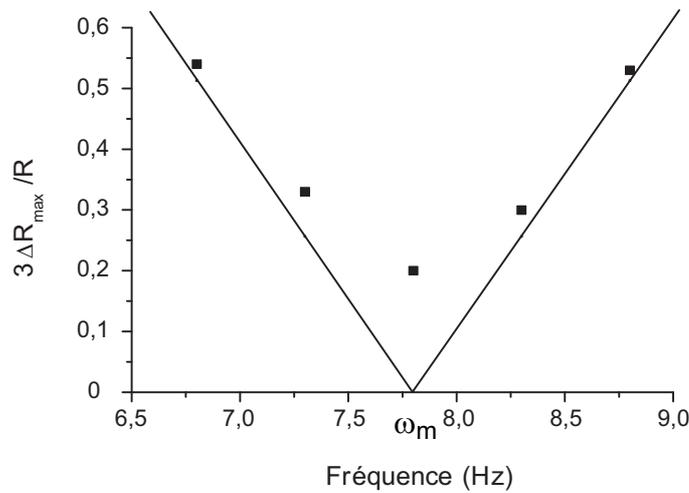


FIG. IV.14 – Eau sur Téflon ($\theta_E = 120^\circ$, $H=0.15$, $R=9.3$ mm). Diagramme de stabilité pour le mode $m=2$: valeur maximale seuil $3\Delta R_{max}/R$ en fonction de la fréquence. Les droites représentent les limites théoriques pour une fréquence de résonance $\omega_{m=2} = 3.9$ Hz données par IV.10.

- s est toujours donné par IV.9, on calcule :

$$s = \frac{\omega_m}{4} \sqrt{b^2 - \left(\frac{2\varepsilon}{\omega_m}\right)^2} \quad (\text{IV.17})$$

Le temps τ de montée de l'instabilité s'écrit ainsi :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{\omega_m}{4} \sqrt{b^2 - \left(\frac{2\varepsilon}{\omega_m}\right)^2} - \lambda \quad (\text{IV.18})$$

On a tracé Fig. IV.15 pour différentes valeurs de ε l'inverse du temps de montée de l'instabilité en fonction de b . Lorsque le coefficient λ varie, on a décalage vers le haut ou le bas de ces courbes, dont on ne considère que la partie positive.

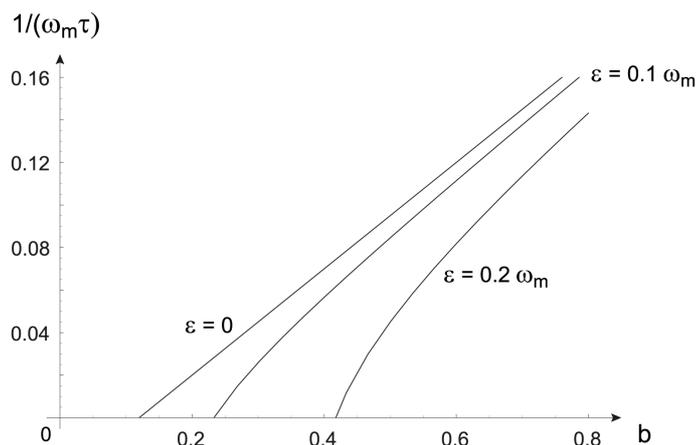


FIG. IV.15 – Temps de montée théorique : $1/(\omega_m \tau) = (s - \lambda)/\omega_m$. On a pris $\varepsilon = 0, 0.1/\omega_m$, et $0.2/\omega_m$. On a $\lambda/\omega_m = 0.03$.

A la Fig. IV.16, on a tracé l'inverse du temps de montée théorique de l'instabilité (axe vertical) en fonction du paramètre b comme précédemment et de ε . L'intersection de cette surface avec le plan $1/\tau = 0$ donne le diagramme de stabilité Fig. IV.13. L'intersection de la surface avec un plan $\varepsilon = \text{constante}$ donne les courbes de la Fig. IV.15.

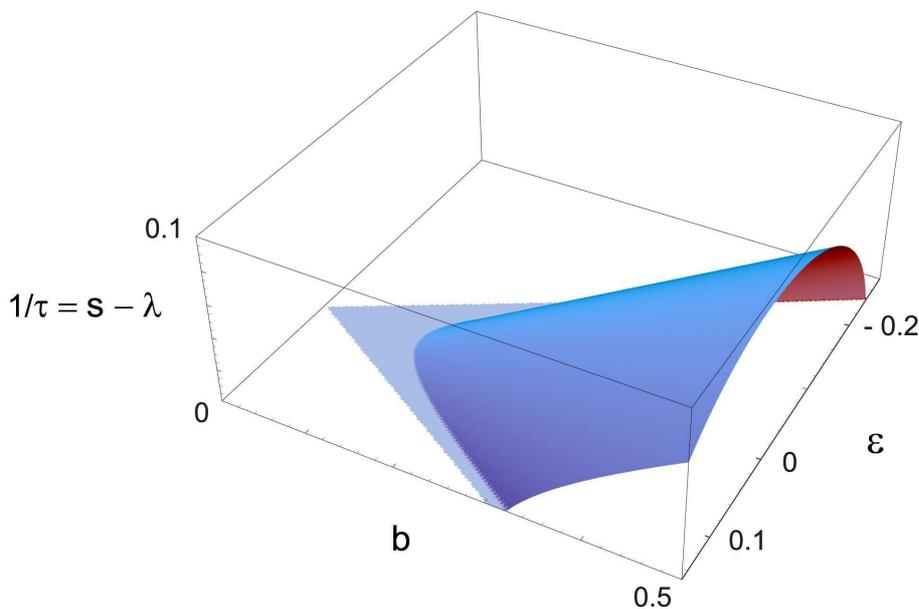


FIG. IV.16 – Temps de montée théorique : $1/\tau$ (axe vertical) en fonction de b et de ε . Une coupe horizontale donne le diagramme de stabilité pour différentes valeurs de λ , une coupe verticale pour ε constant donne le temps de montée en fonction de b .

On trouve pour les temps de montée de l'instabilité, un bon accord qualitatif entre les résultats expérimentaux (Fig. IV.7) et la description théorique ($1/\tau$ fonction de $b = 3\Delta R/R$). L'inverse du temps de montée augmente avec b . La pente est plus faible près de la résonance

($\sim 8\text{Hz}$) que pour les deux autres valeurs (7.4 Hz et 9.3 Hz). Néanmoins, la pente de la droite pour la fréquence 8 Hz vaut environ 40 s^{-1} alors que la valeur théorique donnée par IV.18 est de 6 s^{-1} . Cette grande différence s'explique principalement par le fait que les valeurs pour la variation du rayon ont été mesurées dans le régime permanent qui suit la croissance des modes. Il se trouve que l'amplitude de la variation du rayon au début de la croissance peut-être beaucoup plus grande que dans le régime permanent, comme on l'a discuté précédemment et en IV.3.1. On a donc mesuré la valeur instantanée de $3\Delta R/R$ après le régime transitoire pour les oscillations du rayon, mais avant que le mode de contour n'ait une amplitude trop grande (au début de la période de croissance). Ces mesures sont assez peu précises, on obtient la courbe (Fig. IV.17), analogue à celle de droite de la Fig. IV.7. On trouve des valeurs de $3\Delta R/R$ plus élevées, on mesure alors une pente pour la courbe à 8 Hz valant 14 s^{-1} , ce qui est plus proche de la valeur théorique attendue ici : 6 s^{-1} .

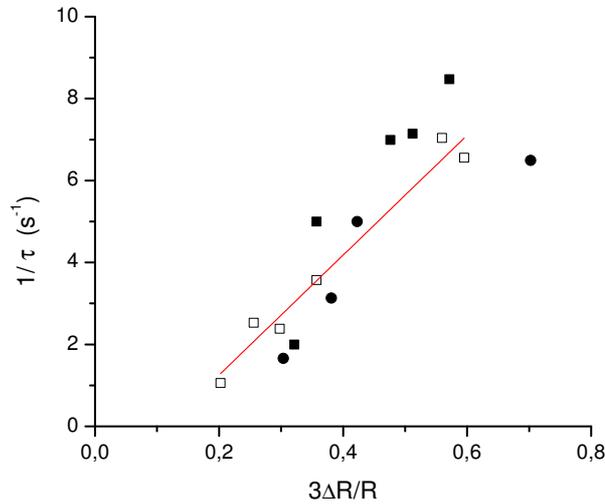


FIG. IV.17 – Temps de croissance de l'instabilité du mode $m=2$ en fonction de la variation du rayon ($3\Delta R/R$). ■ : 9.3 Hz, □ : 8 Hz, ● : 7.4 Hz. On a fait figurer un ajustement linéaire pour la courbe à 8 Hz. Téflon, $R=9.3\text{ mm}$.

- Frottement solide

Le terme de frottement solide n'induit pas une décroissance exponentielle mais linéaire de l'amplitude du mode. On l'a vu au chapitre III, à chaque période, l'amplitude u diminue d'une même quantité. Ainsi on écrit

$$\frac{du}{dt} = su - V \quad (\text{IV.19})$$

avec $V = \frac{2\mu}{\pi\omega_k}$, d'après l'Eq. III.35. La croissance du mode s'écrit donc

$$u - \frac{V}{s} = \left(u_0 - \frac{V}{s}\right) e^{st} \quad (\text{IV.20})$$

On a croissance du mode uniquement si $su_0 > V$. On doit soit avoir au début des oscillations une perturbation d'amplitude u_0 conséquente pour que le mode croisse, soit avoir une valeur élevée de s , c'est à dire être largement au-dessus du seuil.

IV.5 Conclusion et Perspectives

Nous avons étudié les modes de contour d'une goutte soumise à des vibrations verticales. Ces modes réguliers, caractérisés par leur nombre de lobes m sont identiques aux modes se propageant le long d'une ligne triple, étudiés au chapitre II. Dans le cas du substrat solide, ces modes sont très difficilement observables car la ligne est piégée par l'hystérésis de l'angle de contact, surtout aux grandes longueurs d'ondes. Nous avons vérifié que les effets de l'hystérésis peuvent être réduits grâce à l'énergie apportée par les vibrations.

Nous avons étudié quantitativement l'amplitude des modes en faisant varier la fréquence f , l'accélération Λ et le rayon des gouttes R . On a pu mesurer différentes caractéristiques de ces oscillations, qui correspondent à celles d'un oscillateur paramétrique. Les modes principaux observés sont sous-harmoniques, leur fréquence valant la moitié de la fréquence d'excitation (résultat déjà observé par Yoshiyasu et al. [10]). Ils n'apparaissent qu'au-dessus d'un seuil en accélération dépendant de la fréquence. Leur amplitude croît alors exponentiellement avec un temps caractéristique d'autant plus long que l'on s'approche du seuil par valeurs supérieures. L'amplitude des oscillations en fonction de l'amplitude d'excitation a l'allure d'un diagramme de bifurcation classique. Ces diagrammes fournissent pour chaque fréquence la valeur du seuil d'instabilité. Rassemblés sur un graphique fréquence-amplitude, on obtient un diagramme de stabilité qui a une forme de langue caractéristique de l'oscillateur paramétrique (Fig. IV.12).

Nous avons interprété théoriquement le rôle du frottement solide sur l'instabilité paramétrique (IV.20). Ce traitement n'existe pas à notre connaissance dans la littérature.

Durant les oscillations, certaines parties de la ligne avancent quand d'autres reculent, cela peut expliquer les variations non sinusoïdales (même à faible amplitude) de l'amplitude du mode α_m . Il serait donc intéressant de mener une étude locale sur le mouvement particulier de la ligne de contact.

Nous avons pu observer les modes pour un angle de contact aussi faible que 50° en utilisant de l'éthanol sur les substrats en Téflon. Une étude complémentaire pourrait s'attacher à mesurer la dépendance en fonction de l'angle de contact des fréquences de résonances.

Nous avons aussi observé des modes oscillant à la fréquence d'excitation (harmoniques). Des expériences supplémentaires seraient nécessaires pour étudier plus précisément les régions où apparait un phénomène d'hystérésis pour l'amplitude des modes (différent de l'hystérésis de l'angle de contact). On préciserait ainsi le caractère super critique (pas d'effet d'hys-

térésis pour l'amplitude des modes) ou sous critique (effet d'hystérésis) de la bifurcation. Différents phénomènes intéressants restent à étudier (oscillations quasi-périodiques, doublement de période, compétition entre modes harmoniques et sous-harmoniques ou entre modes sous-harmoniques de nombre m différent...).

Bibliographie

- [1] Noblin X., Buguin A., and Brochard-Wyart F., *Langmuir* 18, 9350 (2002).
- [2] Noblin X., Buguin A. and Brochard-Wyart F., *Eur. Physical Journal E*, 14, 4, 395 (2004)
- [3] Biance A.L., Quéré D., *Physics of Fluids*, (2002)
- [4] Adachi K. and Takaki R. *Journal of the Physical Society of Japan* 53 (12) 4184.(1984)
- [5] Strier D.E., Duarte A.A., Ferrari H. and Mindlin G.B. *Physica A* 283, 261 (2000)
- [6] Adachi K. and Takaki R. *Journal of the Physical Society of Japan* 54 (7) 2162.(1985)
- [7] Aussillous P. and Bergeron, V., *Personnal communication*.
- [8] Fautrelle Y. and Etay J., *J. Phys. IV France* 11, 6-43 (2001).
- [9] Vukasinovic B. et al. *Phys. Fluids* 13 (S14) (2001).
- [10] Yoshiyasu N. et al. *Journal of the Physical Society of Japan* 65 (7) 2068 (1996).
- [11] de Gennes P.G., Brochard-Wyart F., and Quéré D. *Gouttes, bulles, perles et ondes*. (Belin, Paris, 2002)
- [12] L. Landau, E. Lifchitz ; *Mécanique* (4^{ème}ed. (ed. Mir, 1982).

Chapitre V

Démouillage Inertiel Liquide/Liquide

Sommaire

V.1 Introduction	129
V.2 Dispositif de démouillage	133
V.2.1 Matériel	133
V.2.2 Procédure expérimentale	133
V.2.3 Méthode de mesure de l'épaisseur	135
V.2.4 Méthodes de visualisation	138
V.3 Loi d'ouverture $R(t)$	141
V.3.1 Tétrachlorure de carbone	141
V.3.2 Perfluorodécane	142
V.3.3 Interprétation	146
V.4 Ondes de surface générées par le démouillage	149
V.4.1 Rappel : Ondes de capillarité-gravité à la surface d'un bain de liquide	149
V.4.2 Pourquoi un choc ?	151
V.4.3 Caractéristiques des ondes pour notre système	152
V.4.4 Observations	153
V.5 Conclusion et Perspectives	158
Bibliographie	159

V.1 Introduction

Nous allons étudier ici le démouillage à très grande vitesse d'un film d'eau à la surface d'un liquide. Sur la surface d'un solide, le démouillage crée un choc hydraulique, et des ondes capillaires accompagnent le bourrelet de liquide qui borde la zone sèche. On va voir que sur un liquide, on peut observer une cascade de chocs, accompagnée d'ondes se propageant vers l'extérieur et l'intérieur du trou (dans le référentiel du bourrelet). Nous rappelons ici le cas de l'eau démouillant un solide hydrophobe

i) Démouillage Liquide/Solide. Le démouillage d'un liquide A sur un solide B par nucléation et croissance d'un trou a été étudié en régime visqueux [1],[2] et en régime inertiel [3],[4]. En-dessous de son épaisseur critique e_c , un film est métastable. Lorsqu'on réalise un trou suffisamment grand dans le film, il continue à s'ouvrir. Le rayon critique de nucléation R_c (discuté en [5]), au-delà duquel un trou continue à s'ouvrir est de l'ordre de l'épaisseur e du film, $R_c \sim e$. En-dessous de ce rayon, l'énergie pour créer le bords du trou est supérieur à l'énergie de surface, fournie par le démouillage.

La loi de vitesse s'obtient par application du Principe Fondamental de la Dynamique à la masse contenue dans le bourrelet qui récolte l'eau (par unité de longueur de la ligne). Les deux forces qui agissent sont la force motrice du démouillage : F_M , et la force visqueuse qui tend à le ralentir : F_V . On a avec P la quantité de mouvement du bourrelet :

$$\frac{dP}{dt} = F_M - F_V \quad (\text{V.1})$$

- La force motrice F_M s'écrit : $F_M = -S$ (on corrige cette valeur pour tenir compte des valeurs élevées de l'épaisseur (proches de e_c) : $F_M = -S - \frac{1}{2}\rho g e^2 = -\tilde{S}$).
- Pour la force visqueuse, On a vu qu'elle s'écrivait [2] : $F_V = \frac{3\ell}{\theta_D}\eta V \sim \eta V$.
- La quantité de mouvement du bourrelet s'écrit $P = MV$ avec $M = \rho R e$ pour un bourrelet à une dimension. On a ainsi, en supposant la vitesse constante : $\frac{dP}{dt} = \rho e V^2$.

Le rapport du terme inertiel à la force visqueuse vaut donc : $\rho e V / \eta = eV / \nu$. On définit ainsi un nombre de Reynolds : $R_e^S = eV / \nu$.

◦ En régime visqueux, le terme dP/dt est négligeable devant la force visqueuse F_V : $\rho e V^2 \ll \eta V$ soit : $R_e^S \ll 1$. On a alors égalité entre la force motrice et la force visqueuse : $F_M = F_V$ et :

$$V = cste \frac{|\tilde{S}|}{\eta} \quad (\text{V.2})$$

Cette loi a été bien vérifiée expérimentalement [1].

