

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

Damien Vadillo

Grenoble, le 13 Juillet 2007

Thèse réalisée au:

Laboratoire des Écoulements Géophysiques et Industriels

Au sein de l'équipe:

Microfluidique, Interfaces et Particules

Au cours de cette thèse:

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

# Introduction Générale

## *Introduction*

---

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

Dans la nature



Pulvérisation d'engrais ou d'insecticide

Dans l'industrie



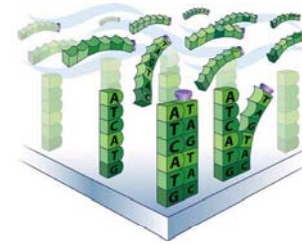
Impression numérique: collection de points de couleur

## Introduction

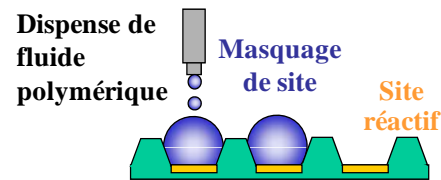
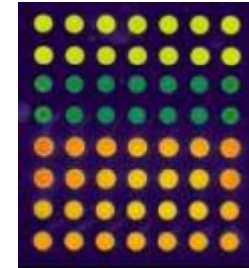
Des domaines nouveaux: diagnostic médical (synthèse *in situ* d'oligonucléotides)



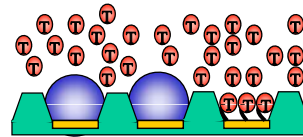
Prélèvement de l'échantillon



Hybridation sur puces à ADN



Masquage par le polymère



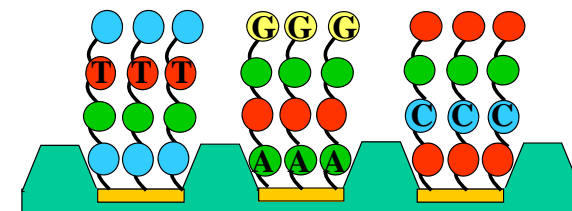
1<sup>er</sup> couplage de Nucléotide



Déprotection



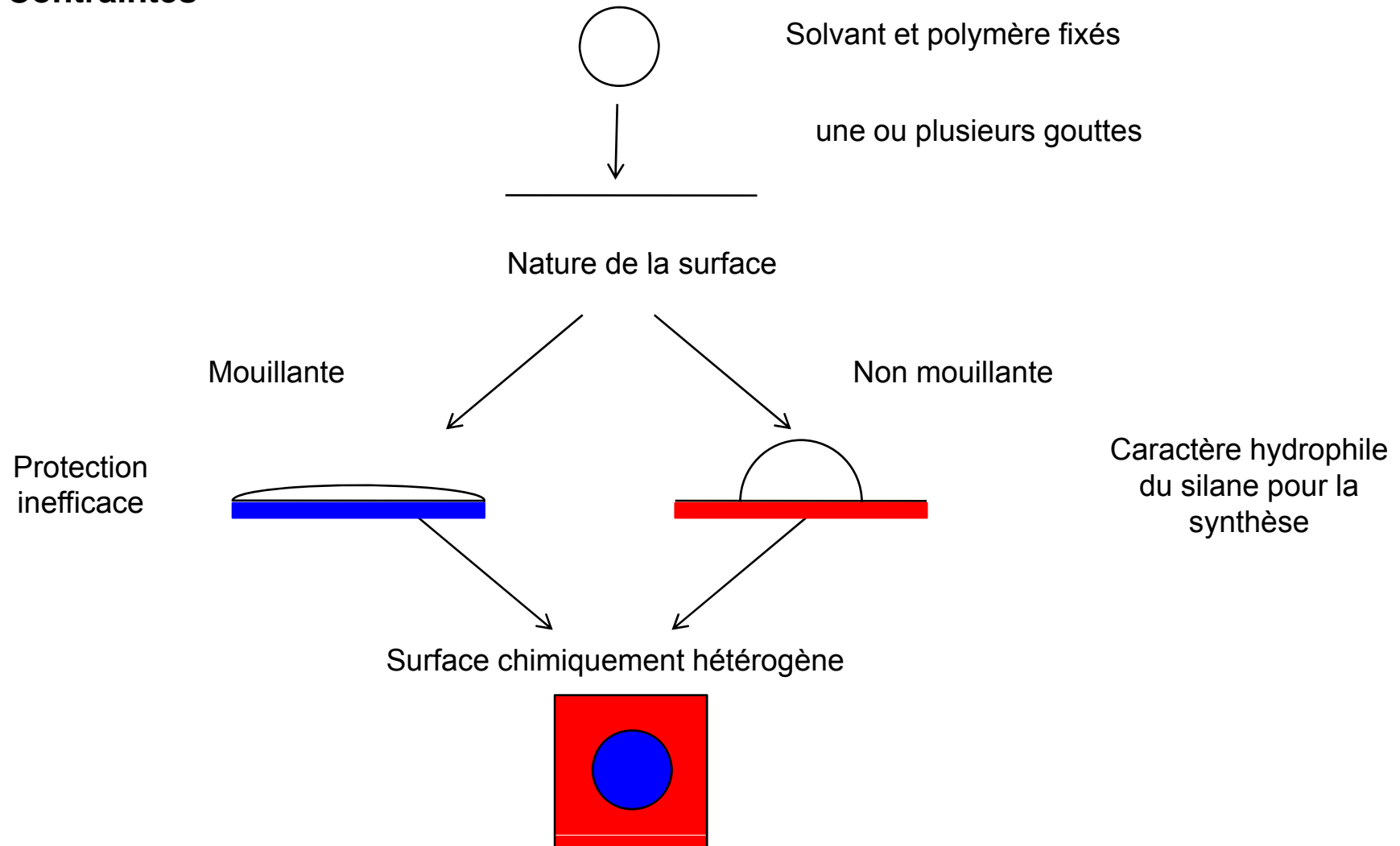
Répétition du processus



Oligonucléotides avec des séquences différentes sur dans chaque cuvette..