◦ En régime inertiel, la force visqueuse F_V est cette fois-ci très petite devant le terme inertiel dP/dt , soit $R_e^S \gg 1$. On a $dP/dt = |\tilde{S}|$, soit : $\rho e V^2 = |\tilde{S}|$, l'hypothèse de vitesse constante est bonne, on a donc :

$$V = \sqrt{\frac{|\tilde{S}|}{\rho e}} \quad (\text{V.3})$$

Cette relation est bien vérifiée expérimentalement si l'on utilise une valeur dynamique du paramètre d'étalement \tilde{S}_d inférieure d'environ 50% à la valeur statique [4].

Au croisement entre les deux régimes, on écrit que les deux vitesses (visqueuse et inertielle) sont égales : $S/(\rho e) = S^2/\eta^2$, qui correspond à une épaisseur : $e = \tilde{e} = \eta^2/(\rho|S|)$. Pour $e < \tilde{e}$ on sera en régime visqueux, pour $e > \tilde{e}$ on sera en régime inertiel. Pour de l'eau,

avec un paramètre d'étalement de quelques dizaines de mN/m on trouve une épaisseur limite inférieure au dixième de micron. Le démouillage de films macroscopiques d'eau sur un substrat solide sera donc inertiel.

La vitesse de démouillage calculée est celle de l'arrière du bourrelet : V . Durant le démouillage, l'avant du bourrelet progresse plus rapidement, à une vitesse V^* . Soit l la largeur du bourrelet, on a (toujours à une dimension) $V^* = V + dl/dt$. Ce régime de démouillage rapide (dizaines de cm/s) permet d'observer des ondes de choc en avant du bourrelet lorsque la vitesse V^* dépasse la vitesse de phase c_φ des ondes de surface [3],[4]. Le nombre sans dimension adapté pour déterminer s'il y a un choc ou non est le nombre de Froude. Dans le cas du démouillage sur substrat solide, les ondes sont en eau peu profonde, pour un vecteur d'onde k on a $c_\varphi = \sqrt{ge}(1 + k^2\kappa^2)$, la vitesse minimale des ondes de surface est donc : \sqrt{ge} . le nombre de Froude est défini par le rapport : $Fr = V^*/\sqrt{ge}$. Pour $Fr > 1$, on aura un choc et pour $Fr < 1$ on n'aura pas de choc.

On a traité pour déterminer les cinétiques de démouillage, le cas d'un bourrelet s'ouvrant à une dimension. Dans le cas d'un bourrelet à deux dimensions (circulaire), on applique le Principe Fondamental à un secteur infinitésimal de largeur $Rd\theta$, on retrouve les mêmes lois V.2 et V.3. En effet, les effets de courbure ne sont importants que pour des rayons proches du rayon de nucléation (donc de l'ordre de l'épaisseur du film).

ii) Démouillage Liquide/Liquide

On considère maintenant l'ouverture d'un trou dans un film de liquide A flottant sur un liquide B substrat. On écrit comme précédemment le Principe Fondamental de la Dynamique pour un bourrelet à une dimension :

$$\frac{dP}{dt} = F_M - F_V \quad (\text{V.4})$$

- La force motrice s'écrit : $F_M = |\tilde{S}_l| = -S - 1/2\tilde{\rho}ge^2$, où $\tilde{\rho}$ est donnée par : $\frac{\rho_A}{\rho_B}(\rho_B - \rho_A)$.
- Le terme inertiel s'écrit : $dP/dt = d(MV)/dt = \rho_A eV^2$.
- Pour la force visqueuse, plusieurs cas sont possibles, selon que la dissipation a lieu principalement dans le liquide substrat (B) ou dans le liquide qui démouille (A) [6]. Tous les régimes sont décrits dans [7].

i) Comportement "substrat solide". Lorsque le liquide substrat B est beaucoup plus visqueux que le liquide A, on a un comportement de substrat solide, et la dissipation se produit dans le coin de liquide démouillant. Comme sur substrat solide, on écrit alors, avec η_A la viscosité du liquide A : $F_V \sim \eta_A V$. En comparant avec le terme inertiel : $dP/dt = \rho_A eV^2$, on définit le nombre de Reynolds : $R_e^A = Ve/\nu_A$. Pour $R_e^A \gg 1$, on sera en régime inertiel et pour $R_e^A \ll 1$ en régime visqueux avec des lois de vitesse analogues à celles pour le substrat

solide :

$$\text{régime visqueux : } \boxed{V = \frac{|\tilde{S}_l|}{\eta_A}} \quad , \quad \text{régime inertiel : } \boxed{V = \sqrt{\frac{|\tilde{S}_l|}{\rho_A e}}} \quad (\text{V.5})$$

ii) Comportement "substrat liquide". Lorsque les liquides ont une viscosité équivalente, ou bien inférieure pour le substrat B, la dissipation visqueuse a lieu au sein du liquide B. On note d la distance caractéristique de diffusion visqueuse dans le liquide B et ℓ la largeur du bourrelet. L'épaisseur de cette couche de diffusion s'exprime par : $d \simeq (\nu_B \ell / V)^{1/2}$. Le rapport ℓ/d s'écrit donc : $\ell/d = (V \ell / \nu_B)^{1/2} = (R_e^B)^{1/2}$, avec le nombre de Reynolds : $\boxed{R_e^B = V \ell / \nu_B}$, calculé avec la largeur du bourrelet et la viscosité du substrat.

◦ Pour $R_e^B \ll 1$, on est en régime purement visqueux, on a $d \gg \ell$, et la force visqueuse s'écrit : $F_V = \eta_B V$. La loi de vitesse s'écrit :

$$\boxed{V = \frac{|\tilde{S}_l|}{\eta_B}} \quad (\text{V.6})$$

◦ Pour $R_e^B \gg 1$, on se trouve en régime visco-inertiel ou inertiel, $d \ll \ell$, et la force visqueuse s'écrit : $F_V = \eta_B \frac{\ell}{d} V$, donc $F_V = (\rho_B \eta_B \ell)^{1/2} V^{3/2}$. On a deux régimes possibles selon la taille du bourrelet. En écrivant au croisement des régimes : $F_V(V = |\tilde{S}_l| / \rho_A e) = F_M = |\tilde{S}_l|$, on obtient :

- pour $\underline{\ell} > \underline{\ell}'_c = |\tilde{S}_l|^{1/2} \rho_A^{3/2} e^{3/2} / (\eta_B \rho_B)$, on néglige le terme inertiel, on a un régime visco-inertiel où l'ouverture n'est plus à vitesse constante mais varie selon :

$$\boxed{R \propto t^{6/7} e^{-1/7}} \quad (\text{V.7})$$

- pour $\underline{\ell} < \underline{\ell}'_c$, on néglige la force visqueuse, on a le régime inertiel donné par :

$$\boxed{V = \sqrt{\frac{|\tilde{S}_l|}{\rho_A e}}} \quad (\text{V.8})$$

Le cas correspondant au démoillage inertiel sur un substrat liquide n'a jamais été étudié. Nous nous sommes intéressé à cette situation.

On considérera en général un film d'eau (A) d'épaisseur e flottant sur un liquide non miscible (B) plus dense. Dans certaines expériences, l'eau est remplacée par une solution aqueuse de colorant. Le paramètre d'étalement S de A sur B est très négatif (Parfois inférieur à -100 mN/m). Le film d'eau est donc métastable en dessous de l'épaisseur critique e_c donnée par (Eq. 1.26) : $-S = \frac{1}{2} \tilde{\rho} g e_c^2$. On étudie le démoillage par nucléation et croissance d'un trou dans le film d'eau ; l'eau qui démoille est collectée dans un bourrelet dont l'arrière progresse à la vitesse de démoillage. Pendant le démoillage, le bourrelet délimite deux

régions différentes : en arrière une interface de tension γ_B et en avant un film d'eau recouvrant le substrat B (de tension effective $\widetilde{\gamma}_B$, voir II.14). On va donc pouvoir avoir deux types d'ondes de surface se couplant au bourrelet, en avant et en arrière au lieu des seules ondes en avant pour le démoillage sur solide.

Le substrat liquide présente l'intérêt d'avoir un hystérésis nul, ce qui rend les phénomènes à la ligne de contact moins complexes. Néanmoins la description est plus compliquée du fait des écoulements induits dans le substrat et du mouvement possible de trois interfaces au lieu d'une.

Nous décrivons d'abord le dispositif expérimental général utilisé dans ces expériences. Ensuite nous détaillons les mesures relatives à la cinétique du démoillage que nous interprétons. Dans une dernière partie nous étudions les ondes générées par le choc à grande vitesse.

V.2 Dispositif de démoillage

V.2.1 Matériel

Pour étudier le démoillage, nous avons utilisé des boîtes de Pétri en verre de diamètre 150 et 200 mm. Celles-ci sont lavées avec une solution commerciale à base de tensioactifs (Micro 90) puis à l'isopropanol et rincées à l'eau ultra pure.

Comme pour les expériences du chapitre II, nous avons utilisé dans un premier temps comme liquide substrat du tétrachlorure de carbone (CCL_4 , Prolabo/Normapur, pureté > 99.9 %) puis de la Perfluorodécane ($C_{10}F_{18}$, notée PFD, Interchim, Pureté > 99%) dont on rappelle ci-dessous les grandeurs importantes.

V.2.2 Procédure expérimentale

Pour réaliser une expérience de démoillage, on dépose d'abord une épaisseur de 10 à 15 mm de liquide substrat dans la boîte de Pétri, qui servira pour plusieurs expériences de démoillage. Entre chaque expérience, on ne change que le liquide démoillant (l'eau ou la solution de colorant). A l'aide d'une pompe reliée à un réservoir d'eau, on dépose l'eau sur le substrat par le bord. Une flaque grossit avec un trou circulaire se refermant au fur et à mesure que le volume d'eau augmente. On arrête le remplissage lorsque la flaque s'est refermée et que l'eau recouvre tout le substrat. On a donc déposé un film d'épaisseur environ égale à e_c . On aspire ensuite la quantité d'eau voulue pour diminuer l'épaisseur du film d'eau à une valeur e que l'on mesure (on verra plus loin comment). Le dispositif d'aspiration et de remplissage consiste en un embout de seringue qui plonge dans le ménisque d'eau. Un

TAB. V.1 – Grandeurs importantes des liquides utilisés à 25 °C.

Couples	γ_{ij} ($mN.m^{-1}$)	ρ ou $\tilde{\rho}$ ($kg.m^{-3}$)	κ_{ij}^{-1} (mm)	η (Pa.s)
Eau / Air	72	998	2.71	$1 \cdot 10^{-3}$
Eau / CCl4	45	371	2.79	
CCl4 / Air	27	1590	1.32	$0.9 \cdot 10^{-3}$
$S = -90 mN.m^{-1}$				
$e_c = 7.03 mm$				
Eau / PFD	55(51)	477	2.39	
PFD / Air	17.6	1910	0.95	$5.1 \cdot 10^{-3}$
$S = -109 mN.m^{-1}$				
$e_c = 6.82 mm$				

système de vanne permet l'alimentation en eau pure ou son aspiration. L'eau mouille les parois du récipient qui doivent être sans défauts pour ne pas initier le démouillage par un point du bord. On décrit sur la Fig. V.1 le schéma expérimental.

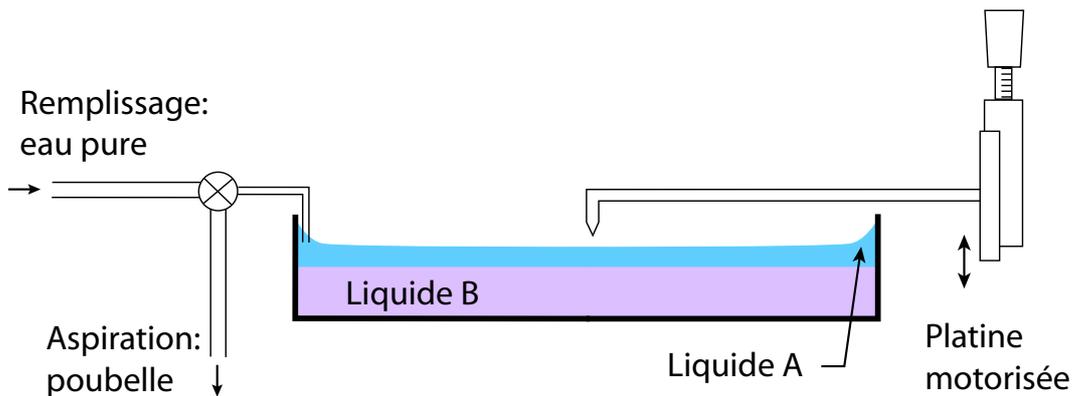


FIG. V.1 – Montage expérimental pour le démouillage.

On est alors prêt pour le démouillage proprement dit. Une tige de Téflon de 3 mm de diamètre avec un embout conique est enfoncée lentement dans le film d'eau jusqu'au niveau de l'interface avec le liquide substrat B. Au moment où la tige touche le liquide B, un ménisque se forme et remonte le long du cône. Si celui-ci remonte jusqu'au niveau de l'interface Eau/Air, on a formation d'un trou dans le film d'eau. Ce trou continue à s'ouvrir spontanément et conduit au démouillage si son rayon au départ est supérieur au rayon critique de nucléation R_c .

Dans notre cas le liquide substrat mouille bien mieux le Téflon que l'eau et forme un ménisque conséquent. Ainsi avec notre tige le rayon du trou est supérieur au rayon critique R_c pour les épaisseurs étudiées (0.2 à 3 mm).

Lors du dé mouillage, l'eau est collectée dans un bourrelet qui forme à la fin une couronne d'eau plus ou moins large selon l'épaisseur e . Pour les épaisseurs très faibles, quasiment tout le substrat se retrouve nu. Après le dé mouillage, on recouvre le substrat d'eau et l'on est prêt à recommencer une nouvelle expérience.

V.2.3 Méthode de mesure de l'épaisseur

La mesure de l'épaisseur est très importante, c'est le paramètre principal que l'on fait varier, en gros de 0.1 à 3 mm. Sa détermination sur substrat liquide est plus compliquée que sur substrat solide. La méthode employée dans les expériences sur solide consistait à utiliser une tige verticale reliée à une platine de translation pour mesurer la hauteur de l'interface Eau/Air. En soustrayant à cette valeur la hauteur du substrat, on obtenait l'épaisseur du film. La mesure de la hauteur de l'interface s'effectuait par lecture des graduations de la platine au moment du contact de la tige avec l'interface (apparition d'un ménisque). Ensuite, en soustrayant la hauteur fixe du substrat on obtenait l'épaisseur du film [1].

Dans notre cas la mesure est moins simple car il faut mesurer les hauteurs des deux interfaces Eau/Liquide B et Eau/Air. La première varie entre la situation avant dé mouillage et celle après, à la différence du solide ; s'ajoute à cela la diminution due à l'évaporation du liquide substrat entre les différentes expériences. Nous avons utilisé trois méthodes de mesure que nous présentons maintenant.

- La première méthode correspond à une évolution de la méthode de la tige utilisée pour le substrat solide. Il faut mesurer deux hauteurs à chaque fois : celle de l'interface Eau/Air mais aussi celle de l'interface Eau/Liquide B qui varie. La mesure de la hauteur Liquide B/Air juste après dé mouillage ne donne pas d'information utilisable car celle-ci dépend du volume d'eau dé mouillé de façon non-négligeable. Une tige en Téflon reliée à une platine de translation Micro-Contôle selon l'axe vertical sert à mesurer la hauteur des deux interfaces et à nucléer le dé mouillage. Cette platine est motorisée via un moteur à courant continu piloté à la main. On a une lecture directe via la carte d'acquisition de la hauteur de la tige grâce à un potentiomètre de précision 10 tours, 1 mV correspond à 1 micron. On mesure d'abord la hauteur de l'interface A/B en descendant la tige jusqu'à voir un ménisque se former lorsque l'épaisseur d'eau est grande (proche de e_c). La tige est remontée, puis on vide la quantité d'eau voulue. On descend alors la tige pour mesurer la hauteur de l'interface A/air, on en déduit l'épaisseur du film e . La mesure de la hauteur de l'interface Eau/Air est assez difficile sachant que l'eau ne mouille pas le Téflon, il n'y a quasiment pas de ménisque qui se forme au contact. La méthode utilisée, assez longue, consiste à descendre et remonter la tige pour voir si un ménisque s'est créé ou non. Une fois l'épaisseur mesurée, on fait descendre lentement la tige pour provoquer le dé mouillage.

La précision de la méthode est de l'ordre de $10 - 20 \mu m$, le temps de mesure est assez long



FIG. V.2 – Mesure de l'épaisseur avec la tige initiant le démoillage. i) On mesure la hauteur de l'interface A/B pour une épaisseur de A proche de e_c . ii) On retire le volume d'eau voulu puis on mesure la hauteur de l'interface A/Air. On en déduit par différence l'épaisseur e .

(quelques minutes en tout) et on ne peut pas ajuster le volume d'eau à une valeur désirée en même temps que l'on aspire.