## Introduction

### Contraintes



## *Plan général de la présentation*

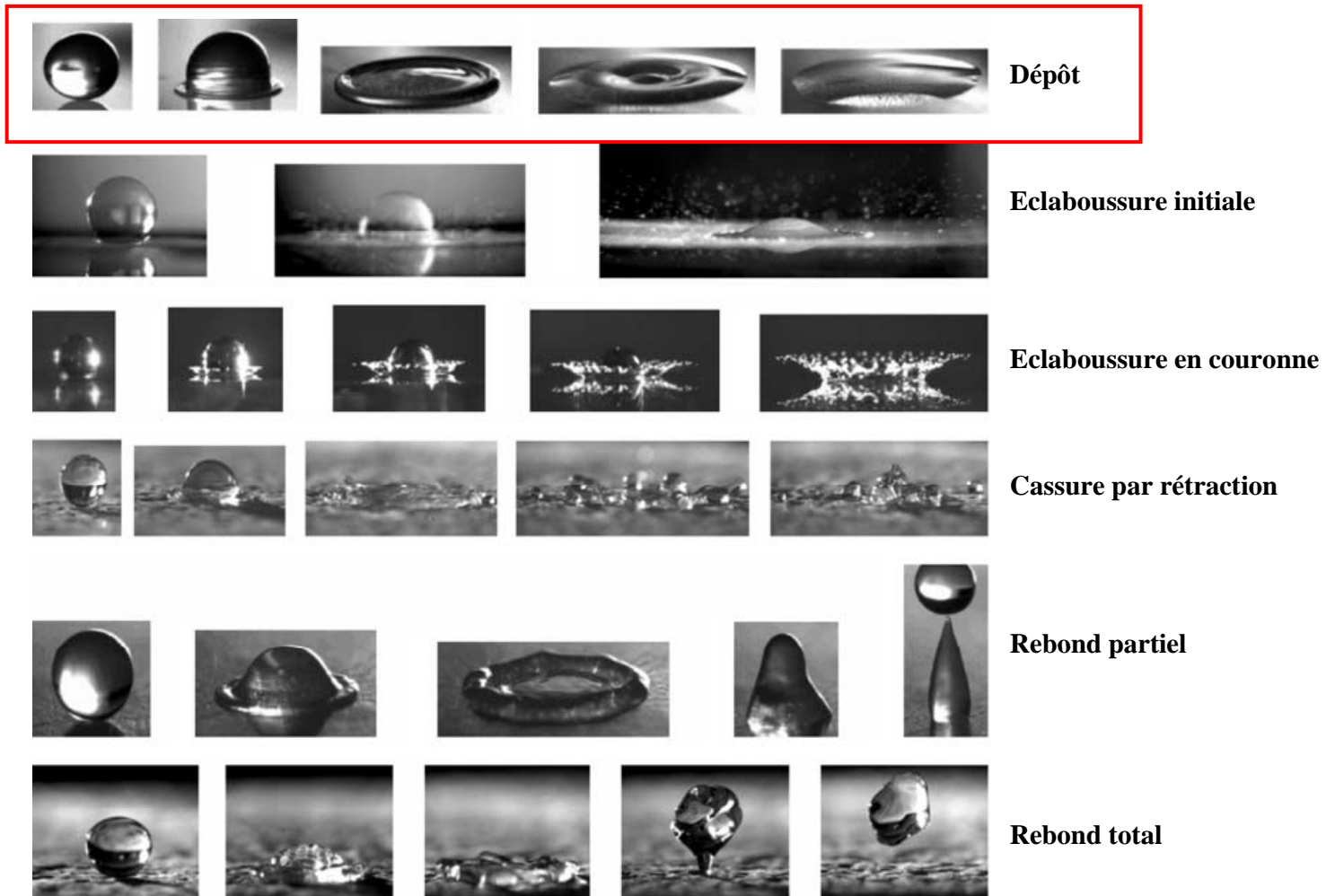
---

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

# Contexte Scientifique



## *Phénomène d'impact*



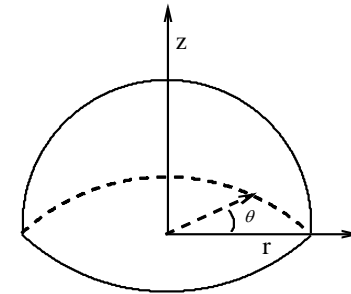
Les comportements possibles lors de l'impact d'une goutte

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

## Nombres sans dimension

Échelles:

- Vitesse: vitesse d'impact **U**
- Longueur: diamètre initial de la goutte en vol **D<sub>0</sub>**
- Temps: **t<sub>c</sub> = D<sub>0</sub>/U**



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

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

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

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

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

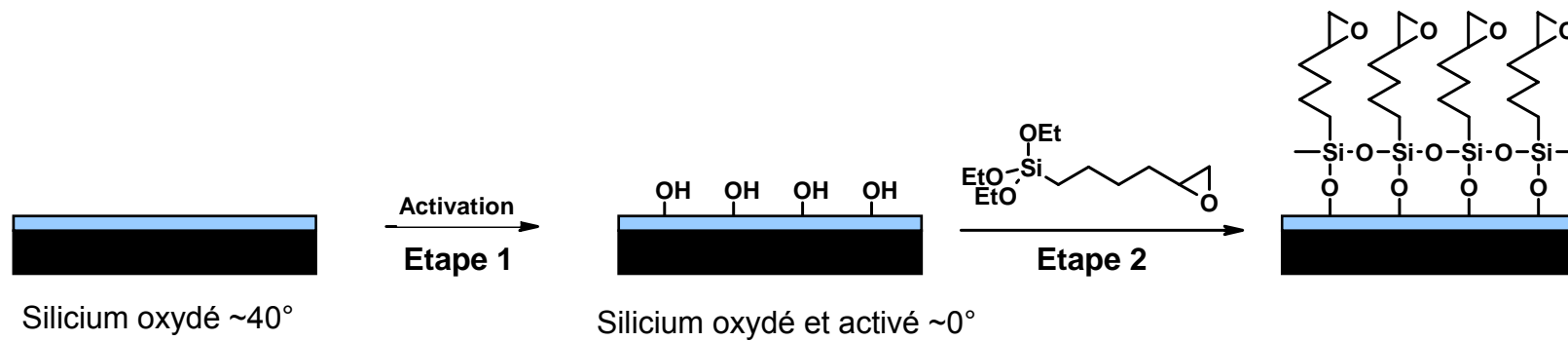
	We	Re	Mc	Fr
D <sub>0</sub> = 2mm, U = 0.5m/s, ρ = 1000kg/m <sup>3</sup> , μ = 1 mPa.s σ = 73mN/m	6.8	1000	<del>3.3 · 10<sup>-4</sup></del>	<del>1.7</del>
D <sub>0</sub> = 50μm, U = 5m/s, ρ = 1000kg/m <sup>3</sup> , μ = 10 mPa.s σ = 30mN/m	41	25	<del>3.3 · 10<sup>-4</sup></del>	<del>5.1 · 10<sup>4</sup>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

# Dispositifs Expérimentaux

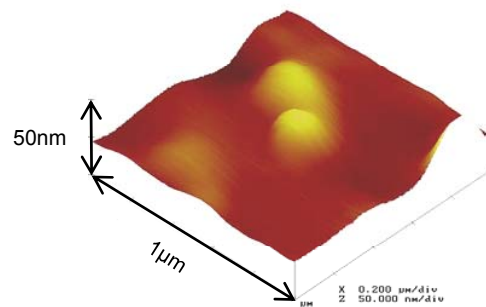
## Surfaces modèles

### Surfaces parfaitement caractérisées

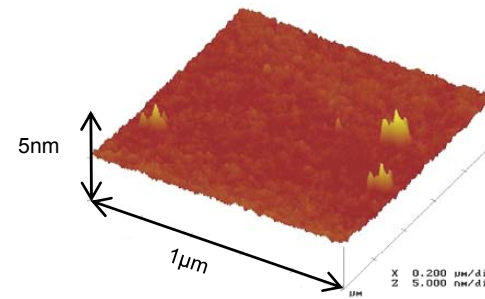
Large gamme de mouillabilité: de **5° à 110°**