- La seconde méthode consiste à utiliser un colorant soluble uniquement dans l'eau qui permet d'avoir directement à tout instant l'épaisseur du film. On a choisi un dérivé du bleu de Méthylène : le "New Methylen Blue", ou Basic Blue 24. Ce colorant absorbe fortement autour de 630 nm, ainsi l'intensité d'un faisceau Laser Helium-Néon (632.8 nm) diminue notablement à la traversée de la solution de colorant. De faibles concentrations sont suffisantes pour avoir une variation de l'intensité mesurable lorsque l'épaisseur varie. On a vérifié que dans le domaine de concentration utilisé, l'intensité absorbée est donnée par la loi de Beer-Lambert :

$$I = I_0 e^{-\alpha e} \quad \text{soit :} \quad e = \frac{1}{\alpha} \text{Ln} \left(\frac{I_0}{I} \right) \quad (\text{V.9})$$

Cette méthode n'a été utilisée qu'avec la PFD. On mesure le coefficient α en mesurant le rapport des intensités pour différentes épaisseurs (elles-même mesurées avec la première méthode). La pente en diagramme semi-Log de l'intensité collectée en fonction de l'épaisseur donne α , sans avoir besoin de connaître la référence en intensité I_0 . On mesure pour une concentration de 20 mg/L (10^{-5} Mol/L), $\alpha = 0.37 \text{ mm}^{-1}$.

A priori, une correction doit être apportée pour la mesure de l'épaisseur du fait des différents coefficients en transmission T_{ij} en intensité à la traversée des différentes interfaces fluides (B/Air ou B/A + A/Air). Dans notre cas cette correction est très faible car les indices de l'eau et de la PFD sont très proches : $n_A = 1.33$ et $n_B = 1.313$. On calcule pour ces valeurs :

$$e = \frac{1}{\alpha} \text{Ln} \left(\frac{I_0}{I} \right) - \frac{0.0008}{\alpha} \simeq \frac{1}{\alpha} \text{Ln} \left(\frac{I_0}{I} \right) \quad (\text{V.10})$$

On doit retirer à l'épaisseur calculée une valeur constante, qui vaut environ $2 \mu\text{m}$ pour $\alpha = 0.37 \text{ mm}^{-1}$. La correction est donc très faible et sera négligée.

Pour la mesure d'épaisseur lors des expériences de démoillage, on mesure la référence I_0 lorsque le substrat est nu (avant remplissage par l'eau). Le dispositif optique de mesure est schématisé Fig. V.3.

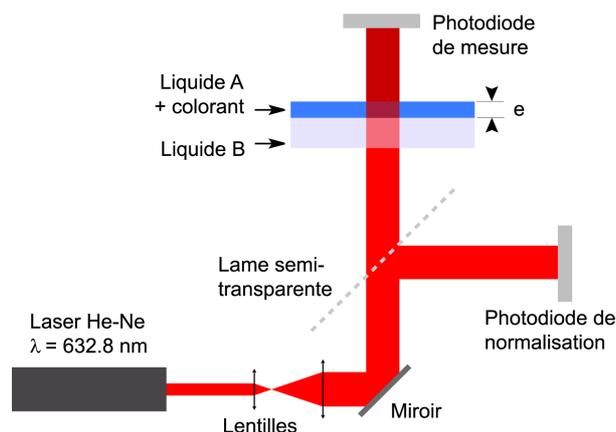


FIG. V.3 – Mesure de l'épaisseur par absorption : méthode 2.

On utilise un Laser Helium-Néon (Uniphase, 5 mW) en transmission. Un doublet afocal de lentille permet d'élargir le faisceau, tout en le laissant parallèle. Sa section est de l'ordre de 5 mm^2 au lieu de 1 mm^2 pour le Laser seul, cela diminue le bruit sur la mesure car on moyenne sur une surface plus grande. On mesure l'intensité transmise avec une photodiode de 20 mm^2 associée à un convertisseur courant tension dont le signal est envoyé à l'ordinateur. La mesure de l'intensité transmise est normalisée à l'aide d'une photodiode de contrôle pour s'affranchir des variations d'intensité du Laser. On utilise pour cela la même lame semi-transparente qui sert pour la visualisation du démoillage.

La précision absolue dépend notamment de la détermination du coefficient α , elle est de l'ordre de $10 \mu\text{m}$.

- Nous avons utilisé une troisième méthode de mesure de l'épaisseur, aussi avec la PFD qui utilise la réflexion d'un faisceau Laser à l'interface Eau/Air. Cette méthode permet de suivre la variation de l'épaisseur pendant le remplissage sans avoir à ajouter de colorant, (il s'est avéré que l'ajout de colorant pouvait générer au bout de quelques heures la formation d'un film à l'interface eau/PFD. Cet effet particulier nous a conduit à limiter les expériences avec le colorant).

On procède comme pour la première méthode avec la tige pour connaître la hauteur de l'interface Liquide B/Eau et on utilise le Laser pour mesurer la hauteur de l'interface Eau/Air. Cette méthode est adaptée pour la PFD car son indice est proche de celui de l'eau et la réflexion du Laser à l'interface PFD/Eau peut-être complètement négligée (coefficient de réflexion en intensité : $R = 0.006 \%$). On utilise le dispositif schématisé Fig. V.4.

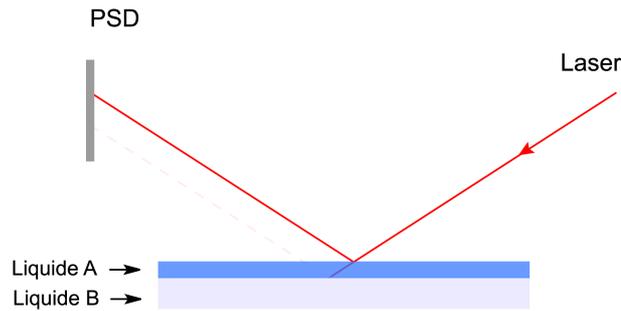


FIG. V.4 – Mesure de l'épaisseur par réflexion d'un faisceau Laser à l'interface Eau/Air.

Le faisceau Laser après réflexion sur l'interface Eau/Air arrive sur un capteur de position (PSD). On mesure ainsi la hauteur de l'interface Eau/Air. Le faisceau est focalisé avec une lentille de grande distance focale entre l'Eau et le PSD, cela permet dans cette région d'avoir un faisceau de faible dimension. On calibre en distance le PSD et l'on détermine la référence par rapport à la tige de Téflon une fois pour toute en comparant les hauteurs données par le Laser et celle de la tige de Téflon au moment du contact avec l'interface Liquide B/ Air. La précision dépend de la calibration en distance, de la mesure de la référence et de l'effet de la réflexion secondaire, l'erreur reste inférieure à $30 \mu\text{m}$.

V.2.4 Méthodes de visualisation

Pour étudier le démoillage, la loi de vitesse et les ondes de surfaces associées, nous avons utilisé plusieurs méthodes de visualisation. D'abord parce que l'expérience a évolué au cours de la thèse et aussi car les informations auxquelles ces différentes méthodes donnent accès sont différentes et complémentaires.

Méthode par réflexion

La première méthode utilise un éclairage par réflexion. C'est celle que l'on a utilisée pour le démoillage du CCl_4 . On a utilisé une caméra CCD placée verticalement et une lame de verre de grande taille servant de lame semi-transparente qui dirige vers le bas la lumière issue de la lampe halogène. Lors du démoillage, on observe une figure constituée d'un ensemble d'anneaux concentriques s'ajoutant à la vue générale de la boîte de Pétri. Ce sont des anneaux d'égales inclinaison des faisceaux lumineux. La lampe peut-être considérée comme une source ponctuelle, émettant un cône de lumière assez large, son image est placée au centre de la figure de démoillage. Suivant le nombre de réflexions de la lumière sur les différentes interfaces et sur le fond du récipient, on peut mettre en évidence différentes zones de la figure de démoillage comme l'avant, le sommet et l'arrière du bourrelet (Voir Fig. V.5). C'est cette dernière donnée qui nous intéresse pour la mesure de $R(t)$. On utilise une

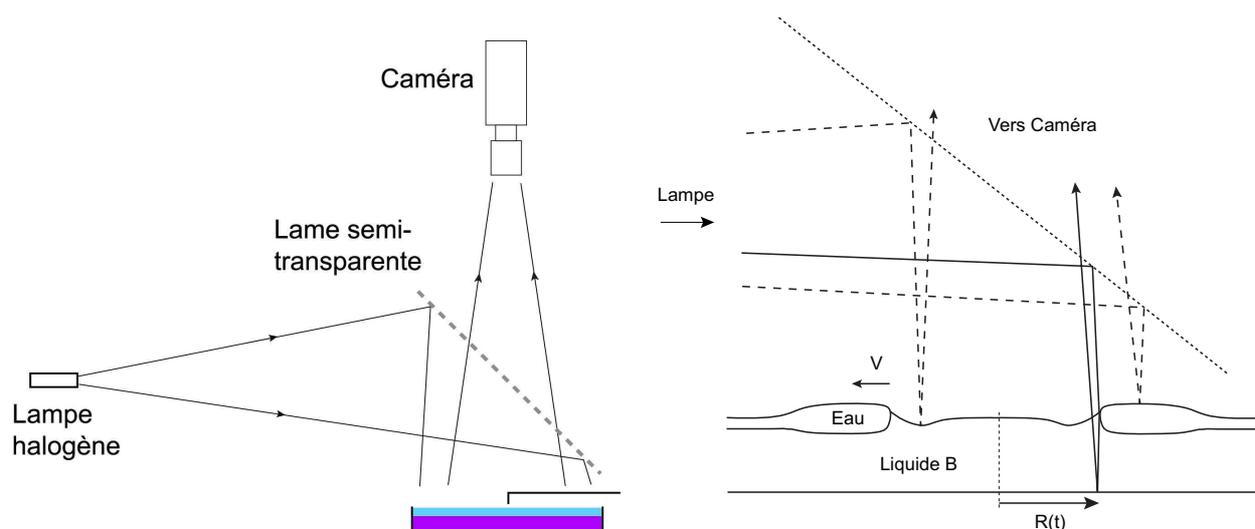


FIG. V.5 – Méthode par réflexion. A gauche dispositif expérimental, à droite : différents rayons formant le système d’anneaux.

trame sur deux de l’image pour obtenir 50 images par seconde et avoir un nombre suffisant de points (même si la qualité de l’image est réduite).

Méthode de la Grille (par transmission)

Dans cette méthode on utilise un éclairage quasi-parallèle par transmission. La lampe est placée dans le plan focal objet d’une lentille de diamètre 200 mm (lentille en verre pour projecteur). Un miroir redirige verticalement le faisceau qui traverse d’abord un diffuseur (Opal glass, Edmund Optics), voir Fig. V.6. On intercale entre le diffuseur et la boîte de Pétri une grille avec un pas de quelques mm qui permet de visualiser les déformations des interfaces. On a utilisé cette méthode avec de l’eau pure.

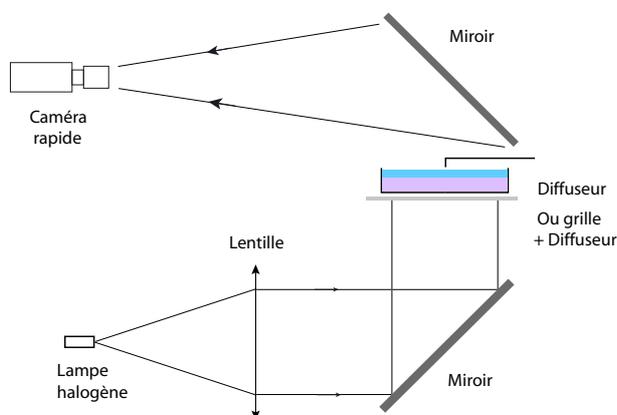


FIG. V.6 – Montage expérimental par transmission : diffuseur+grille ou diffuseur seul avec solution de colorant : méthode par absorption.

Méthode d'absorption (par transmission, donne $R(t)$)

On utilise pour cette méthode le même dispositif que précédemment (Fig. V.6) sans placer la grille. Le liquide démouillant est cette fois la solution de colorant qui absorbe partiellement la lumière. L'observation du rayon $R(t)$ est très simple car la partie démouillée n'absorbe pas la lumière et apparaît claire. Le contraste est déjà satisfaisant avec la lumière blanche de la lampe, pour l'augmenter on a aussi utilisé un filtre large bande autour de 630 nm (Edmund Optics).

Méthode par refraction (par transmission, visualisation des ondes de surface)

Cette méthode utilise un montage assez similaire au précédent, excepté le fait que le diffuseur est placé au-dessus de la boîte de Pétri et non en-dessous (Fig. V.7).

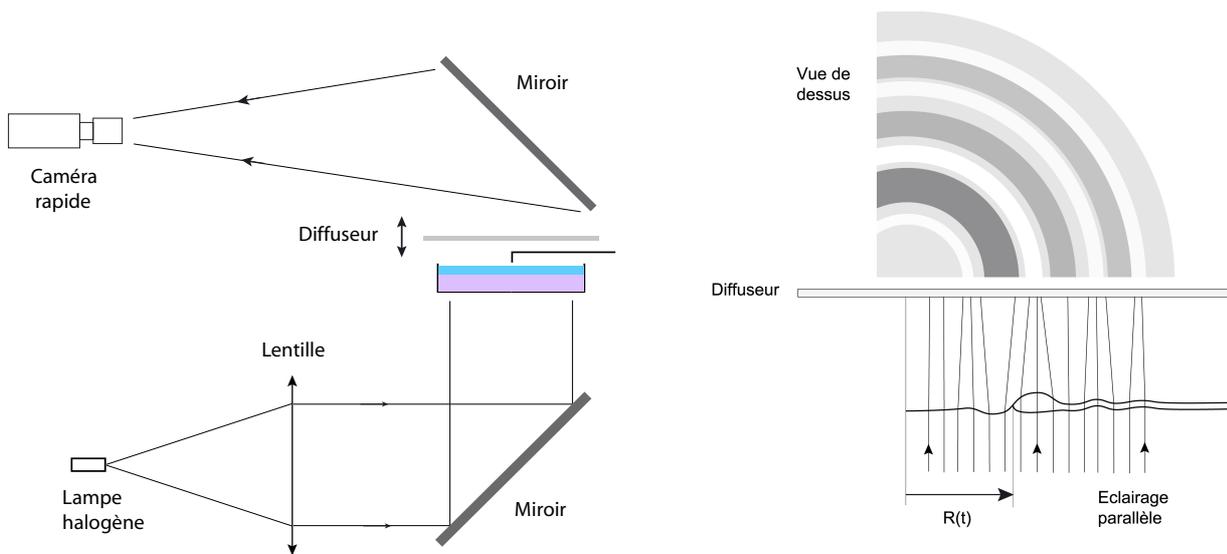


FIG. V.7 – Montage expérimental pour observer les ondes de surfaces.

Ce montage permet par réfraction de la lumière aux différentes interfaces de sonder leur courbure. Chaque point se comporte comme une lentille convergente ou divergente. Sur le diffuseur on observe en sombre les régions à courbure positives de l'interface, et en clair les régions à courbures négatives. Il faut néanmoins que le diffuseur ne soit pas trop loin des interfaces pour éviter un croisement des rayons lumineux. La distance focale effective de l'interface doit en tout point être supérieure à la distance entre le diffuseur et les interfaces liquides.

V.3 Loi d'ouverture R(t)

V.3.1 Tétrachlorure de carbone

Nous avons utilisé au début de nos expériences du Tétrachlorure de carbone (CCL_4) comme liquide substrat dans une boîte de Pétri de 15 cm de diamètre. Sa viscosité est de 0.9 cP. La méthode de visualisation utilisée est celle par réflexion (Fig. V.5) à l'aide d'une caméra CCD reliée à un magnétoscope (donc limitée à 50 images par seconde). Pour mesurer la variation du rayon démouillé en fonction du temps $R(t)$, il s'agit de déterminer où se trouve l'arrière du bourrelet. Nous avons traité les images manuellement en s'aidant de la position des différents anneaux, la détermination de $R(t)$ n'est pas toujours évidente, surtout en présence d'ondes de chocs qui multiplient le nombre des anneaux.

On présente Fig. V.8, des images successives du démouillage pour $e = 0.61\text{ mm}$. On présente aussi des courbes $R(t)$, on constate que le trou s'ouvre à vitesse constante.

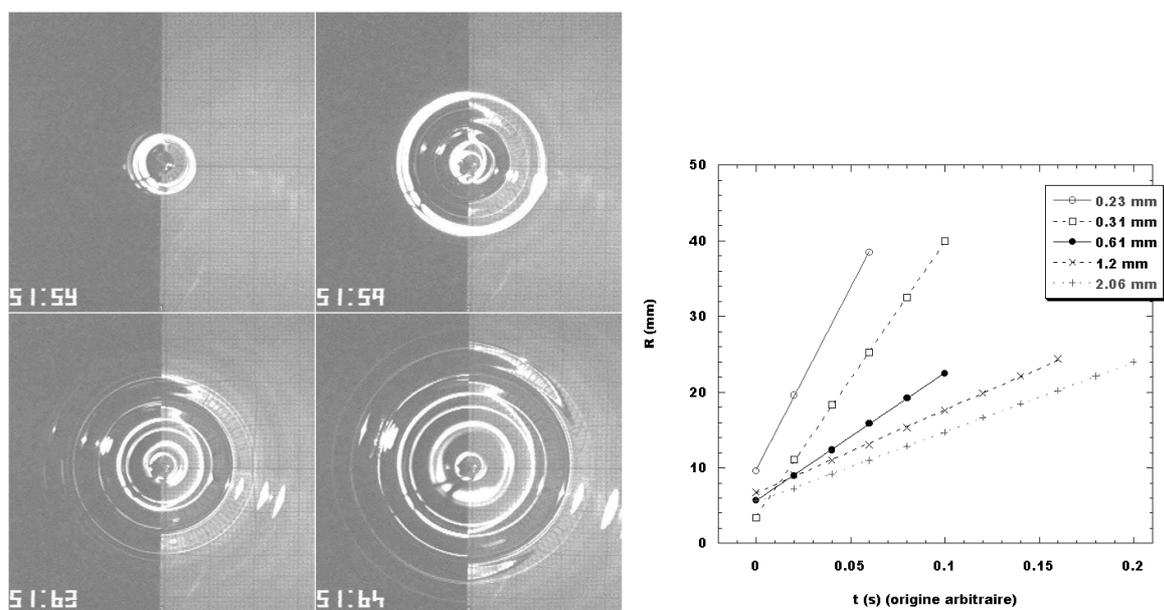


FIG. V.8 – A gauche : démouillage pour $e = 0.5\text{ mm}$. A droite : courbes $R(t)$ pour différentes épaisseurs.