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



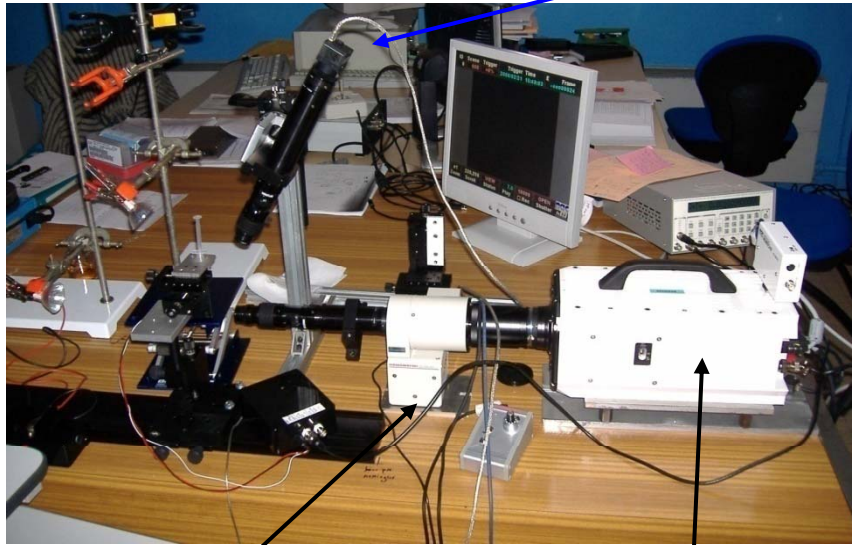
Silicium oxydé



Silicium silanisé

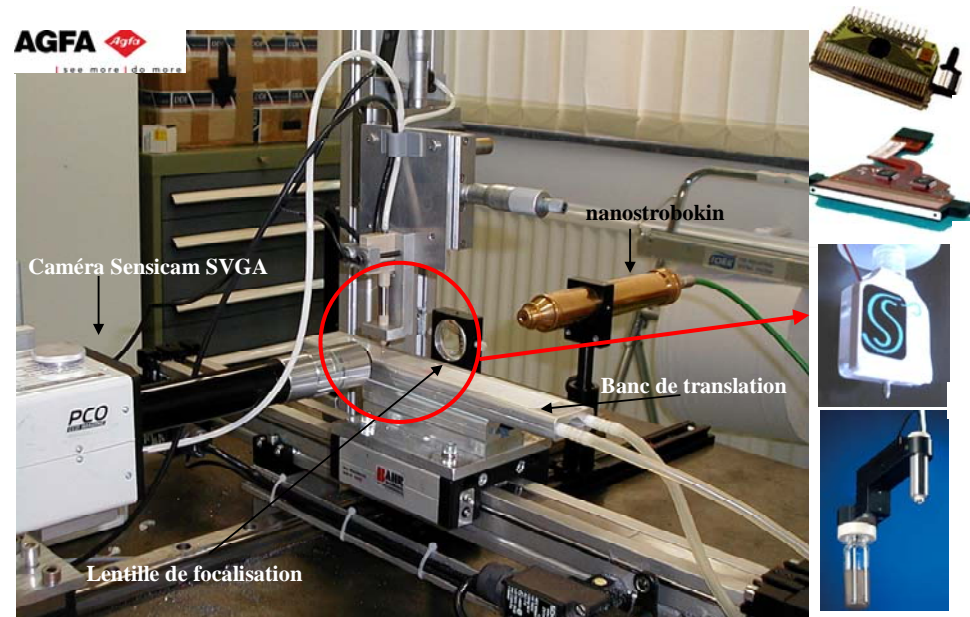
## Dispositifs de visualisation

### Camera CCD



Intensificateur de lumière  
Obturation de 10ns à 1µs

Camera Nac  
Jusqu'à 168 000 i/s



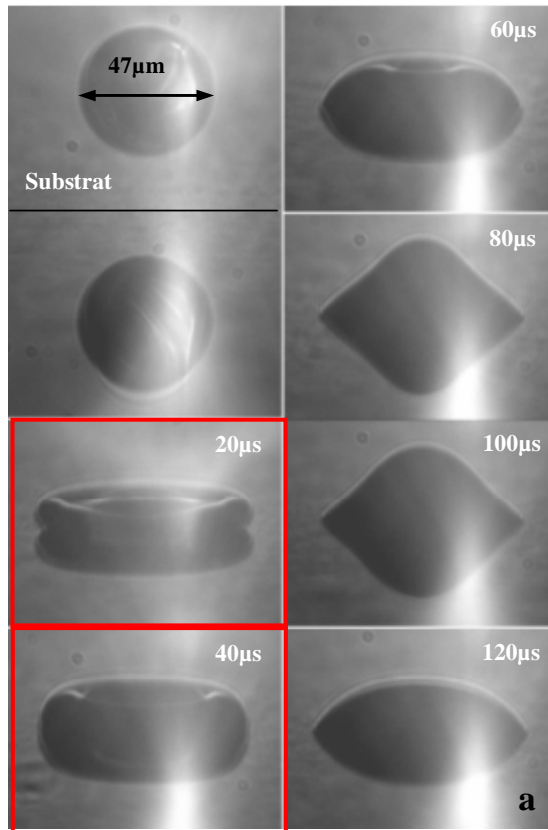
20000 flashes / seconde

Durée de 20ns

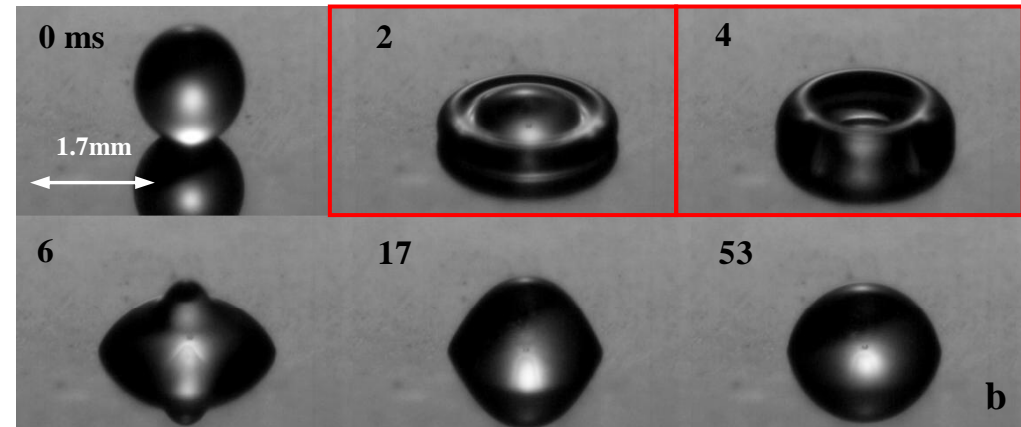
Mourougou-Candoni et al (1997), Journal of Colloid and Interface Science, vol.192  
Rozhkov et al (2002), Physics of Fluids, vol.14



## *Dispositifs de visualisation*



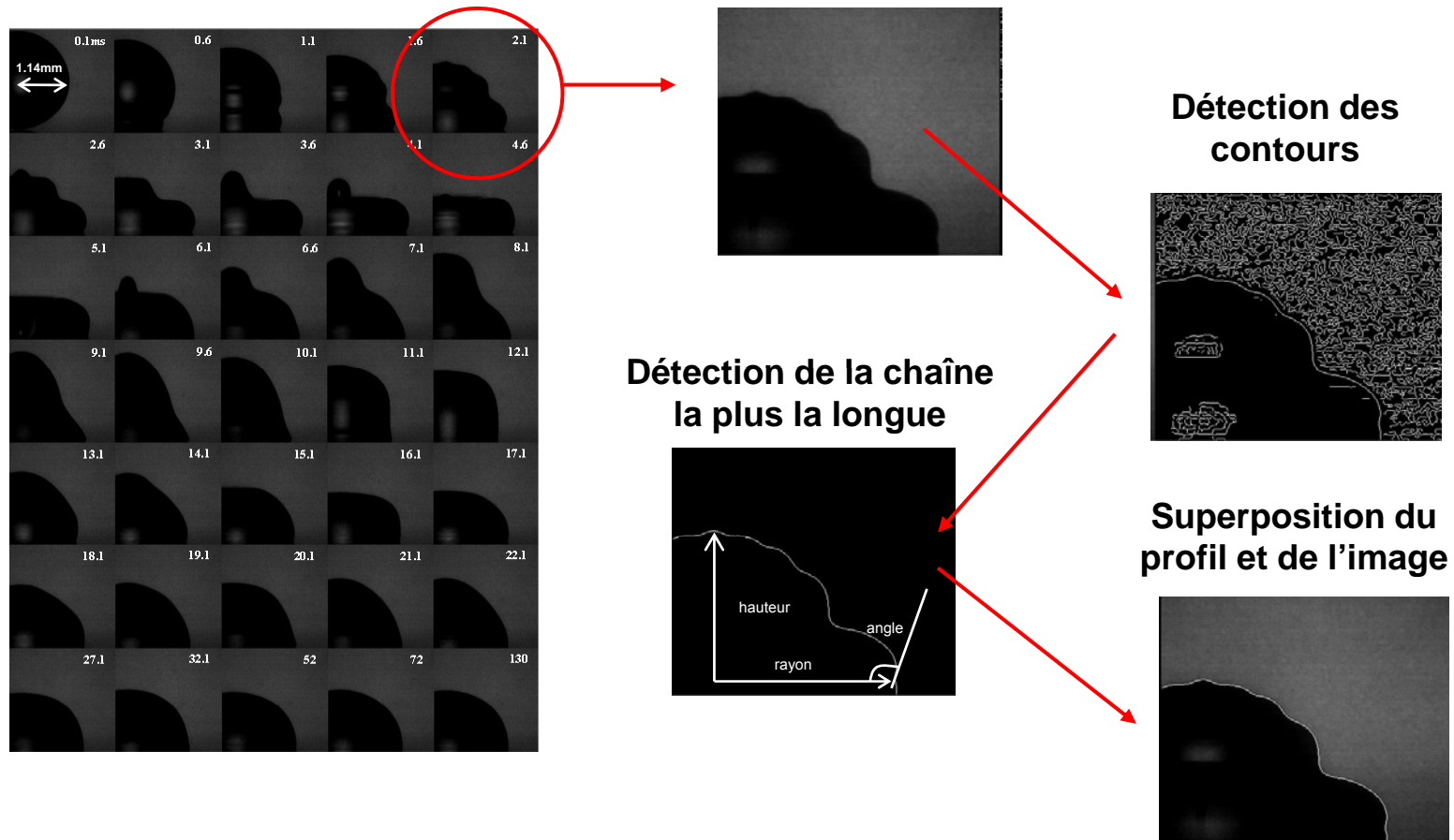
$We = 12.7, Re = 44$



$We = 15.6, Re = 62$

## Traitement automatique d'image

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



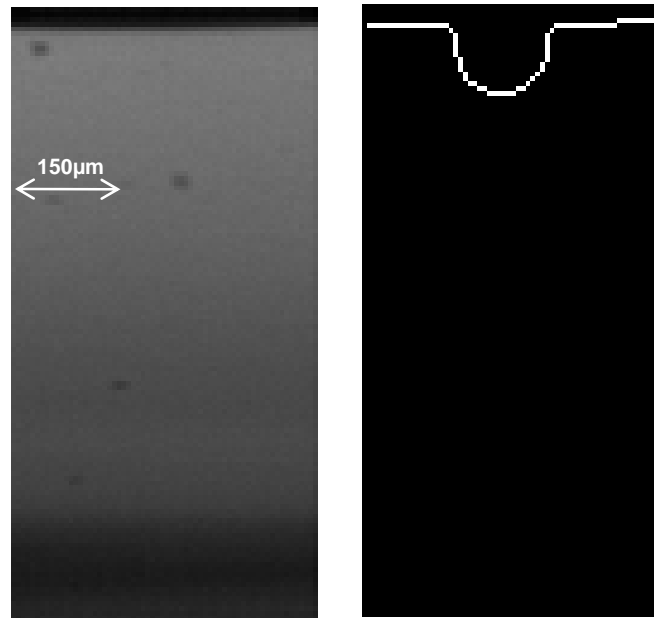
Incertitude de détection: 1 pixel soit 7 $\mu$ m

## *Traitement automatique d'image*

---

### Mécanisme d'éjection

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



Fréquence: 40000 i/s

Filtre « Canny »

Obturation à  $2\mu\text{s}$

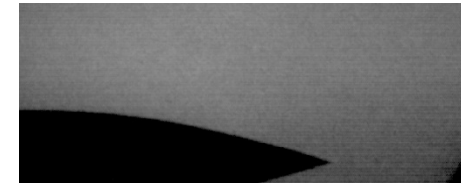
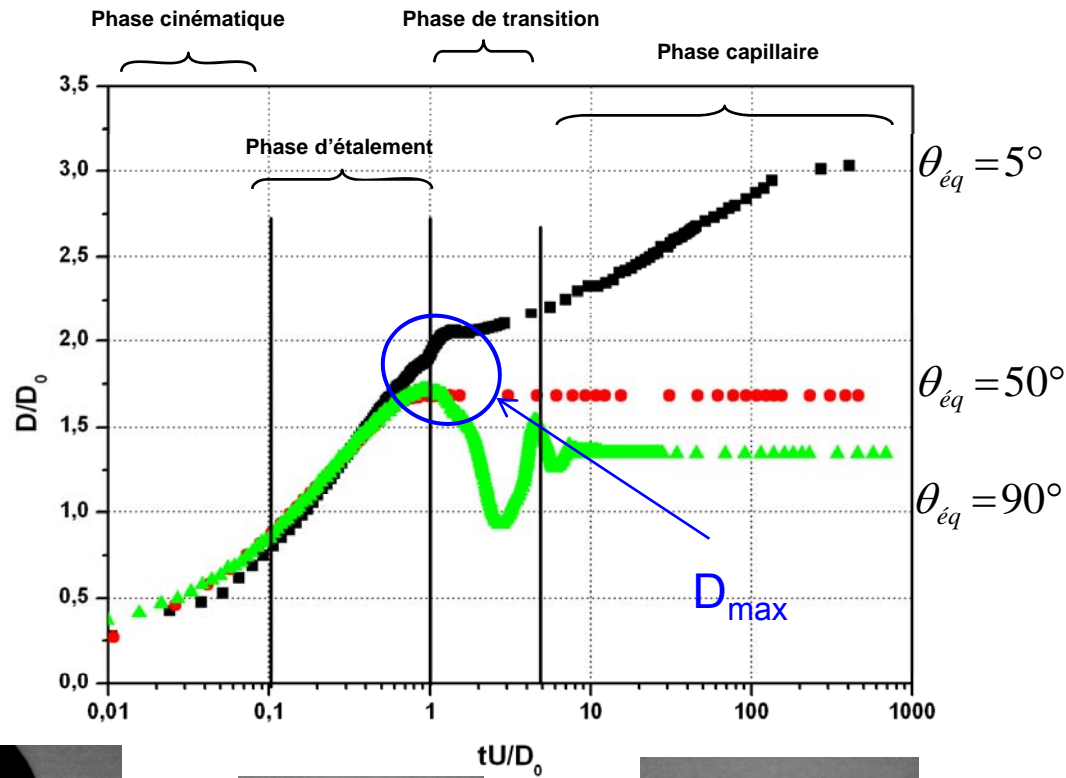
$D_{\text{buse}}$ :  $150\mu\text{m}$