On a ainsi obtenu la courbe de vitesse en fonction de l'épaisseur, $V(e)$, tracée en diagramme Log-Log, Fig.V.9. On a aussi tracé la courbe théorique de démouillage purement inertiel (Eq.V.8).

$$V = \sqrt{\frac{|\tilde{S}_l|}{\rho_A e}} \quad (\text{V.11})$$

avec $\tilde{S}_l = S + \frac{1}{2}\tilde{\rho}ge^2$, $\tilde{\rho} = \frac{\rho_A}{\rho_B}(\rho_B - \rho_A)$.

On constate que pour les faibles épaisseurs la vitesse augmente nettement et devient très proche de la prévision théorique en régime inertiel V.11. On a donc un changement de comportement pour des épaisseurs inférieures à $0.5 - 0.6 \text{ mm}$. Non avons voulu vérifier si ce changement n'était pas dû à un artefact expérimental (surestimation de l'épaisseur). On a ainsi utilisé des méthodes plus précises de mesure de l'épaisseur, décrites précédemment et on a changé de liquide substrat.

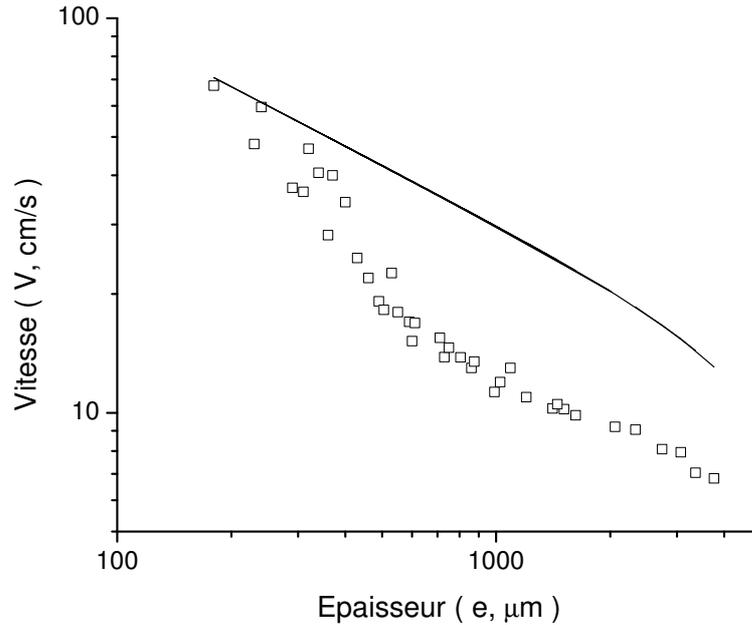


FIG. V.9 – Vitesse de démoillage en fonction de l'épaisseur : Eau sur CCl_4 . \square : Points expérimentaux, la courbe représente la loi théorique (régime purement inertiel (Eq.V.11)).

V.3.2 Perfluorodécane

Le CCl_4 étant très nocif, nous avons cherché à utiliser d'autres liquides. Nous avons choisi un liquide fluoré, la perfluorodécane ($C_{10}F_{18}$, de viscosité supérieure à celle du CCl_4 (5.1 cP)). Cela n'a pas encore été mentionné jusqu'ici mais vu la grande quantité de produit organique en évaporation, quelqu'en soit sa nature, nous avons toujours travaillé sous hotte aspirante. Nous avons utilisé une hotte déplaçable à filtre de dimensions $70 \times 50 \times 70 \text{ cm}$, cela nous a contraint pour la construction du dispositif expérimental que nous avons amélioré pour pouvoir observer les ondes. Nous avons utilisé dans ces expériences une caméra rapide (la même que précédemment, allant jusqu'à 250 images/seconde).

Pour mesurer $R(t)$ nous avons aussi cherché à utiliser une méthode automatisée de traitement d'images au vu de leur grand nombre. Nous avons utilisé deux méthodes pour la

mesure de $R(t)$. La première a le désavantage de devoir utiliser un colorant mais est plus précise.

i) Par absorption (Fig. V.6) : le bourrelet apparait nettement en sombre (il contient une forte épaisseur de liquide qui absorbe la lumière) et on mesure ainsi le rayon démouillé au cours du temps de façon automatisée (par seuillage ou detection de bord).

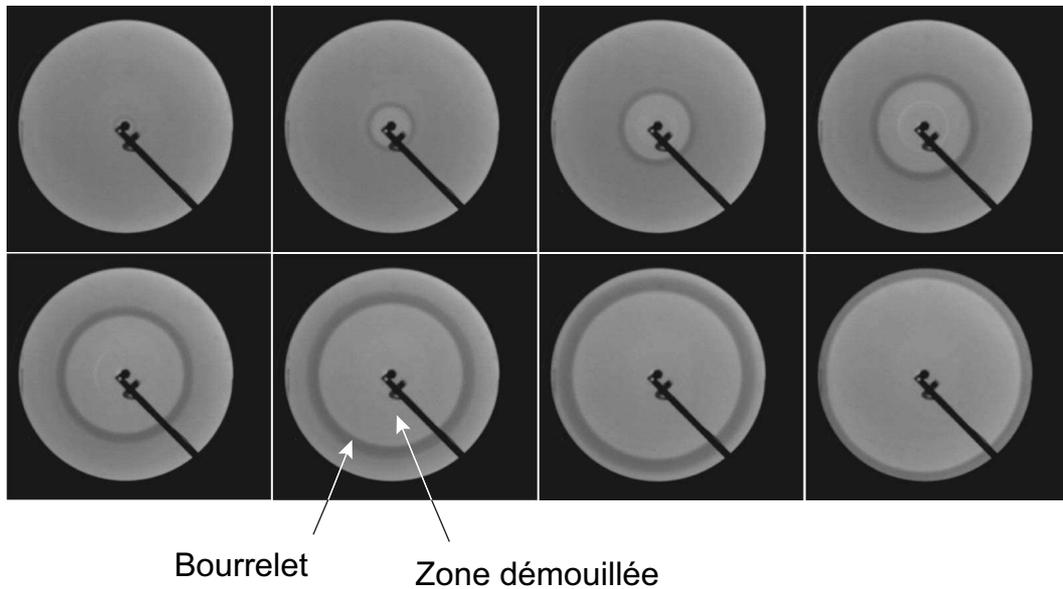


FIG. V.10 – Visualisation par absorption du démouillage d'une solution de colorant sur la PFD, $e = 0.41$ mm, 32 ms entre chaque image, diamètre total : 185 mm.

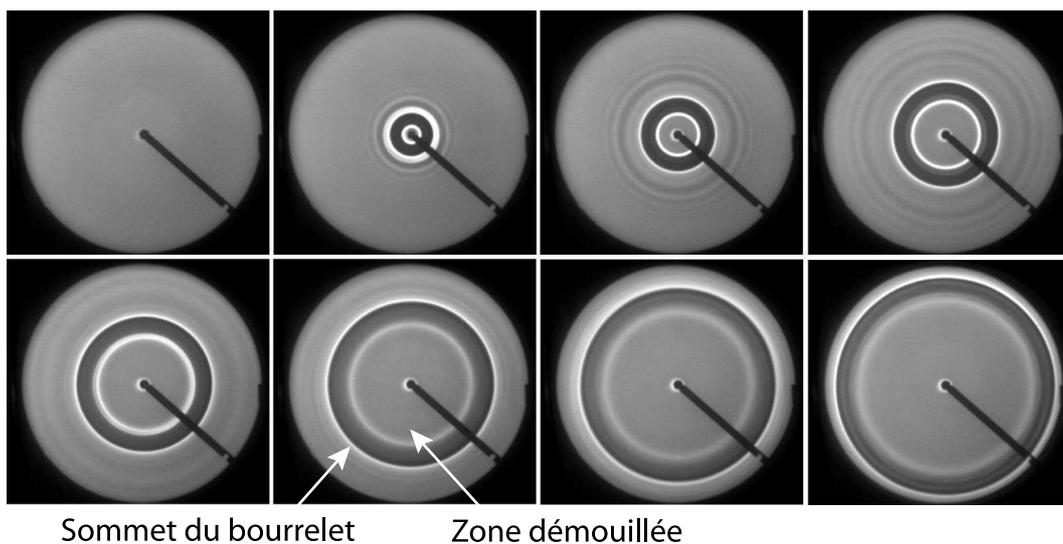


FIG. V.11 – Visualisation par effet de courbure du démouillage d'Eau sur la PFD, $e = 0.93$ mm, 80 ms entre chaque image, diamètre total : 185 mm.

ii) Par la méthode de réfraction (Fig. V.7) on mesure la limite (détection de bord, plus grand gradient) entre l'anneau le plus sombre et celui le plus clair qui correspond en général au bord arrière du bourrelet.

On a ainsi obtenu des courbes $R(t)$ avec nettement plus de points qu'avec le CCl_4 . On vérifie bien que l'ouverture du trou se fait à vitesse constante. Lorsque le bourrelet arrive près des bords du récipient, on a bien sûr ralentissement du démouillage et arrêt.

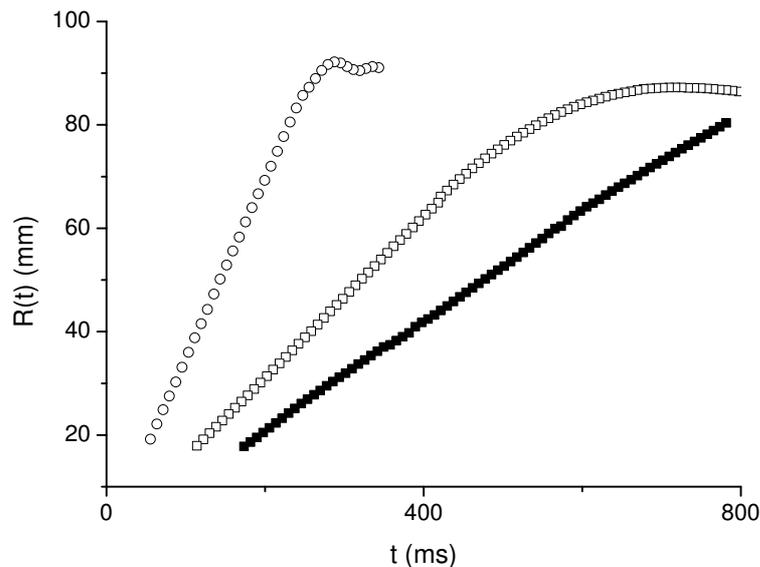


FIG. V.12 – Quelques courbes $R(t)$ fonction de l'épaisseur, Eau sur PFD, \circ : 0.41 mm, \square : 0.80 mm, \blacksquare : 2.02 mm. Avant d'atteindre les bords, le démouillage se fait à vitesse parfaitement constante.

On a noté un effet intéressant à la fin du démouillage : du fait de son inertie, la ligne triple "continue" plus loin que l'endroit où elle devrait s'arrêter pour être à l'équilibre. On a quelques oscillations amorties (2-3) du rayon démouillé avant de se retrouver avec la couronne d'eau en équilibre avec le substrat (Fig. V.13). On a constaté que la fréquence de ces oscillations diminue lorsque l'épaisseur e augmente (on s'en rend compte notamment à la Fig. V.13 et à la courbe pour 0.41 mm de la Fig. V.12, la fréquence y est élevée. Cela s'explique simplement, en rapprochant ces oscillations des modes de Type II d'une goutte dont le rayon varie (Chapitre III). Ici c'est une couronne de liquide limitée par la ligne triple d'un côté et la paroi en verre de l'autre qui voit sa largeur varier. Plus la largeur d'équilibre est faible, plus la fréquence correspondante est élevée. Sachant que la largeur d'équilibre diminue avec l'épaisseur, on explique ainsi ces observations.

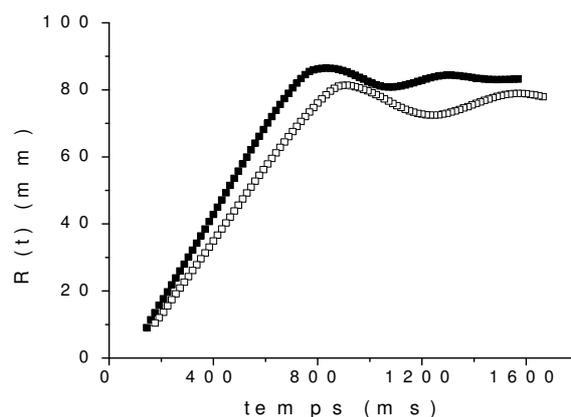


FIG. V.13 – Courbes $R(t)$ avec oscillations du rayon à la fin du démouillage, ■ : 1.27 mm, □ : 1.99 mm.

En mesurant $R(t)$ avec les deux méthodes, on a pu mesurer la vitesse de démouillage en fonction de l'épaisseur. On présente sur la Fig. V.14 la courbe $V(e)$. On constate que la vitesse diminue avec l'épaisseur, on note un fort changement de comportement vers $550 \mu\text{m}$. Ainsi pour les très faibles épaisseurs, la loi de vitesse se rapproche de la limite purement inertielle.

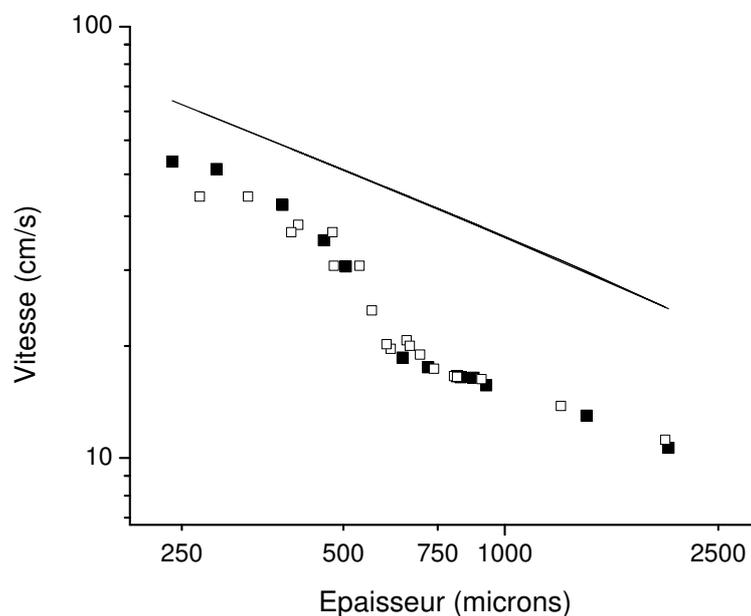


FIG. V.14 – Vitesse de démouillage fonction de l'épaisseur : Eau sur PFD. □ : Méthode par absorption, ■ : méthode par réfraction. La droite représente la loi théorique (Eq. V.8).

Pour terminer nous présentons les points mesurés pour le CCl_4 et la PFD sur un même

graphique. On constate que l'allure générale des deux courbes est similaire, aux très faibles épaisseurs le démoillage sur le CCL_4 semble un peu plus rapide, aux grandes épaisseurs c'est l'inverse, la transition entre les deux régimes (vers $550 - 600 \mu m$) est plus abrupte pour la PFD. En tout cas cela confirme les mesures pour le CCL_4 , il n'y avait aucun problème d'artefact pour la mesure d'épaisseur : on a bien un changement de régime pour la vitesse de démoillage.

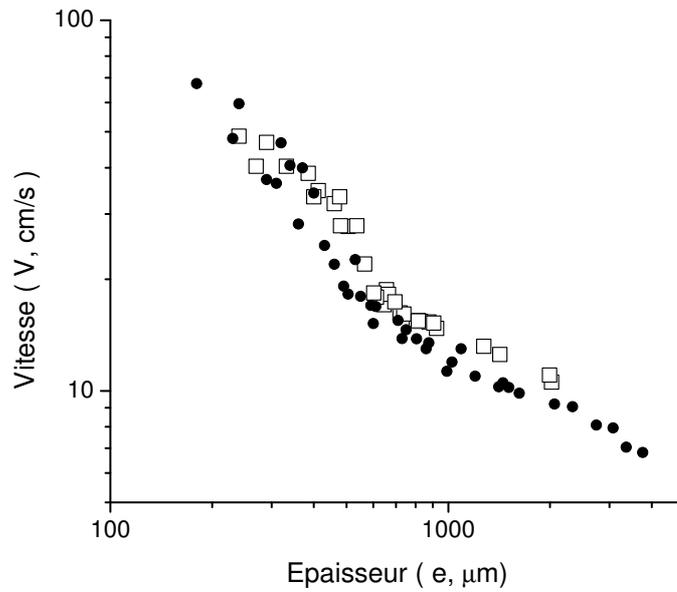


FIG. V.15 – Vitesse de démoillage fonction de l'épaisseur. \square : Eau sur PFD ; \bullet : Eau sur CCL_4 .

V.3.3 Interprétation

Nous avons vu qu'un film d'épaisseur e inférieure à l'épaisseur critique e_c est métastable et s'ouvre par nucléation et croissance d'un trou. Nous nous intéressons ici à la cinétique de cette ouverture, elle présente quelques particularités en fonction de l'épaisseur que nous allons tenter d'expliquer.

Une fois que le démoillage démarre, au fur et à mesure que le trou s'ouvre, l'énergie de surface gagnée ($|S|$ par unité de surface) est transformée majoritairement en énergie cinétique. L'eau initialement présente dans la zone démoillée est récoltée dans un bourrelet dont l'arrière progresse à la vitesse V . On a présenté dans l'introduction les différents régimes d'ouverture et les lois théoriques s'y rapportant en utilisant le Principe Fondamental de la Dynamique. Que ce soit pour le CCL_4 ou la PFD, la dissipation a principalement lieu au niveau du substrat liquide B. Le nombre de Reynolds R_e^B vaut quelques centaines, l'épaisseur de diffusion visqueuse est donc très petite devant la largeur du bourrelet. Pour $e = 1 mm$,

on calcule pour le CCL_4 , $l'_c = 21 \text{ cm}$, et pour la PFD $l'_c = 3.5 \text{ cm}$, ces valeurs sont à comparer à une taille de bourrelet de l'ordre de 1.3 cm en fin de démouillage. On est donc en régime inertiel pour les deux liquides, mais on se rapproche du régime visco-inertiel pour la PFD, pour laquelle la force visqueuse est 2.6 fois plus importante.

On constate (Fig. V.15) que les valeurs des vitesses pour les deux liquides sont assez proches, voire même supérieures pour la PFD aux grandes épaisseurs, ainsi la plus forte dissipation visqueuse dans le substrat n'a pas un effet important.

En régime inertiel, on a vu que la loi de vitesse est donnée par V.11 :

$$V = \sqrt{\frac{|\tilde{S}_l|}{\rho_A e}} \quad \text{avec} \quad \tilde{S}_l = S + \frac{1}{2} \tilde{\rho} g e^2$$

En comparant cette expression théorique avec les points expérimentaux (Fig. V.9 et V.14), on constate que pour les épaisseurs de l'ordre du mm ou plus la vitesse de démouillage est nettement inférieure au modèle inertiel, on trouve effectivement une loi $V \propto e^{-1/2}$ mais avec un coefficient numérique environ deux fois plus faible. Par contre pour les faibles épaisseurs les vitesses mesurées se rapprochent nettement de la théorie. Le changement de régime pour la PFD est assez rapide et se produit vers 500-600 μm .

Pour expliquer le fait que l'on trouve des valeurs inférieures pour la vitesse, plusieurs raisons sont possibles, liées aux effets visqueux discutés précédemment mais aussi à d'autres phénomènes :

Premièrement on doit tenir compte de la dissipation visqueuse dans le liquide démouillant et à l'interface avec le liquide substrat (c'est la contribution principale), la force correspondante vaut : $F_V = (\rho_B \eta_B \ell)^{1/2} V^{3/2}$. Un ordre de grandeur pour la PFD est de 20-30 mN/m, à comparer au paramètre d'étalement supérieur à 100 mN/m, cette force n'est pas négligeable. Pour le CCL_4 , on trouve une force environ 2.5 fois plus faible.

Deuxièmement il y a des écoulements induit dans le liquide substrat qui augmentent la masse effective $M^*(t) = M + M_e$ (tendant à ralentir le démouillage) de deux façons :

- Par entrainement visqueux sous le bourrelet, la masse supplémentaire emportée par unité de longueur de ligne s'écrit : $M_e^1 = \rho_B l d \sim l^{3/2} (\eta_B \rho_B)^{1/2} V^{-1/2}$. Cet effet devient négligeable pour les faibles épaisseurs, car la taille du bourrelet diminue et la vitesse augmente.

- Du fait de la mise à l'équilibre du niveau du liquide substrat après le passage du bourrelet. En effet l'équilibre des pressions de chaque côté du bourrelet impose une épaisseur $e' = \rho_A / \rho_B e$ de liquide B au-dessus du niveau de l'interface plane entre A et B devant le bourrelet. On a derrière le bourrelet une remontée du liquide B, suivant la vitesse du démouillage on peut avoir deux régimes :

A faible vitesse, le liquide B a le temps de s'adapter au niveau d'équilibre dès que le bourrelet est passé, on écrit à une dimension : $M_e^2 = (\rho_A e + \rho_B e') R = 2 \rho_A e R$. On a donc une

masse effective qui vaut le double de la masse du bourrelet, ce qui provoque une diminution en régime inertiel d'un facteur $\sqrt{2}$ de la vitesse : $V = \sqrt{|\tilde{S}|/(2\rho_A e)}$.

A grande vitesse, le liquide B n'a pas le temps de remonter derrière le bourrelet, il le fait avec retard plus ou moins grand, la masse emportée est alors plus faible. Ce phénomène est relié aux ondes de gravité en arrière du bourrelet qui ont une vitesse de groupe plus faible que la vitesse de phase (on verra cela dans la partie suivante). Ainsi la transition entre les deux régimes a lieu lorsque la vitesse de démouillage est du même ordre que la vitesse des ondes à la surface du substrat. Pour les faibles épaisseurs, la masse emportée est plus faible car la déformation imposée au liquide B n'a pas le temps de se propager, on retrouve progressivement la loi de vitesse inertielle (V.8).

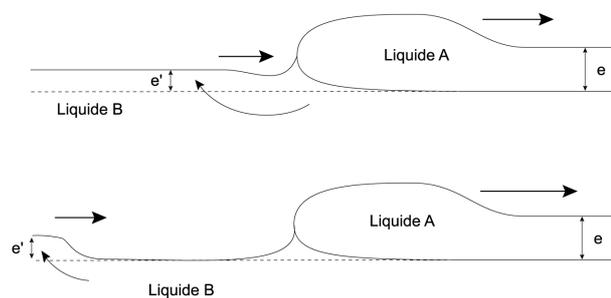


FIG. V.16 – En haut : démouillage à faible vitesse, le front du substrat qui se surélève suit le bourrelet. En bas : démouillage à grande vitesse, le substrat n'a pas le temps de suivre le bourrelet, la masse emportée est plus faible.

Troisièmement nous verrons que dans le cas où des ondes sont générées en avant ou en arrière du bourrelet, elles transportent une certaine énergie, prise sur l'énergie de surface : c'est la résistance de vague. Cet effet augmente rapidement à l'approche des vitesses seuils pour l'émission d'ondes, et diminue lentement pour des épaisseurs plus faibles. A la limite des très faibles épaisseurs, l'amplitude des ondes tend vers zéro, et cet effet disparaît aussi.

Quatrièmement on doit tenir compte des écoulements plus complexes qui peuvent être engendrés au sein du bourrelet notamment. Notre hypothèse est que l'on peut avoir par exemple des zones avec un ou deux tourbillons présentant de grands gradients de vitesse et ainsi une dissipation conséquente en volume. On rencontre de tels phénomènes dans le ressaut hydraulique qui présente de nombreuses analogies avec ce type de démouillage. Ces effets pourraient être observés avec des techniques de visualisation des écoulements. Ils ne dépendent pas beaucoup du substrat, ainsi cela pourrait expliquer le comportement similaire de la PFD et du CCl_4 qui ont des viscosités assez différentes, mais une loi de vitesse qui diminue de la même façon aux épaisseurs millimétriques.

Tout ces éléments contribuent à diminuer la vitesse de démouillage, qui pour des épaisseurs supérieures à $600\mu m$ présente un comportement $V \sim e^{-1/2}$ analogue à celui observé sur

substrat solide avec un coefficient numérique plus faible que prévu. Sur substrat liquide la différence est encore plus grande du fait de la masse supplémentaire emportée dans le substrat et les ondes qui s'y produisent. Néanmoins il est très intéressant de constater qu'à faible épaisseur les inconvénients du substrat liquide disparaissent (la masse emportée tend vers 0 ainsi que l'amplitude des ondes) et ainsi les avantages du liquide liés à la forte diminution de la dissipation au niveau du substrat et de la ligne de contact ressortent et permettent d'atteindre des vitesses très élevées (régime purement inertiel).

V.4 Ondes de surface générées par le démoillage

Lorsque le bourrelet se déplace à grande vitesse, il perturbe fortement les différentes interfaces. Si sa vitesse est supérieure à celle des ondes de capillarité-gravité on pourra observer une onde de choc en avant ou en arrière.

On définit de façon générale le nombre de Froude en avant : $Fr_A = V^*/c_{\varphi A}$. $c_{\varphi A}$ est la vitesse de phase des ondes de surface en avant (film d'eau sur liquide substrat). Pour $Fr_A > 1$, on aura un choc, comme pour les ondes sonores engendrées par un objet volant à des vitesses supérieures à Mach 1. Ce phénomène a été observé sur substrat solide par Buguin et al. [4].

Dans notre cas, on peut en plus observer des ondes à l'interface substrat/Air après le passage du bourrelet. On définit le nombre de Froude en arrière : $Fr_B = V/c_{\varphi B}$. $c_{\varphi B}$ est la vitesse des ondes de surface sur le liquide substrat. La condition de choc est donnée par $Fr_B > 1$. La condition d'apparition des ondes est donc différente en avant et en arrière.

V.4.1 Rappel : Ondes de capillarité-gravité à la surface d'un bain de liquide

On considère une masse de fluide au repos, présentant une interface avec l'air qui est plane. Si l'on perturbe cette surface en un point, les forces de gravité et de tension de surface tendront à rétablir le profil d'équilibre, du fait de l'inertie du liquide, on a une compétition qui donne lieu à l'émission d'ondes. Le bain est considéré de profondeur infinie ($H \gg \lambda$, voir Fig. V.17).

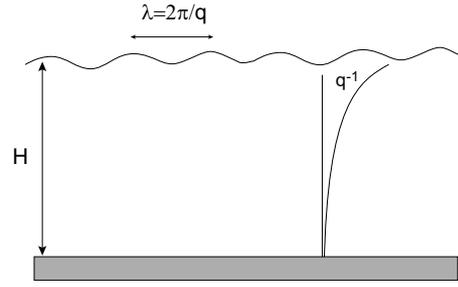


FIG. V.17 – Onde de surface en eau profonde.

Si l'on suppose que le déplacement vertical de la surface à la forme : $\eta(x, t) = a \cos(qx - \omega t)$, (onde se propageant vers les x positifs), on a une relation entre q et ω , c'est la relation de dispersion des ondes, avec γ la tension superficielle du bain de liquide. On écrit en eau profonde comme au Chapitre III :

$$\omega = \sqrt{gq + \frac{\gamma}{\rho}q^3} \quad (\text{V.12})$$

La vitesse de propagation de l'onde (vitesse de phase $c_\varphi = \omega/q$) s'écrit :

$$c_\varphi = \sqrt{\frac{g}{q} + \frac{\gamma q}{\rho}} \quad (\text{V.13})$$

On observe que l'on a une vitesse minimale pour ces ondes (c_{min}) qui vaut :

$$c_{min} = \left(\frac{4g\gamma}{\rho}\right)^{\frac{1}{4}} \quad (\text{V.14})$$

Le vecteur d'onde q pour lequel on a c_{min} est l'inverse de la longueur capillaire $\kappa = \sqrt{\rho g/\gamma}$. On sait de plus que l'énergie transportée par ces ondes progresse à la vitesse de groupe $c_g = d\omega/dq$. on a :

$$c_g = \frac{g + 3\gamma q^2/\rho}{2\sqrt{gq + \gamma q^3/\rho}} \quad (\text{V.15})$$

Pour $q \ll \kappa$ on a $c_\varphi = \sqrt{g/q}$ et $c_g = c_\varphi/2$

Pour $q \gg \kappa$ on a $c_\varphi = \sqrt{\gamma q/\rho}$ et $c_g = 3/2 c_\varphi$ En $q = \kappa$, on $c_g = c_\varphi$.

On vérifie sur la Fig. V.18, où l'on a tracé pour la PFD les valeurs des vitesses de phase et de groupe en fonction du vecteur d'onde, que pour $q < \kappa$ (régime de gravité), on a $c_g < c_\varphi$ et pour $q > \kappa$ (régime de capillarité), on a $c_g > c_\varphi$.

Dans notre système, on peut avoir deux systèmes d'ondes : sur le substrat liquide seul (la PFD) et au niveau du substrat recouvert d'un film d'eau.

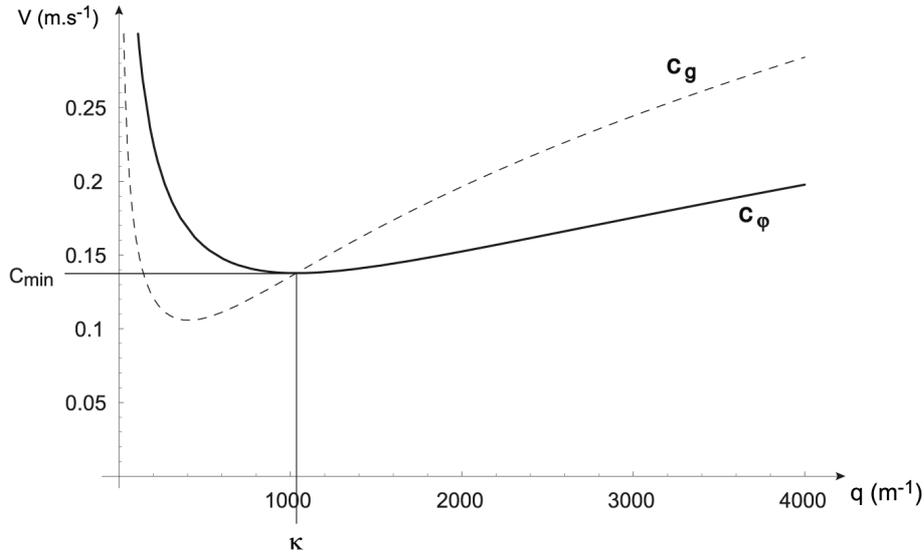


FIG. V.18 – Vitesses de groupe c_g (pointillé) et de phase c_φ (trait plein) des ondes de capillarité-gravité sur de la PFD.

Substrat seul (B)

On a la relation V.13, avec $\gamma = \gamma_B$, et $\rho = \rho_B$ on en déduit $c_{minB} = 13.8 \text{ cm.s}^{-1}$. On notera comme précédemment avec un indice B ce qui est relatif au substrat nu et donc aux ondes en arrière, et avec un indice A , ce qui est relatif au film d'eau et donc aux ondes en avant.

Substrat recouvert d'un film d'eau (A)

On utilise la relation V.13 en supposant le film mince et présentant une tension effective $\gamma = \tilde{\gamma}_B = \gamma_{AB} + \gamma_A - 1/2\tilde{\rho}ge^2$ (voir II.14), la masse volumique à prendre en compte est celle du substrat $\rho = \rho_B$. Dans la limite des très faibles épaisseurs (qui nous concerne), on aura donc :

$$c_\varphi = \sqrt{\frac{g}{q} + \frac{(\gamma_A + \gamma_{AB})q}{\rho_B}}$$

On obtient : $c_{minA} = 22.6 \text{ cm.s}^{-1}$

V.4.2 Pourquoi un choc ?

On se place à une dimension, invariante selon y , les ondes se propageant selon x . L'interface est plane au repos selon $z = 0$; considérons, comme le fait Lamb [9], une perturbation extérieure de la surface, par exemple une distribution de pression $P_{ext}(x)$. Cette distribution appliquée à un instant t donné provoque aux instants ultérieurs un certain profil d'ondes qui s'élargit.

Le bourrelet qui se déplace en récoltant l'eau constitue une perturbation se déplaçant à vitesse constante (V^* pour l'avant du bourrelet et V pour l'arrière). Il crée à chaque instant une succession de profil d'ondes qui se superposent et interfèrent. On voit bien que les ondes qui auront une vitesse de phase $c_\varphi = V$ vont s'additionner et s'amplifier.

Si l'on regarde la relation de dispersion des ondes, la condition $U = c_\varphi$ conduit à deux valeurs de q possibles : q_1 et q_2 . La valeur $q_1 < \kappa$ correspond à des ondes de gravité pour lesquelles $c_g < c_\varphi$. Le profil d'ondes correspondant va moins vite que la perturbation, et l'on a un rayonnement d'énergie vers l'arrière dans le référentiel du bourrelet à la vitesse $c_\varphi - c_g$. La valeur $q_2 > \kappa$ correspond à des ondes de capillarité pour lesquelles $c_g > c_\varphi$, le profil d'ondes correspondant va plus vite que la perturbation, on a un rayonnement d'énergie vers l'avant à la vitesse $c_g - c_\varphi$.

A chaque instant le bourrelet donne de l'énergie aux ondes, au fur et à mesure que cette énergie est transférée, elle est évacuée vers l'avant et l'arrière de la perturbation. Pour $V \rightarrow c_{min}$ on a aussi $V \rightarrow c_g$, ainsi l'énergie ne peut plus être évacuée : on a donc des amplitudes pour les ondes générées qui divergent, c'est à dire un phénomène de résonance. Les termes visqueux et non linéaires limitent la divergence (voir [10]). Dans notre cas, le récipient n'est pas assez grand pour que l'on ait le temps de voir croître les ondes complètement.