**Incertitude: 1 pixel soit  $2\mu\text{m}$**

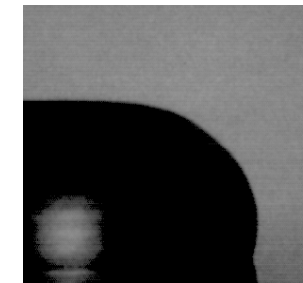


# Impact sur Surface Homogène

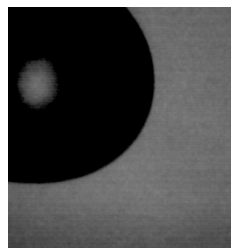
## Les différentes phases



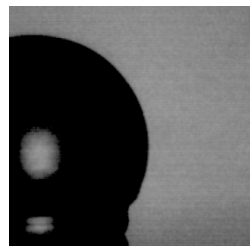
Phase capillaire: étalement capillaire



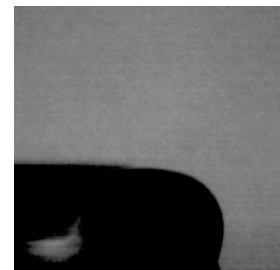
Phase capillaire: oscillations



Phase cinématique

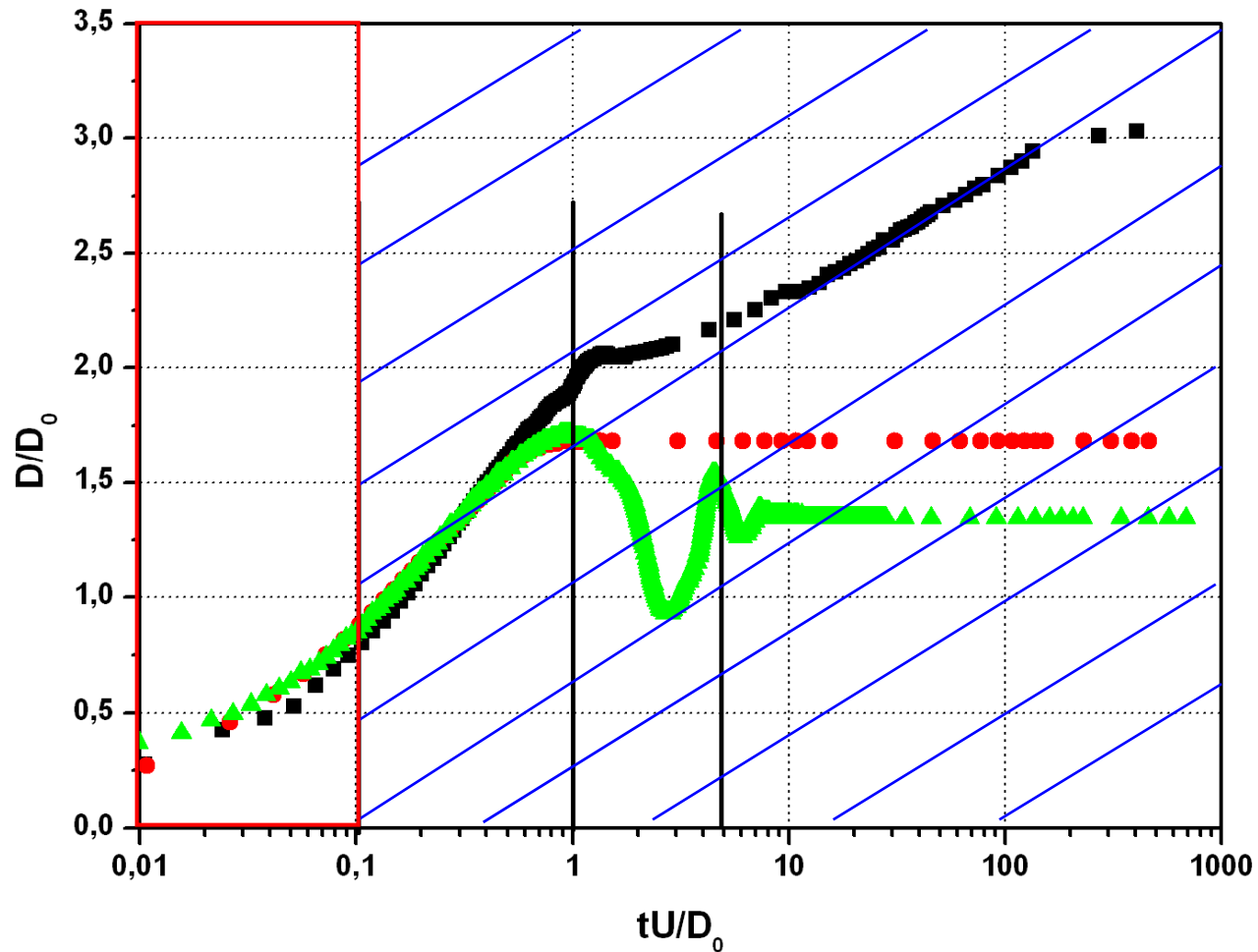


Phase d'étalement

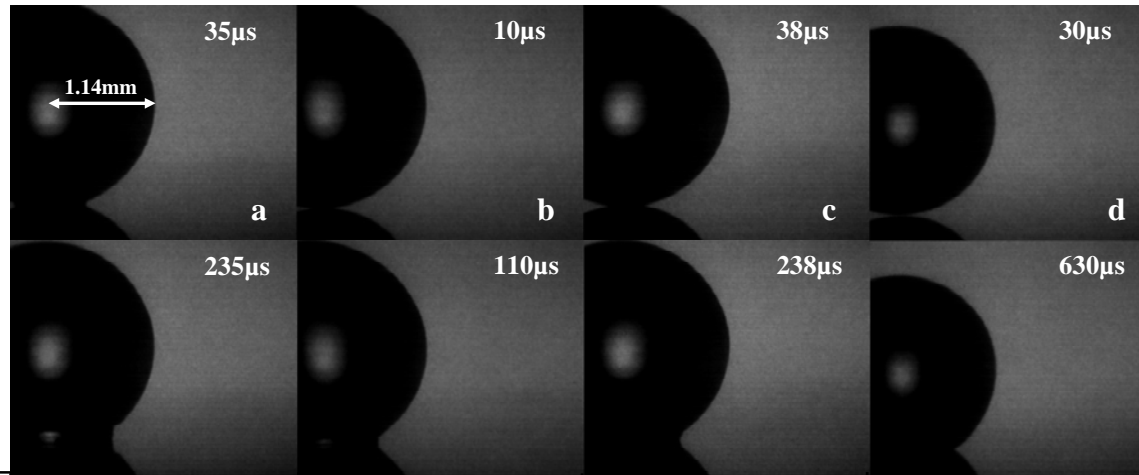


Phase de transition

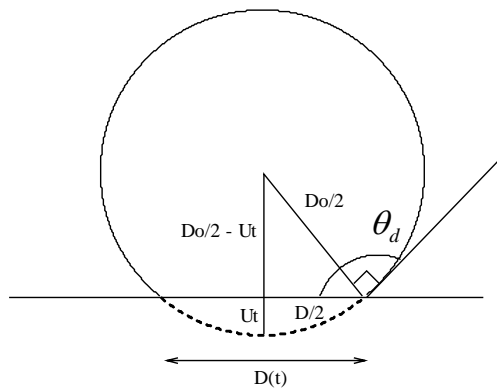
## *La phase cinématique*



## La phase cinématique



<b>U (m/s)</b>	<b>0.35</b>	<b>1</b>	<b>0.35</b>	<b>0.35</b>
<b>μ (mPa.s)</b>	<b>1</b>	<b>1</b>	<b>1</b>	<b>100</b>
<b>θ<sub>éq</sub> (°)</b>	<b>35°</b>	<b>35°</b>	<b>90°</b>	<b>35°</b>



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

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

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

β = paramètre ajustable

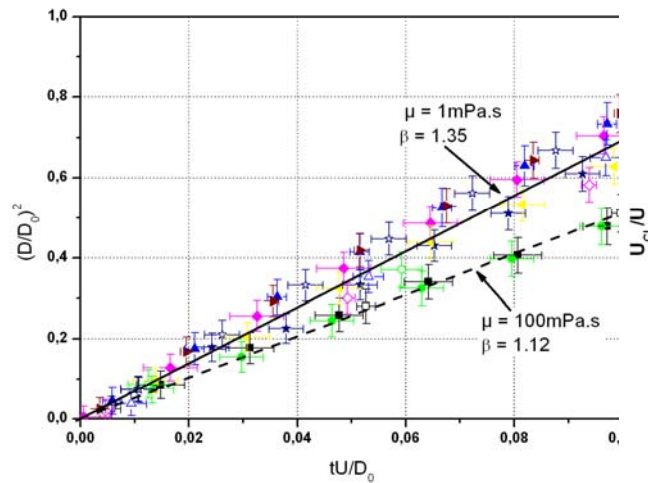
## La phase cinématique

### Évolution du diamètre de contact

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

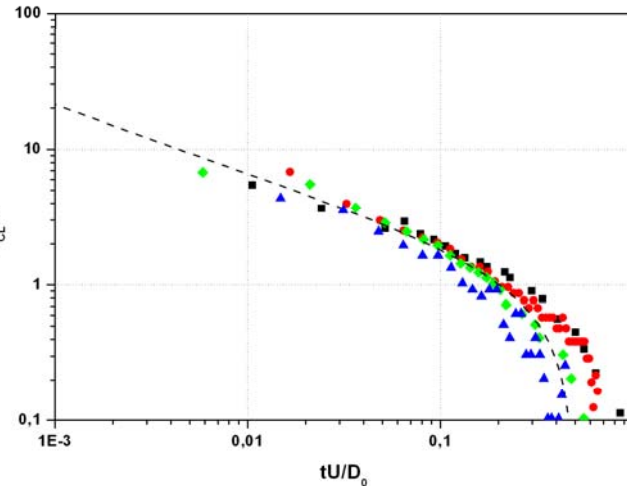
$$\frac{U_{CL}}{U} = \frac{\beta}{2} \frac{1 - 2\frac{t}{t_c}}{\sqrt{\frac{t}{t_c} \left(1 - \frac{t}{t_c}\right)}}$$