V.4.3 Caractéristiques des ondes pour notre système

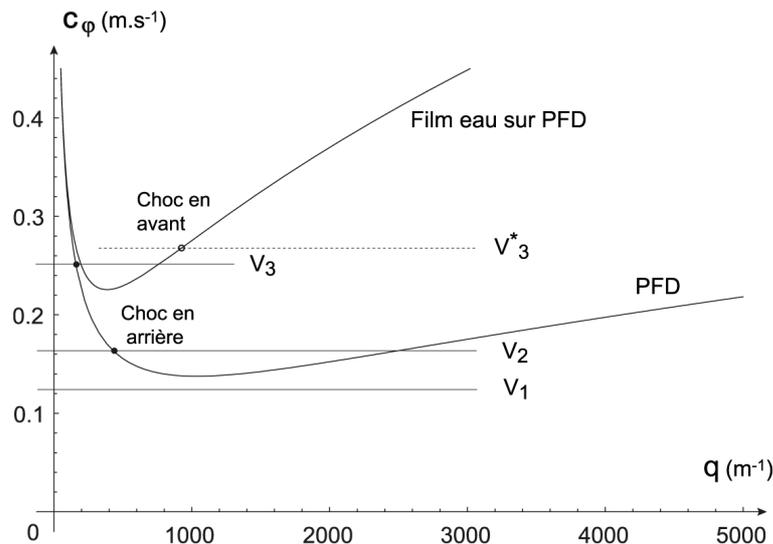


FIG. V.19 – Conditions de choc en avant sur (substrat recouvert d'un film liquide) et en arrière (substrat seul).

On note avec la construction de la Fig. V.19 que l'on a aucun choc pour la vitesse V_1 ; pour la vitesse $V_2 > c_{minB}$ on a un choc en arrière ($c_g < c_\varphi$); enfin dans la situation 3 on a un choc en arrière car $V_3 > c_{minB}$ et un choc en avant car $V_3^* > c_{minA}$. Pour chaque choc, le vecteur d'onde est donné par l'intersection avec la courbe de la vitesse de phase des ondes.

On attend schématiquement le profil suivant (Fig. V.20) avec des ondes capillaires en avant et des ondes de gravité en arrière :

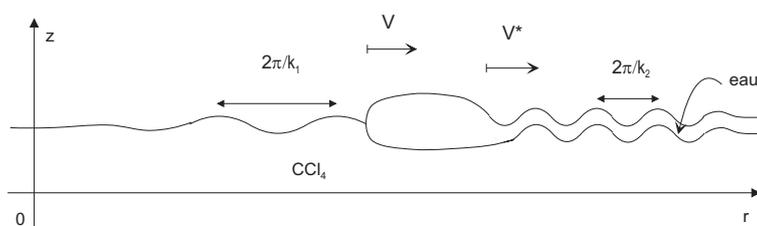


FIG. V.20 – Schéma d'émission des ondes en avant et en arrière du bourrelet.

V.4.4 Observations

Dans les expériences avec le CCL_4 , nous avons utilisé une méthode par réflexion pour observer les ondes, le champ d'observation était limité. Nous présentons une image Fig. V.21 des ondes pour $e = 0.5\text{ mm}$.

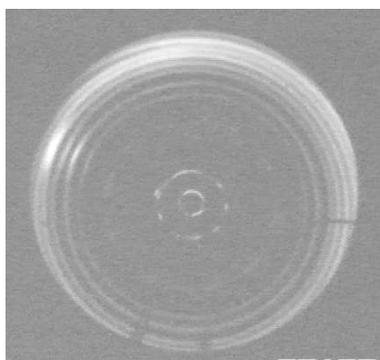


FIG. V.21 – Démoillage Eau/ CCL_4 , $e=0.5\text{ mm}$ on observe les creux et les crêtes des ondes en avant. Diamètre de l'image : 90 mm.

Les expériences réalisées avec la PFD sont similaires, c'est celles-là que nous présentons maintenant avec une méthode différente (par réfraction, que nous avons décrite précédemment) couvrant tout le champ de démoillage (185 mm). (On a aussi pu voir ces ondes avec la méthode de la grille).

On accède à la courbure locale de l'interface en observant les variations de niveaux de gris. On s'est surtout attaché à mesurer la longueur d'onde des ondes observées. Nous avons

observé le choc en avant comme sur substrat solide, et aussi des ondes en arrière du bourrelet mais pas exactement celles que l'on attendait.

Ondes en avant

Les ondes sont très clairement visibles, notamment largement au dessus du seuil, c'est à dire pour des vitesses V^* nettement plus grandes que c_{minA} .

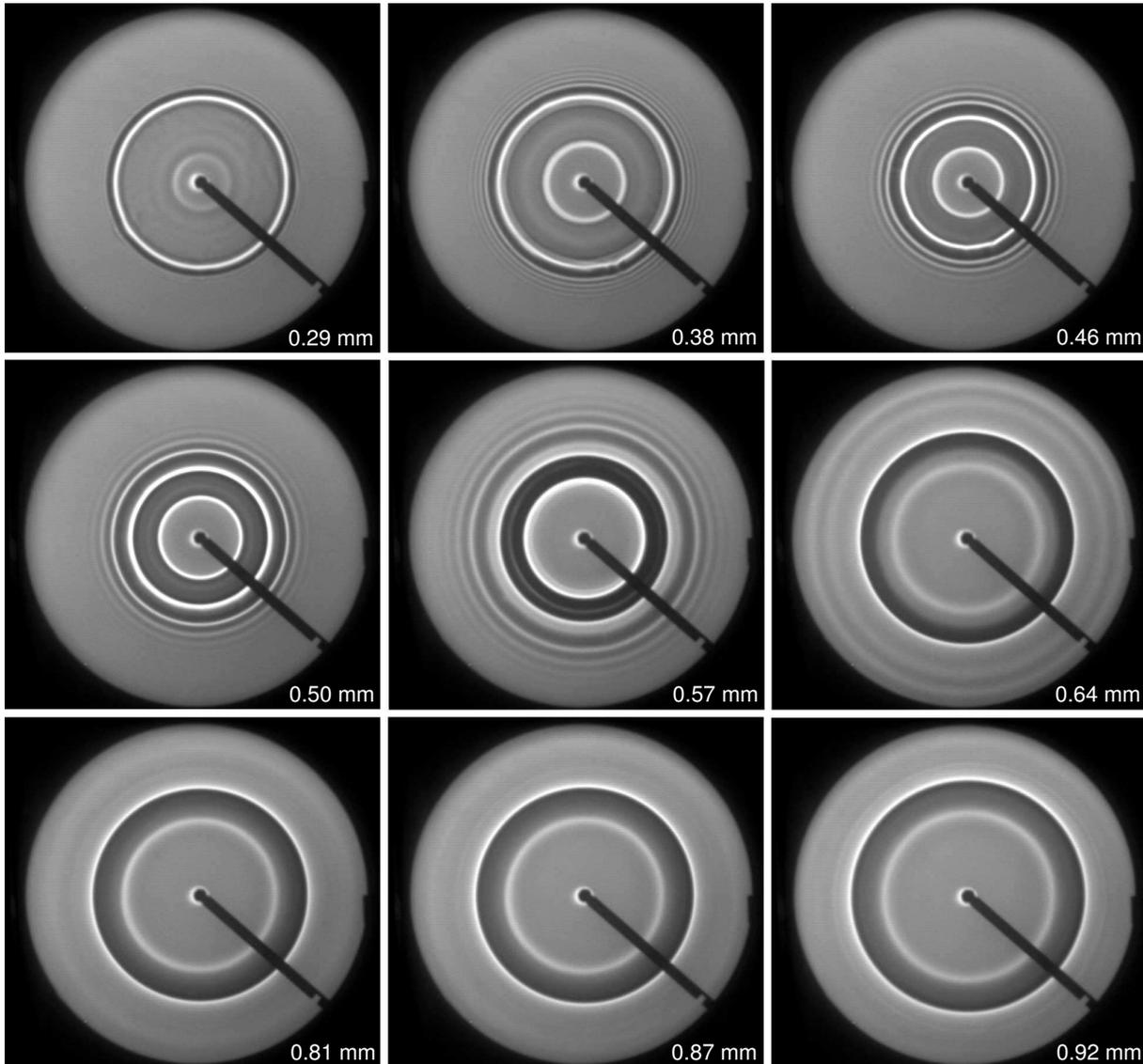


FIG. V.22 – **Photos du haut**, de gauche à droite : $e = 0.29\text{ mm}$, $e = 0.38\text{ mm}$, $e = 0.46\text{ mm}$, choc en avant du bourrelet. **Photos du milieu**, de gauche à droite : $e = 0.50\text{ mm}$, $e = 0.57\text{ mm}$: choc en avant, $e = 0.64\text{ mm}$: pas de choc (ondes parasites). **Photos du bas**, de gauche à droite : , $e = 0.81\text{ mm}$, $e = 0.87\text{ mm}$, $e = 0.92\text{ mm}$: pas de choc. Diamètre de l'image : 185 mm.

La détermination expérimentale de la vitesse seuil est assez difficile car en plus des ondes de choc qui possèdent une longueur d'onde bien définie, on observe toujours un motif d'onde émis au moment de la nucléation du démoillage. Au moment où la tige de Téflon entre en contact avec le liquide substrat, on a établissement d'un ménisque. Des ondes sont émises, de longueurs d'onde variables, et se propagent chacune à leur vitesse, l'interface retrouve ensuite l'équilibre. D'un point de vue physique le choc n'est que l'amplification d'une de ces longueurs d'onde émises, celle qui correspond à la vitesse V^* .

Il est donc difficile de faire la différence entre le choc réel et les ondes résiduelles initiées au début pour les vitesses proches de celles du choc. A faible épaisseur (images en haut à gauche de la Fig. V.22), il n'y a pas de problème car le démoillage va plus vite que les ondes émises à la nucléation, le choc correspond à une longueur d'onde précise. Pour les grandes épaisseurs (images en bas à droite de la Fig. V.22) il n'y a pas de problème non plus car le démoillage est si lent que ces ondes du début ont disparu alors que le bourrelet est encore loin des bords du récipient.

Dans nos expériences, le phénomène n'est pas stationnaire, l'amplitude des ondes croit au fur et à mesure du démoillage, tout comme le nombre de longueurs d'onde observées qui augmente avec le temps. Ce nombre n se calcule simplement, on écrit que l'avant du front d'onde se propage à c_g et l'arrière à c_φ , au bout d'un temps t après le début du démoillage, on peut observer un nombre $n_a = \frac{(c_g - c_\varphi)t}{\lambda}$ de longueurs d'onde. On se rend compte tout de suite que le nombre maximal de longueurs d'onde observables (lorsque le démoillage arrive aux bords du récipient, en $R=185$ mm) est :

$$n_a = \frac{(c_g - c_\varphi)t}{\lambda} = \frac{(c_g - c_\varphi)R}{c_\varphi \lambda} = \left(\frac{c_g}{c_\varphi} - 1 \right) \frac{R}{\lambda}$$

Ainsi pour les ondes en avant, eau sur PFD, pour une vitesse $c_\varphi \simeq 23.5 \text{ cm.s}^{-1}$, on a $c_g \simeq 27 \text{ cm.s}^{-1}$ et $\lambda = 11.4 \text{ mm}$, on trouve ainsi $n=1.2$. Soit à peine plus d'une longueur d'onde; pour toutes les valeurs de vitesse plus près du seuil théorique (22.5 cm/s) on ne verra pas vraiment le choc. Il faut noter aussi que la longueur d'onde varie très rapidement près du choc.

On a mesuré la longueur d'onde des ondes en avant en fonction de la vitesse V^* du front de démoillage. On présente sur le même graphique (Fig. V.23) la courbe théorique pour des ondes sur un film de faible épaisseur de tension effective $\gamma_{AB} + \gamma_A$ avec la masse volumique ρ_B . On trouve un assez bon accord. La différence peut s'expliquer par une relation de dispersion plus compliquée pour ces ondes sur un film flottant. Le démoillage pourrait ainsi servir à mesurer cette relation de dispersion.

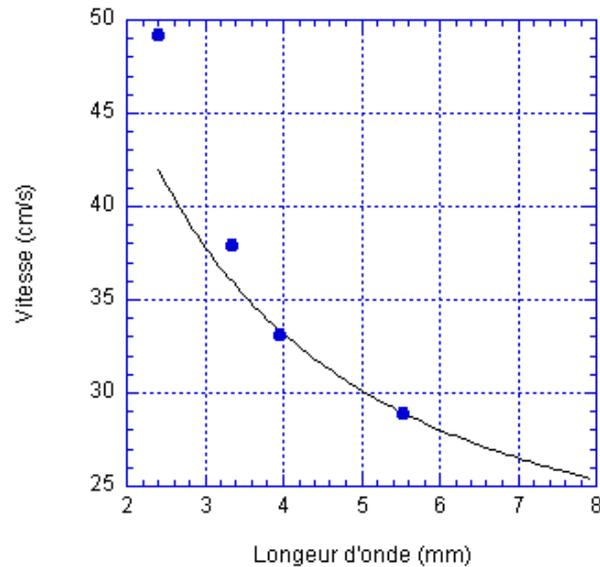


FIG. V.23 – Vitesse du front en fonction de la longueur d’onde des ondes en avant. La courbe en traits pleins représente la relation vitesse-longueur d’onde pour des ondes sur un film d’eau déposé sur la PFD à la limite des faibles épaisseurs.

Ondes en arrière

Nous avons aussi observé des ondes en arrière du bourrelet. D’après la théorie, le seuil d’apparition des ondes se situe à une vitesse de démouillage plus basse que celle qui correspond aux ondes en avant. Néanmoins, comme nous allons l’expliquer plus loin, il était difficile avec notre système d’observer plusieurs longueurs d’onde en régime gravité et déterminer ainsi le seuil d’apparition du choc. Nous reportons ici l’observation d’au moins une ondulation en arrière du bourrelet (mentionnée à la Fig. V.24 par ”onde en arrière”). Plus la vitesse de démouillage est élevée, plus cette déformation se déplace lentement par rapport au bourrelet, cela est cohérent avec le fait que la vitesse de groupe des ondes de gravité peut-être jusqu’à deux fois inférieure à leur vitesse de phase.

Pour les faibles épaisseurs de démouillage, on a observé un phénomène inattendu : des ondes de petites longueurs d’onde se propageant sur la substrat liquide, en avant de la déformation principale que l’on vient de discuter. Celles-ci présentent une structure régulière proche de celle des ondes en avant. Elles sont mentionnées à la Fig. V.24 par ”onde capillaire en arrière”.

On présente d’abord les observations effectuées relatives aux ondes observées en arrière du bourrelet, on verra ensuite ce qui limite l’observation des ondes de gravité dans cette expérience.

A la Fig. V.24 on présente pour chaque épaisseur une image où l’on voit nettement des

ondes de petites longueurs d'onde (ondes de capillarité) qui sont la trace semble-t-il d'un choc en avant pour la perturbation (anneau très clair) se propageant environ deux fois moins vite que le bourrelet au niveau du substrat liquide.

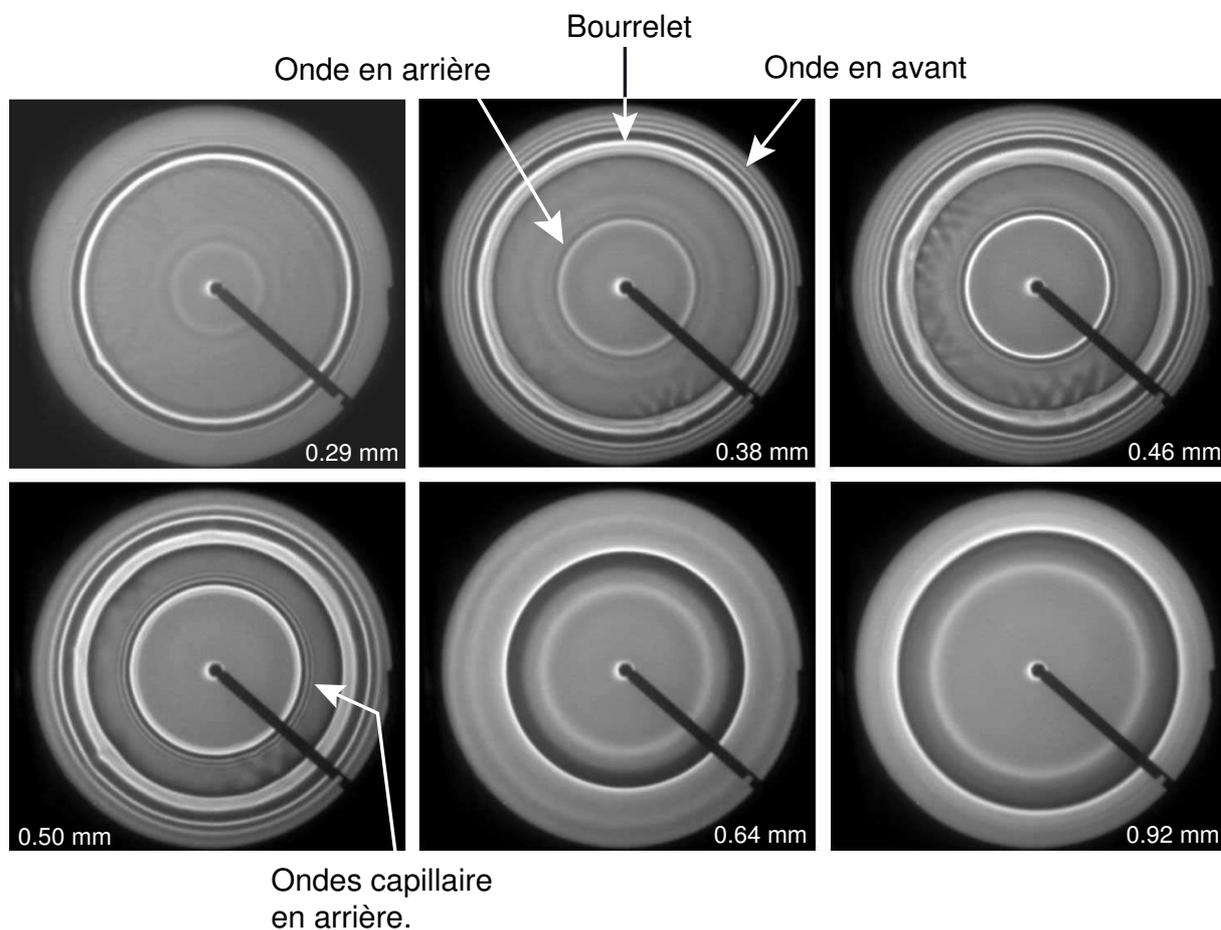


FIG. V.24 – Ondes en arrière du bourrelet, pour différentes épaisseurs de film. On a un anneau principal en arrière du bourrelet, pour un rayon donné, il est de plus en plus près de celui-ci, à mesure que l'épaisseur augmente. De gauche à droite et de bas en haut : $e = 0.29\text{ mm}$, $e = 0.38\text{ mm}$, $e = 0.46\text{ mm}$, $e = 0.50\text{ mm}$, $e = 0.64\text{ mm}$, $e = 0.92\text{ mm}$ pour cette dernière image, il n'y a pas de choc en arrière visible, l'anneau reste près du bourrelet. Diamètre de l'image : 185 mm.

Nous tentons maintenant d'expliquer pourquoi les ondes de gravité sont difficile à observer dans notre expérience. Par analogie avec les ondes en avant, le nombre de longueurs d'onde observables se calcule par :

$$n_r = \frac{(c_\varphi - c_g) R}{c_\varphi \lambda} = \left(1 - \frac{c_g}{c_\varphi}\right) \frac{R}{\lambda}$$

On peut calculer cette expression théoriquement, on obtient une courbe qui présente un

maximum pour $\lambda = 11.8 \text{ mm}$ (correspondant à une vitesse de phase de 15.5 cm/s), la valeur maximale de n vaut alors 2.3. Cette valeur n'est atteinte que lorsque l'arrière du bourrelet atteint les bords. Ainsi quelque soit l'épaisseur, on ne peut avec ce liquide (qui possède déjà une longueur capillaire très faible) visualiser plus de 2 longueurs d'onde en arrière. Le nombre de longueurs d'onde observables est proportionnel au rayon maximal atteint par le démouillage, il faudrait donc un récipient de diamètre plus grand. Il faut aussi tenir compte du fait que pour les longueurs d'onde non négligeables devant le rayon, la géométrie cylindrique apporte des différences numériques par rapport au comportement unidimensionnel que l'on a supposé pour ces ondes.

Un autre problème pourrait être invoqué, de nature expérimental et tenant au fait que la courbure de l'interface est proportionnelle au carré du vecteur d'onde, ainsi les ondes de gravité, à même amplitude crête à crête, présenteraient des différences de niveaux de gris bien plus faibles que les ondes de capillarité. Il se peut que des ondes de faibles amplitudes restent invisibles dans la configuration utilisée. Des expériences supplémentaires seraient nécessaires où l'on varierait la distance D entre le diffuseur et les interfaces, pour avoir plus de sensibilité pour voir les petites déformations. Néanmoins cela peut produire pour les zones déjà très courbées de l'interface une distance focale effective supérieure à D , et un dédoublement des anneaux par exemple.

V.5 Conclusion et Perspectives

Nous avons étudié, dans la continuité des travaux précédents réalisés notamment dans l'équipe, le démouillage d'un film liquide déposé sur un substrat liquide en régime inertiel. Nous avons observé comme dans les situations sur solide ou pour des liquides visqueux qu'en dessous d'une épaisseur critique on a nucléation et croissance d'un trou qui s'ouvre dans notre cas à grande vitesse (nous avons mesuré des vitesses allant jusqu'à 60 cm/s). Nous avons vérifié très précisément à l'aide d'une caméra rapide que l'ouverture du trou se fait à vitesse constante comme le prévoit la théorie inertielle. Néanmoins les vitesses mesurées sont bien inférieures à la théorie. Nous avons observé de plus un changement de régime pour la courbe de la vitesse en fonction de l'épaisseur e du film démouillant. Pour le système Eau/PFD, la zone d'épaisseurs comprise entre 0.5 mm et 0.6 mm est une zone de transition où la vitesse augmente très rapidement lorsque l'épaisseur diminue. Pour les épaisseurs inférieures à 0.4 mm , on retrouve le régime inertiel avec des valeurs numériques proches de la théorie. Dans ce régime différents phénomènes tendant à ralentir le démouillage disparaissent (masse effective plus grande du fait des écoulements induits dans le liquide substrat, dissipation visqueuse en volume, énergie perdue dans les ondes de chocs...).

Nous avons aussi observé des ondes de surfaces en avant du bourrelet au niveau du film

d'eau flottant et en arrière, à l'interface entre le liquide substrat et l'air. Les ondes en avant sont des ondes capillaires, donc de faibles longueurs d'onde que l'on a pu observer et mesurer facilement. Les ondes en arrière sont de gravité, présentant une vitesse de groupe inférieure à leur vitesse de phase, il n'a pas été possible de mesurer leur longueur d'onde comme pour les ondes en avant. Juste au-dessus du seuil ($V \sim c_{minB}$), la longueur d'onde est relativement faible, mais le nombre d'oscillations reste trop petit avant que le démouillage arrive aux bords. Bien au-dessus du seuil (pour des épaisseurs plus faibles), la longueur d'onde est trop grande pour que l'on puisse observer plusieurs oscillations. Il serait nécessaire de disposer d'un récipient de diamètre deux fois supérieur pour voir plusieurs oscillations et mesurer directement la longueur d'onde. Nous avons néanmoins pu constater qu'en arrière du bourrelet, le substrat se creuse, puis remonte et forme une bosse. Pour les faibles épaisseurs, cette bosse avance beaucoup moins vite que le bourrelet et engendre des ondes de longueur d'onde assez bien définie, ces ondes sont en fait des ondes de choc en avant pour cette perturbation qui se propage en arrière du bourrelet.

Les perspectives de cette étude sont nombreuses, notamment en ce qui concerne des effets de dynamique des fluides au niveau du bourrelet, qui pourraient expliquer de façon nouvelle la dissipation d'énergie à travers des zones de recirculation et de tourbillons. Dans le même esprit, l'utilisation de liquides moins visqueux (mais plus volatils) nous a permis d'observer lors du démouillage une destabilisation des interfaces, brisant la symétrie cylindrique des écoulements devenus turbulents. Elle pourrait être induite par des effets inertiels tels ceux discutés précédemment et pourrait avoir un lien avec les fluctuations de ligne de contact flottante étudiées au Chapitre II. Ici les fluctuations auraient lieu au sein d'une ligne de contact hors d'équilibre et en déplacement rapide.

On pourrait aussi imaginer de créer le démouillage par le bord. On s'attend alors à voir une goutte se former, et exploser comme une goutte de lait qui s'éclate dans l'eau.

Bibliographie

- [1] Redon C. , Brochard-Wyart F., and Rondelez F., *Phys. Rev. Lett.*, 66, 175 (1991)
- [2] Brochard-Wyart F. and de Gennes P.G., *Adv. Colloid Interface Sci.* 39, 1 (1992)
- [3] Brochard-Wyart F., Raphaël E., and Vovelle L., *C. R. Acad. Sci.* 321, 367 (1995)
- [4] A. Buguin, L. Vovelle, and F. Brochard-Wyart ; *Phys. Rev. Lett.* 83, 1183 (1998)
- [5] Andrieu C., Sykes C., *J.Phys III*, 4 (4), 775 (1994)
- [6] Joanny J.F. ; *Physico Chemical Hydrodynamics* 9, 189 (1987).
- [7] F. Brochard-Wyart, P. Martin, and C.Redon ; *Langmuir* 9, 12, 3682 (1993).
- [8] Martin P., Buguin A., and Brochard-Wyart F., *Europhys. Lett.* 28, 6, 421 (1994)
- [9] Lamb H., *Hydrodynamics*, 6th ed. (Cambridge University Press, Cambridge, 1993).
- [10] L. Debnath, *Nonlinear Water Waves*, (Academic Press).

Annexe A

Mesure de tensions interfaciales

Sommaire

A.1 Tensions de surface des liquides seuls	163
A.2 Tension interfaciales : Gouttes pendantes	164

A.1 Tensions de surface des liquides seuls

Pour mesurer la tension de surface des liquides seuls, nous avons utilisé un tensiomètre commercial Krüss K10T. Celui-ci fonctionne avec i) la méthode de Whilhelmy (plaque de platine suspendue à une balance) où ii) celle de l'anneau de Du Nouy (anneau de platine suspendu à une balance, Fig. A.1). On a notamment mesuré les tensions de l'eau, de solutions aqueuses de colorant, du CCl_4 , de la PF_6 ... Les deux méthodes fonctionnent sur le même principe : la plaque ou l'anneau sont reliés par un fil à un capteur de force vertical. Lorsque ils entrent en contact avec le liquide étudié, un ménisque se forme, le liquide exerce une force F dirigée vers le bas égale à $F = 2\gamma L$, où L est la longueur du ménisque et en supposant un mouillage total du liquide sur le platine. Pour la plaque (supposée fine), L est sa largeur. Pour l'anneau $L \simeq 2\pi R$, il faut rajouter une correction donnée dans une table. C'est cette méthode de l'anneau que l'on a utilisée, elle est très précise et donne des résultats très reproductibles.

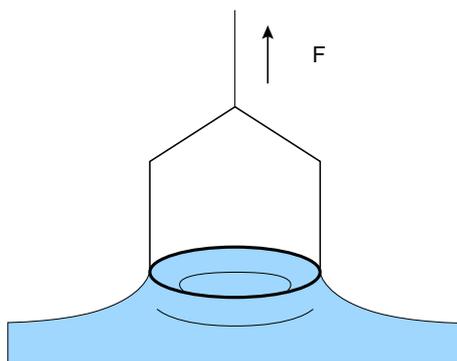


FIG. A.1 – Méthode de l’anneau de Du Nouy.

A.2 Tension interfaciales : Gouttes pendantes

Pour mesurer les tensions interfaciales entre deux liquides non-miscibles, la méthode précédente peut-être utilisée, à condition que le liquide le plus mouillant pour le platine soit le plus dense. Avec les couples de liquides utilisés, ce n’est pas le cas. Ainsi nous avons utilisé une méthode de goutte pendante. Celle-ci consiste en la détermination de paramètres géométriques d’une goutte du liquide le plus dense pendant dans l’autre liquide. On accède ainsi à la mesure de la tension interfaciale entre les deux liquides¹².

On utilise une pipette en verre placée verticalement, contenant le liquide organique (PFD, CCl_4 ...) et reliée à un pousse seringue. Dans une cuve de spectroscopie (1 cm de côté) contenant de l’eau, ou une solution de colorant, on forme une goutte du liquide organique, d’un volume suffisant pour qu’elle ait une forme de poire, et on en prend une image à l’aide du dispositif optique schématisé Fig. A.2. On détermine par traitement d’image (programme Labview Imaq Vision) le profil de la goutte. De ce profil, on détermine la valeur du diamètre maximale de la goutte : D_E . On mesure ensuite le diamètre D_S à la distance D_E du sommet de la goutte.

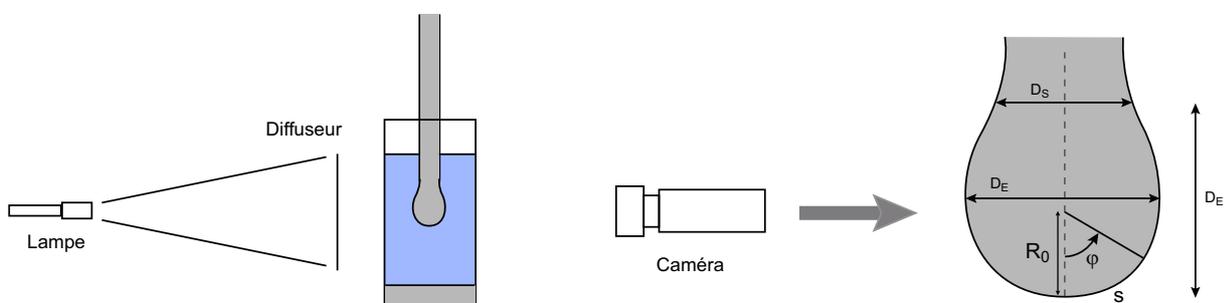


FIG. A.2 – Méthode de la goutte pendante : dispositif expérimental.

¹Adamson A.W., *Physical Chemistry of Surfaces* (John Wiley and Sons, New York, 1976)

²Hansen F.K., Rodsrud G., *Journal of Colloid and Interface Science*, 141, 1 (1991)

La mesure de la tension interfaciale repose sur la relation : $\gamma = \Delta\rho g R_0^2 / \beta$, où $\delta\rho$ est la différence des masses volumiques entre les deux liquides, g l'accélération de la pesanteur, R_0 le rayon de courbure au sommet de la goutte et β un facteur de forme. La mesure de D_E et D_S permet en utilisant des tables de déterminer R_0 et β , puis d'en déduire la tension interfaciale.

On calcule d'abord $\sigma = D_S / D_E$, à l'aide de valeurs tabulées sous forme d'une interpolation polynomiale on calcule le paramètre $\beta = \Delta\rho g R_0^2 / \gamma$. On a ⁽³⁾ : $\beta = 0.12836 - 0.7577\sigma + 1.7713\sigma^2 - 0.5426\sigma^3$. R_0 est le rayon de courbure au sommet de la goutte. On le détermine ensuite en utilisant une seconde interpolation polynomiale : $R_0 = D_E / (2(0.9987 + 0.1971\beta - 0.0734\beta^2 + 0.34708\beta^3))$. On calcule finalement la tension interfaciale : $\gamma = \Delta\rho g R_0^2 / \beta$.

Cette méthode est très simple à mettre en oeuvre et donne des mesures reproductibles, mais l'erreur est de l'ordre de $\pm 1 \text{ mN/m}$. On a noté que les valeurs dépendent du critère adopté pour repérer le profil. Le mieux est donc de calibrer la méthode avec des liquides de tension connue.

³Hansen F.K., Rodsrud G., Journal of Colloid and Interface Science, 141, 1 (1991)

Annexe B

Profil numérique de goutte

Nous présentons ici la méthode numérique utilisée pour obtenir des profils exacts de gouttes déposées à l'équilibre. Différentes versions de cette méthode permettent d'obtenir les grandeurs caractéristiques qui nous intéressent en fonction de celles que l'on connaît. Pour une goutte déposée les paramètres géométriques importants sont :

- V : son volume.
- θ_E : l'angle de contact d'équilibre.
- R_{eq} : son rayon à la ligne de contact.
- R_M : son rayon maximal (en projection).

En plus de ces paramètres, d'autres peuvent présenter un intérêt.

- p : la longueur de l'arc de méridienne.
- h_m : l'épaisseur maximale de la goutte.

Le liquide utilisé dans nos expériences était uniquement de l'eau, les paramètres physiques utilisés correspondent à une température de $22 - 23^\circ C$: tension de surface $\gamma = 72.3 \text{ mN/m}$, masse volumique $\rho = 998 \text{ kg.m}^{-3}$ et accélération de la pesanteur : $g = 9.81 \text{ m.s}^{-2}$.

La détermination du profil numérique d'une goutte repose sur la résolution de l'équation de Laplace-Young. On a considéré la forme utilisé par Rotenberg et al.¹. On a avec les notations de la Fig. B.1 :

$$\frac{d\varphi}{ds} = 2 - \beta y - \frac{\sin\varphi}{x} \quad (\text{B.1})$$

$$\frac{dx}{ds} = \cos\varphi \quad (\text{B.2})$$

$$\frac{dy}{ds} = \sin\varphi \quad (\text{B.3})$$

¹Rotenberg Y., Boruvka L., Neumann A.W., J. Colloid Interface Sci. 93, 169 (1983)

Avec $\beta = -\frac{\Delta\rho g R_0^2}{\gamma}$ (pour une goutte pendante, on a la même procédure, avec $\beta > 0$).

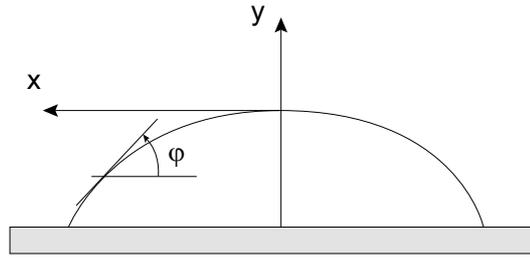


FIG. B.1 – Géométrie utilisé pour résoudre numériquement le profil d'une goutte posée.

On utilise une méthode de Runge-Kutta d'ordre 4. On a un système d'équations couplées du premier ordre par rapport à l'abscisse curviligne s qui joue le rôle du temps.