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



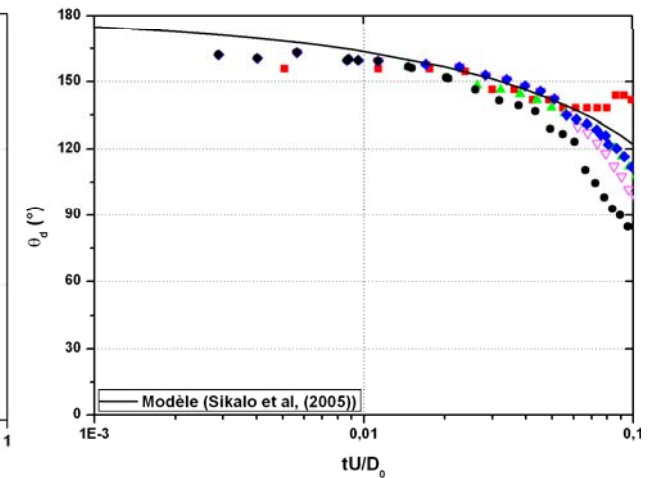
$\theta_{\text{éq}} \in [5; 110]$

$U \in [0.3; 1]$



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

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



$\theta_{\text{éq}} \in [5; 110]$

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

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

## *Résumé*

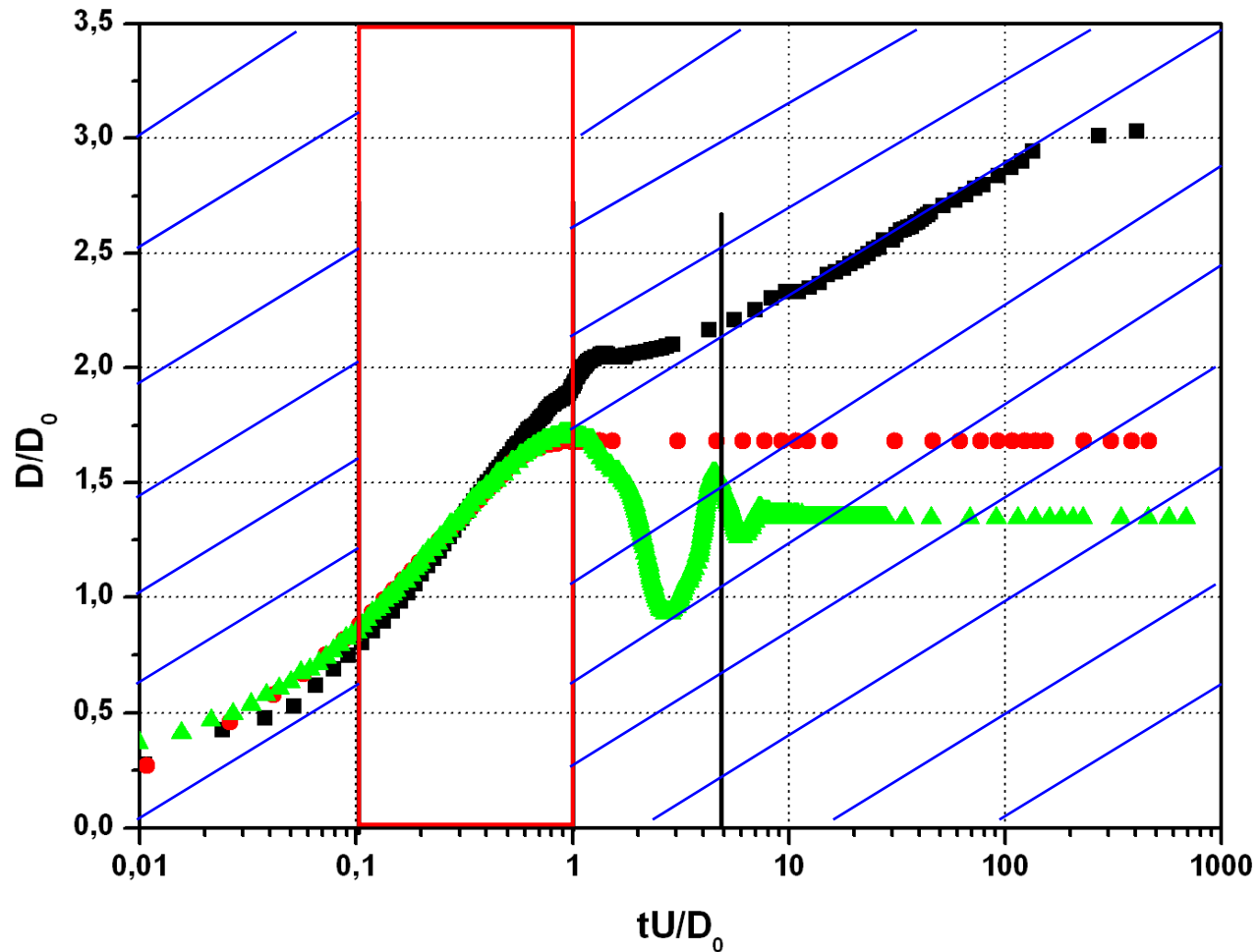
---

### Phase cinématique:

Bon accord entre modèles géométriques et expériences

Paramètre ajustable dépendant de la viscosité

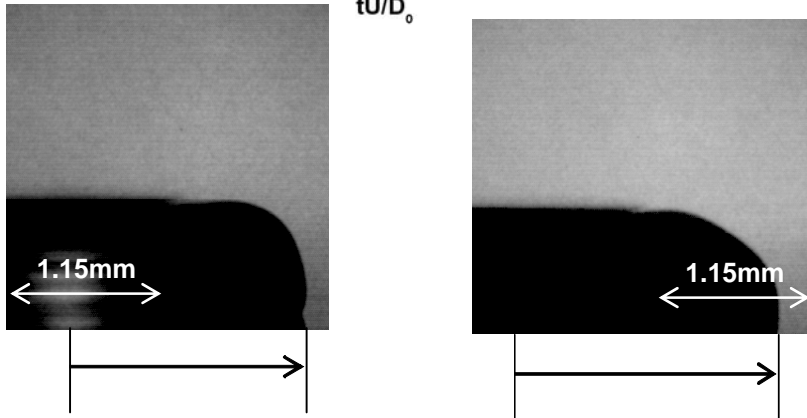
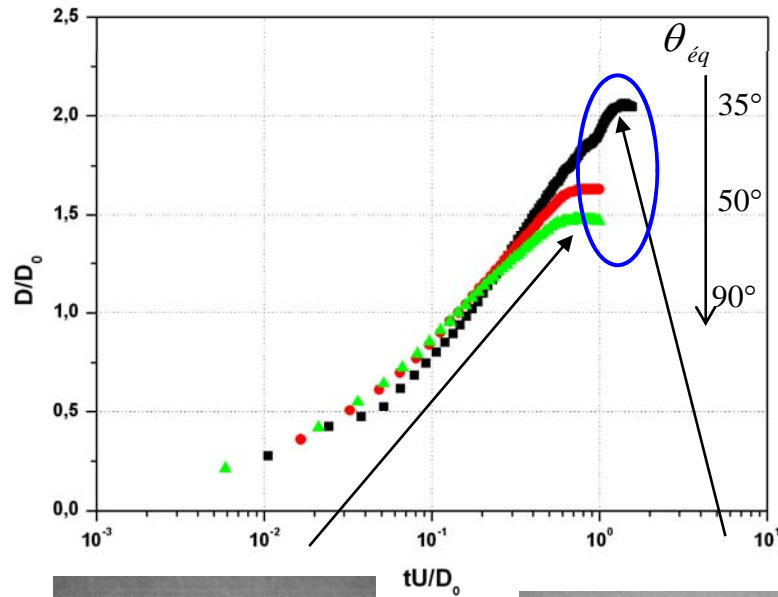
## *La phase d'étalement*