La condition initiale pour $s = 0$, est $\varphi = 0$, $x = 0$ et $y = 0$, on détermine en fonction de s les valeurs de $\varphi(s)$, $x(s)$ et $y(s)$ à chaque itération. On calcule aussi à chaque étape le volume V et l'aire projetée A_p :

$$\frac{dV}{ds} = \pi x^2 \sin\varphi \quad (\text{B.4})$$

$$\frac{dA_p}{ds} = 2\pi x \cos\varphi \quad (\text{B.5})$$

Dans les diverses versions de la résolution numérique, le volume est toujours fixé, car il est toujours mesuré et connu, on le note V_0 . On recommence les itérations jusqu'à ce que le volume atteigne cette valeur V_0 . On obtient alors le profil d'une goutte, on mesure l'aire maximale projetée $A_p = \max(A_p)$, ainsi que l'angle de contact θ donné par la valeur de φ et la longueur de l'arc de la courbe donnée par s .

Deux solutions sont possibles :

1. On se donne l'angle de contact et l'on cherche à connaître les paramètres exacts de la goutte.
2. On a mesuré A_p et on cherche l'angle de contact, c'est ce qu'on utilise lors d'une mesure d'angle de contact.

Dans les deux cas on augmente régulièrement β (voir Eq. B.1) et pour chaque valeur de β on calcule le profil de la goutte et ses caractéristiques. Lorsque la valeur imposée (θ dans le cas 1.) et A_p dans le cas 2.) est atteinte on arrête le programme.

Pour la mesure d'angle (cas 2.) avec une précision sur l'angle de 1 degré il faut quelques secondes de calcul, mais cette méthode de double itération peut demander plusieurs minutes avant de trouver une valeur précise à quelques 10^{-2} degrés, surtout si l'on n'a aucune idée de la valeur du β de départ. Nous aurions pu l'améliorer considérablement en tabulant une fois pour toutes des valeurs initiales de β . On n'a pas trouvé cela nécessaire au vu du nombre de mesure d'angles à réaliser.

Annexe C

Mesure d'angle de contact

Sommaire

C.1 Méthode numérique / vue de dessus	169
C.1.1 Goutte à l'équilibre	170
C.1.2 Hystérésis de l'angle de contact	170
C.1.3 Goutte oscillante	171
C.2 Méthode directe / vue de côté	171

C.1 Méthode numérique / vue de dessus

Cette première méthode utilise la détermination numérique des paramètres d'une goutte. Elle a été développée spécialement pour pouvoir mesurer l'angle de contact dans notre dispositif de vibration avec visualisation par le dessus. Une mesure de l'aire maximale A_p de la goutte vue de dessus ainsi que celle de son volume V permet de mesurer l'angle de contact (il faut aussi connaître la tension de surface du liquide). La valeur obtenue est une moyenne sur le pourtour de la goutte, cela peut présenter un avantage certain pour les substrats inhomogènes.

Pour mesurer le volume, on pèse la goutte à l'aide d'une balance Mettler (précision de quelques dixièmes de mg) et l'on divise par la masse volumique.

Pour mesurer A_p , on réalise une image en vue de dessus de la goutte à l'aide du montage expérimental décrit en IV.2.1. On traite ensuite l'image à l'aide d'un programme simple détectant le contour de la goutte et donnant sa surface projetée après calibration de l'image en distance.

On se place dans le cas 1) détaillé à l'Annexe B, qui consiste à fixer le volume et l'aire projetée et à trouver l'angle de contact. Avec un temps de calcul suffisant, la précision

numérique peut-être très bonne, la précision de la mesure est donc limitée par celle de A_p et de V (cette dernière est la plus grosse source d'erreur, notamment du fait de l'évaporation, le mieux est donc de retirer la goutte et de la peser immédiatement après acquisition de l'image).

C.1.1 Goutte à l'équilibre

Dans ce cas la goutte est circulaire et immobile, la méthode s'applique directement. Suivant le mode de déposition de la goutte, on peut trouver toutes les valeurs entre θ_r et θ_a . Pour obtenir une valeur de l'angle d'équilibre, comme on l'a vu au chapitre III, on vibre la goutte de telle façon que la ligne de contact oscille, puis on réduit petit à petit l'amplitude, jusqu'à ce que l'amplitude de variation du rayon deviennent très faible et que la ligne reste bloquée. On arrête alors les vibrations et l'on réalise la mesure.

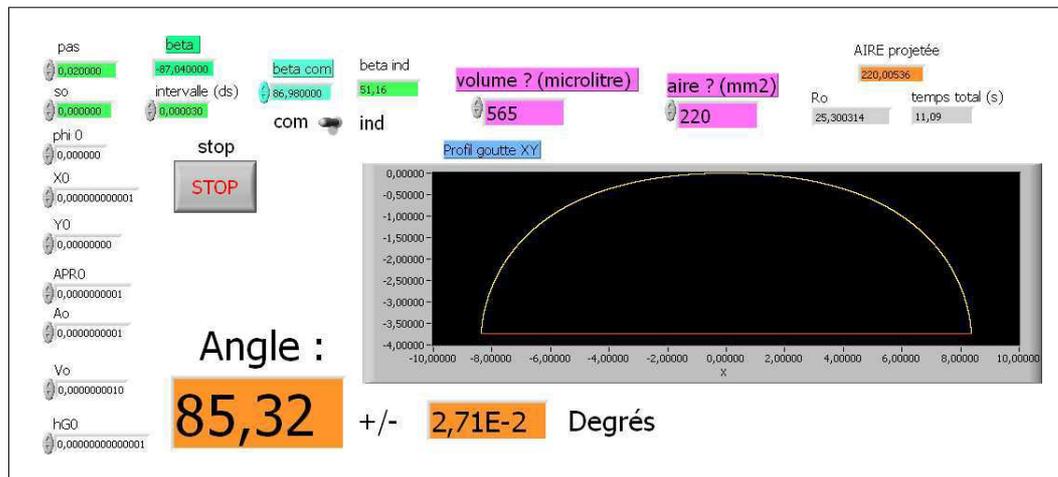


FIG. C.1 – "Face avant" (interface utilisateur) du programme déterminant l'angle de contact à partir de V et A_p .

C.1.2 Hystérésis de l'angle de contact

Un intérêt de la méthode se situe dans la détermination de l'hystérésis de l'angle de contact. Pour un hystérésis pas trop élevé, on remarque que différentes sources d'erreurs se compensent largement lorsqu'on fait la différence des valeurs à l'avancée et à la reculée. Une mauvaise calibration en distance ou une mauvaise valeur de la tension de surface n'ont que peu d'incidence sur la différence des angles.

Pour obtenir la goutte en situation d'avancée ou de reculée, on utilise une seringue dont l'embout est coudé et qui injecte ou retire du liquide. La seringue est reliée à une platine de translation manipulée lentement. On prend une image juste avant d'arrêter la seringue, puis

on pèse la goutte ; on peut tenir compte de la correction de volume entre l'image et l'arrêt de la seringue si celle-ci dépasse 1 ou 2 microlitres. On utilise des gouttes assez grosses pour que le trait de l'embout à l'image ne modifie pas la valeur de la surface projetée. On mesure ainsi θ_r , θ_a et l'hystérésis $H = \cos \theta_r - \cos \theta_a$.

C.1.3 Goutte oscillante

Nous avons vu que l'on devait mesurer V et A_p pour une goutte à l'équilibre pour obtenir l'angle moyen. Mais nous avons vu au Chapitre III que lorsque la goutte est vibrée verticalement, son rayon variait autour de sa valeur d'équilibre R_{eq} . Il en est de même pour le rayon maximal moyen R_M tel que $A_p = \pi R_M^2$, celui-ci varie autour de sa valeur d'équilibre. Lorsqu'on prend la valeur moyenne du rayon maximal pendant les oscillations, on trouve dans une large gamme d'amplitude que celle-ci est constante et vaut la valeur d'équilibre. Ainsi il n'y a pas besoin d'attendre que la goutte reviennent à l'équilibre, on peut pendant des oscillations de la gouttes, même non-axisymétriques mesurer la valeur d'équilibre de A_p et ainsi l'angle de contact d'équilibre θ_E .

C.2 Méthode directe / vue de côté

On a utilisé une autre méthode de mesure de l'angle utilisant une visualisation de profil de la goutte au niveau de la ligne de contact. Celle-ci est détaillée en [III.4.1](#).

Conclusion

Nous avons au cours de cette thèse étudié différents phénomènes de mouillage et de démouillage inertiels, sur substrat solide comme sur substrat liquide.

- Nous nous sommes tout d'abord intéressé à la statique et la dynamique d'une ligne triple flottante. L'utilisation de la tension de ligne macroscopique permet d'interpréter simplement l'épaississement des flaques, de calculer la force qu'une ligne exerce lorsqu'on la déforme et d'expliquer la propagation d'ondes le long de la ligne : les Triplons. Nous avons ainsi réalisé expérimentalement un tensiomètre de ligne, puis mesuré la relation de dispersion des Triplons, en bon accord avec le modèle : $\omega \sim q^{3/2}$. L'absence d'hystérésis de l'angle contact permet de les observer facilement, ce qui n'est pas le cas sur substrat solide.

Un prolongement de ces expériences au cas d'une épaisseur très faible de liquide substrat sous la flaque pourrait être très intéressant. On pourrait aussi varier la viscosité de chacun des liquides et observer le régime purement visqueux de relaxation de la ligne.

- Nous avons voulu observer ces fluctuations de la ligne de contact pour une flaque déposée sur un substrat solide. Un moyen est de fournir au système l'énergie nécessaire à chaque cycle pour compenser l'hystérésis de l'angle de contact, en vibrant verticalement le substrat. Nous avons alors observé qu'à faible amplitude, lorsqu'on vibre une goutte aplatie, celle-ci présente des modes de surface, autour de fréquences de résonance, la ligne de contact restant accrochée par le substrat. A amplitude plus élevée, la variation de l'angle de contact due aux oscillations peut dépasser l'hystérésis, ainsi la ligne peut se mettre en mouvement. On observe alors des oscillations synchrones du rayon de la flaque, dont la ligne de contact reste circulaire. Nous avons pu interpréter les deux types de modes comme étant des ondes de capillarité-gravité avec des conditions aux bords différentes. Le mouvement de la ligne est saccadé, du fait de l'hystérésis de l'angle de contact qui agit comme un frottement solide. Nous avons développé un modèle qui permet d'obtenir une équation simple d'oscillateur forcé avec frottement solide. Lorsqu'on augmente encore l'amplitude des vibrations, on peut observer autour de certaines fréquences les modes de contour des flaques. On a principalement étudié les modes 2 et 3. Ces modes sont en fait excités paramétriquement par les variations du rayon. La résonance principale que l'on observe se produit pour une fréquence d'excitation égale au double de la fréquence des modes. La croissance de l'instabilité est exponentielle,

avec un temps caractéristique de plus en plus long à mesure que l'on s'approche du seuil d'instabilité. Les oscillations saturent ensuite du fait d'effets non linéaires. On a pu en traçant des diagrammes de stabilité déterminer les fréquences de résonance des modes et comparer avec le modèle des Triplons.

Les perspectives de cette étude semblent très nombreuses, notamment quant à l'utilisation de la vibration des gouttes pour l'étude de phénomènes de dynamique de ligne de contact inertielle, la relation entre angle de contact et vitesse de la ligne... Ces expériences peuvent aussi servir comme méthode de caractérisation des surfaces : mesure d'angle de contact d'équilibre, d'hystérésis de l'angle de contact, propriétés dynamiques différentes... Les applications en vue du déplacement contrôlé de gouttes, ou bien pour accélérer le mélange au sein de la goutte semblent aussi très nombreuses. Pour ce qui est de la résonance paramétrique, des expériences supplémentaires pour explorer un peu plus le diagramme amplitude-fréquence pourraient s'attacher à étudier les phénomènes d'oscillations quasi-périodiques, voire de transition au chaos...

- La troisième partie de notre travail a porté sur l'étude du démouillage liquide/liquide inertielle. Un film d'eau de faible épaisseur déposé sur un liquide organique non miscible et plus dense démouille par nucléation et croissance d'un trou. Nous avons observé que celui-ci s'ouvre à vitesse constante. Néanmoins on a pu mettre en évidence un changement de comportement inédit pour la vitesse en fonction de l'épaisseur. La théorie en régime inertiel prévoit une loi $V \propto e^{-1/2}$. Pour des épaisseurs supérieures à 0.5-0.6 mm, cette relation est vérifiée mais avec un coefficient numérique plus faible que prévu (d'un facteur environ 2). Pour les faibles épaisseurs, on a une transition vers un régime de vitesse plus élevées, et les mesures se rapprochent du régime purement inertiel. Comme sur substrat solide, la vitesse du bourrelet dépassant celle des ondes de surface, on a pu observer un choc en avant de celui-ci. On a aussi mis en évidence des ondes se propageant sur le substrat liquide, après le passage du bourrelet.

Des expériences supplémentaires de visualisation des écoulements pourraient mettre en évidence des écoulements plus complexes au sein du bourrelet qui expliqueraient le ralentissement aux grandes épaisseurs. Pour pouvoir comparer quantitativement la longueur d'onde des ondes en arrière avec la théorie, des récipients de plus grand diamètre seraient nécessaires, ainsi qu'un bain plus profond.

Résumé :

Au cours de cette thèse nous avons étudié différents phénomènes de mouillage et de démouillage inertiels, sur substrat solide comme sur substrat liquide.

Dans une première partie (chapitre II), nous avons étudié la statique et la dynamique d'une ligne triple flottante. Nous avons construit un tensiomètre de ligne, en mesurant la force exercée par la ligne lorsqu'on la déforme. Nous avons aussi caractérisé les ondes se propageant le long de la ligne triple : les "Triplons" et mesuré la relation de dispersion entre la fréquence d'excitation et le vecteur d'onde observé : $\omega(q)$. L'absence d'hystérésis de l'angle de contact permet d'observer facilement ces modes.

Dans une deuxième partie (chapitres III et IV), nous avons étudié l'effet de vibrations verticales sur des grosses gouttes aplaties par la gravité (flaques) déposées sur un substrat solide. A faible amplitude, la ligne reste accrochée par le substrat, on observe des modes de surface. A amplitude plus importante, la ligne se met en mouvement et l'on observe des oscillations du rayon des flaques, celles-ci restant circulaires. Lorsqu'on augmente encore l'amplitude, on a pu observer pour certaines fréquences des fluctuations du contour de la flaque. Ces modes (mode 2, mode 3...) sont excités paramétriquement par les variations du rayon des flaques. La résonance principale se produit pour une fréquence d'excitation double de la fréquence d'oscillation des modes de contour. Nous avons mesuré différentes caractéristiques de cette instabilité (temps de montée, diagramme de stabilité...)

Enfin dans une troisième partie (chapitre V), nous avons étudié la dynamique de dé-mouillage d'un film d'eau flottant sur un autre liquide plus dense et non miscible. Le dé-mouillage s'effectue par nucléation et croissance d'un trou à grande vitesse en régime inertiel. La vitesse d'ouverture V est constante, et diminue avec l'épaisseur e du film, on trouve une loi proche de $V \sim e^{-1/2}$. Le préfacteur numérique est nettement plus faible que celui prévu par un modèle purement inertiel. On observe en diminuant e une cascade de chocs hydrauliques, en arrière et en avant du bourrelet collectant l'eau, lorsque la vitesse de dé-mouillage devient supérieure à la vitesse des ondes de surface.

Mouillage et Démouillage Inertiels : Triplons, Flaques vibrées, Ondes de chocs

Nous avons étudié la statique et la dynamique d'une ligne triple flottante. Nous avons mesuré la force exercée par la ligne lorsqu'on la déforme (tensiomètre de ligne) et la relation de dispersion des ondes se propageant le long de la ligne ("Triplons").

Nous avons ensuite étudié l'effet de vibrations verticales (fréquence ω_E) sur des flaques d'eau déposées sur un substrat solide. Au dessus d'un premier seuil en amplitude, on observe le décrochement de la ligne, le rayon de la flaque oscille. Au-dessus d'un deuxième seuil, on a pu observer des fluctuations du contour de la flaque à la fréquence $\omega_E/2$ (instabilité paramétrique).

Nous avons enfin étudié la dynamique de démouillage à grande vitesse d'un film d'eau flottant sur un liquide non miscible. On a mesuré la vitesse d'ouverture V en fonction de l'épaisseur e du film. Lorsque V dépasse la vitesse des ondes de surface, on observe des ondes de chocs en avant et en arrière du bourrelet collectant l'eau.

Inertial Wetting and Dewetting : Triplons, Vibrated puddles, Shocks waves

We have studied the statics and the dynamics of a floating triple line. We have build a triple line tensiometer by measuring the force exerted by the line when we pull on it. We measure the dispersion relation associated to the waves propagating along this line ("Triplons").

We have then studied water puddle deposited on vibrated solid substrate (frequency ω_E). Above a first threshold in amplitude, we observe the depinning of the line and the radius of the puddle starts to oscillates. Above a second threshold, we observe an instability of the contour at frequency $\omega_E/2$, parametrically excited by the variations of the drop radius.

We have finally studied the fast dewetting of a water film floating on a non miscible liquid substrate, denser and non miscible. We have measured the dewetting velocity V versus the film thickness e . When V is larger than the velocity of surface waves, we observe a cascade of shocks propagating ahead or behind the rim collecting the water.