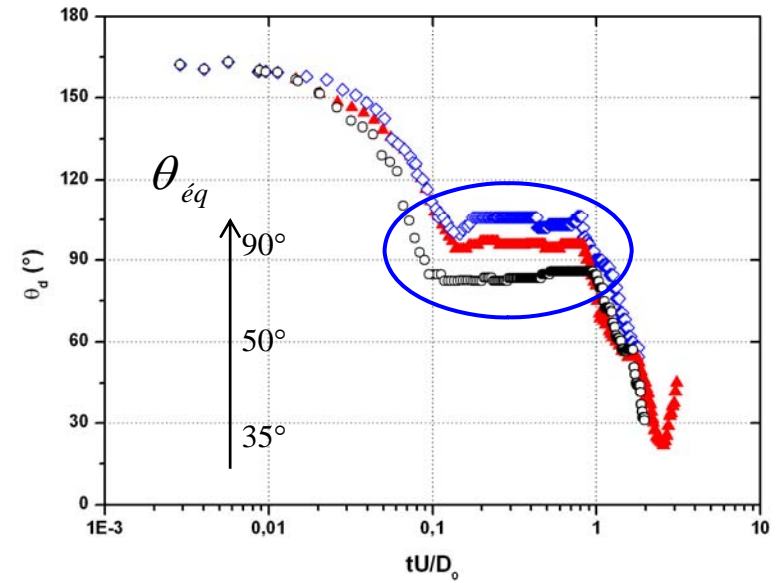
## La phase d'étalement

### Effet de la mouillabilité de la surface

Sur le diamètre de contact



Sur l'angle de contact dynamique



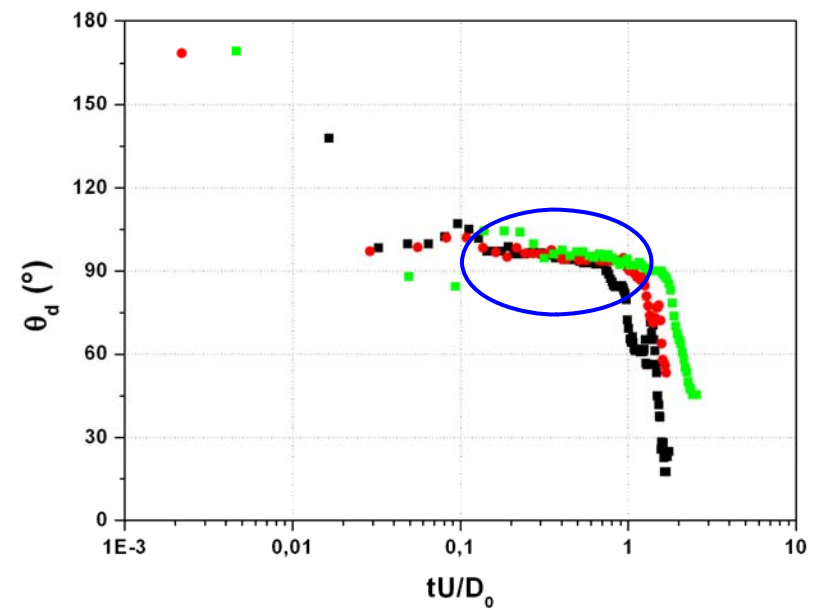
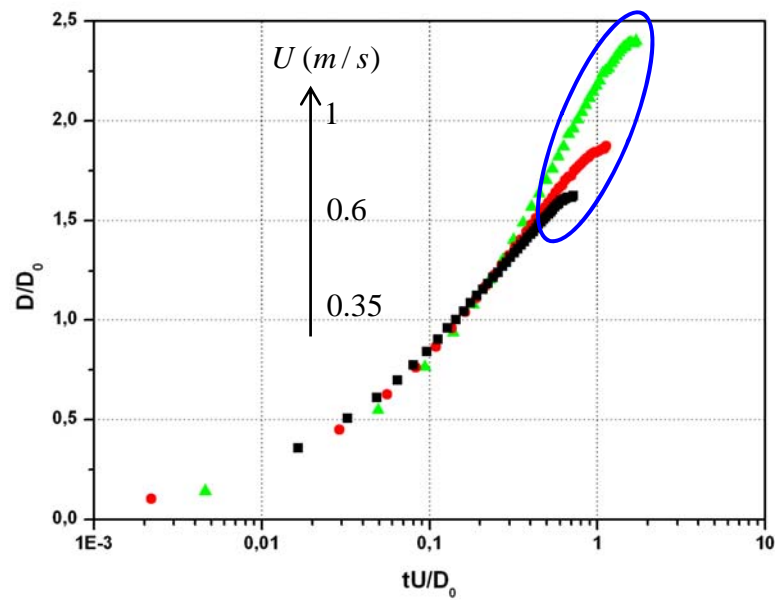
$$D_0 = 2.28\text{mm}, \mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}, \sigma = 73\text{mN/m}, U = 0.35\text{m/s}$$



## *La phase d'étalement*

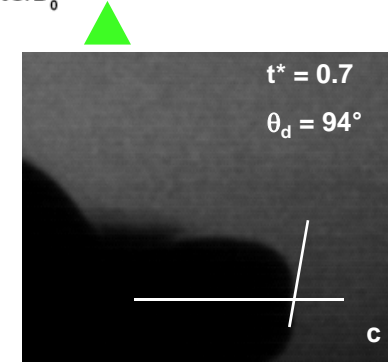
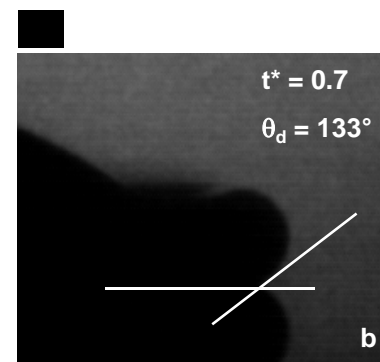
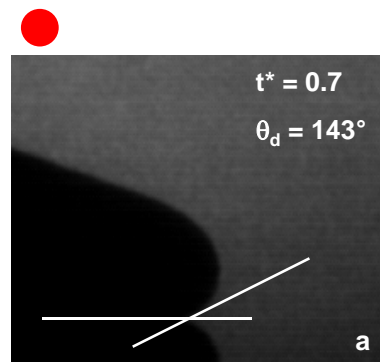
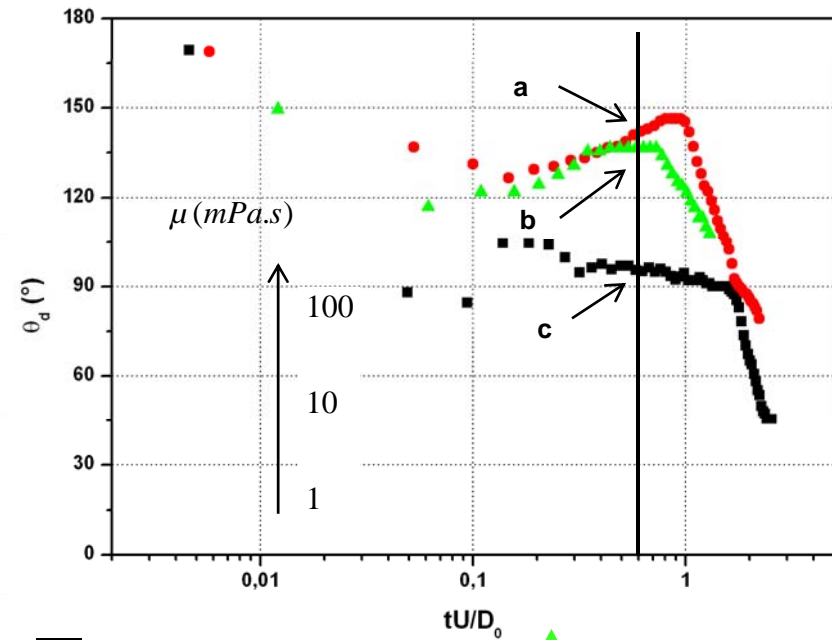
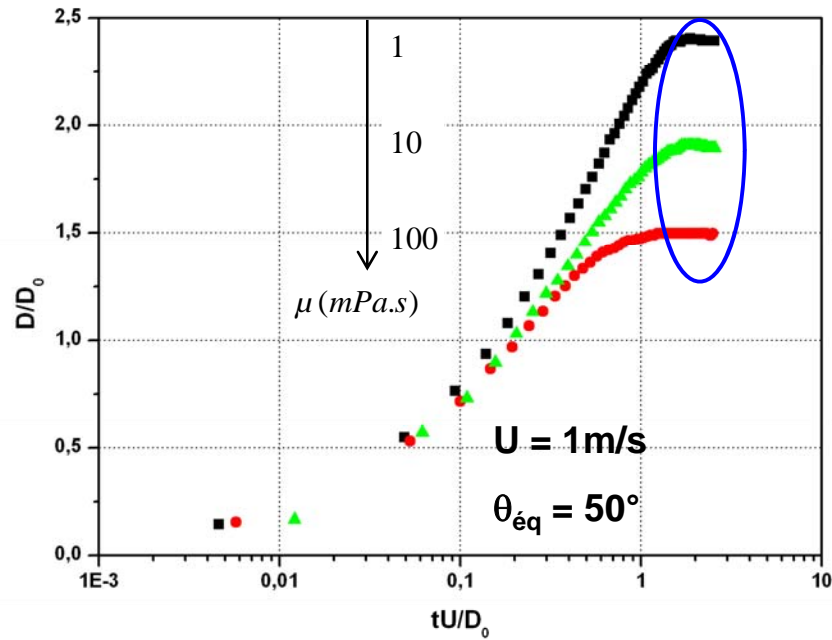
### Effet de la vitesse d'impact

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



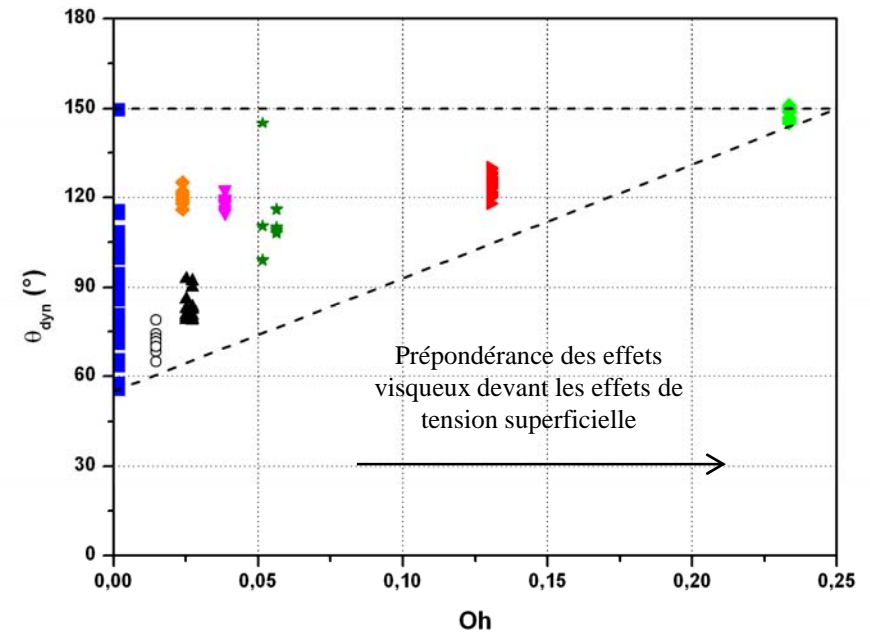
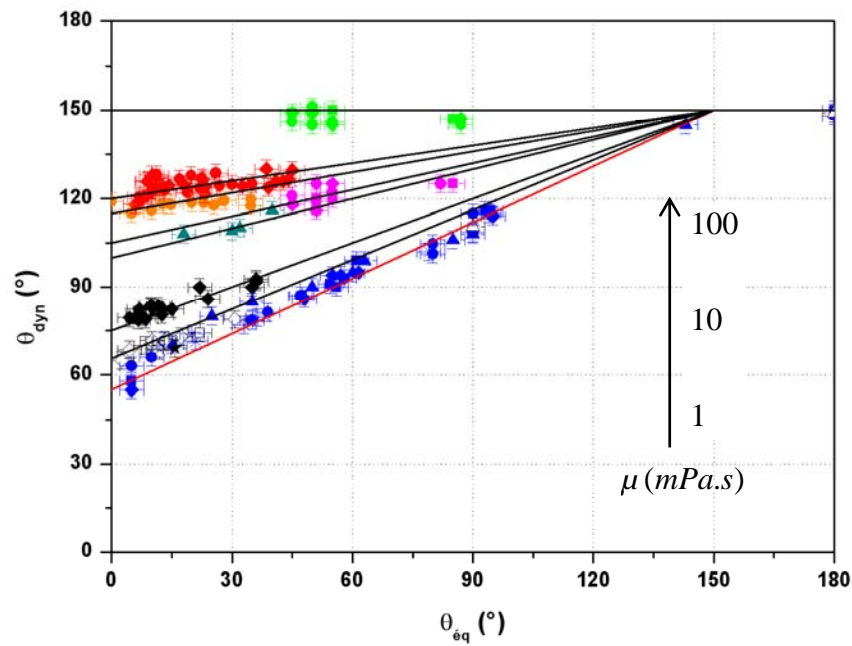
## La phase d'étalement

### Effet de la viscosité



## La phase d'étalement

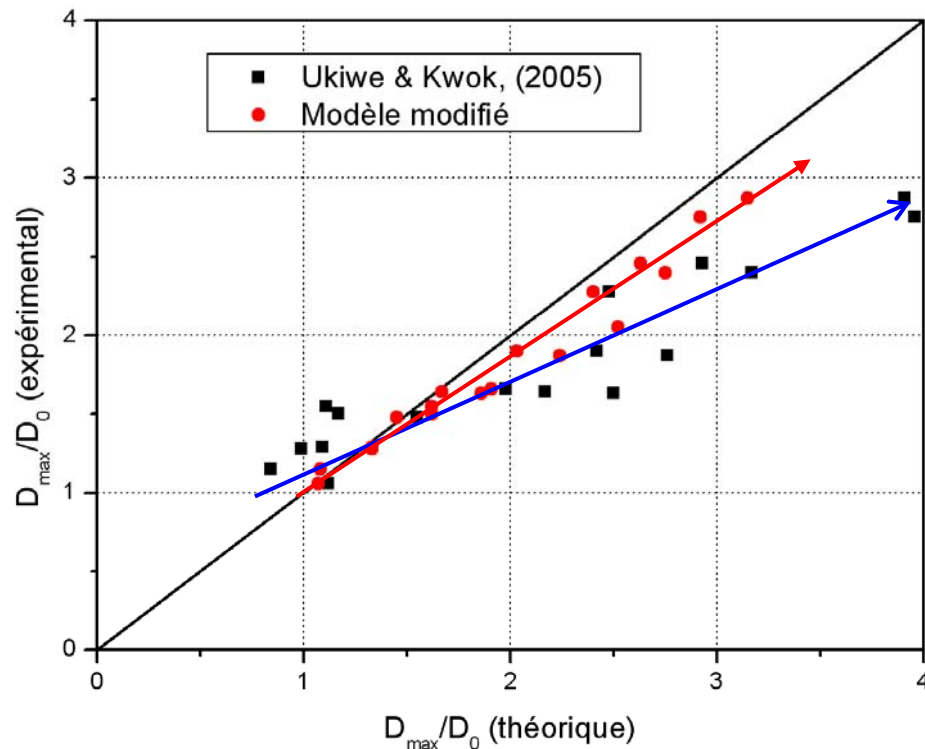
### Angle de contact dynamique



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

## La phase d'étalement

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



#### Modèle de Ukiwe & Kwok

(Langmuir, 2005)

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

#### Modèle modifié

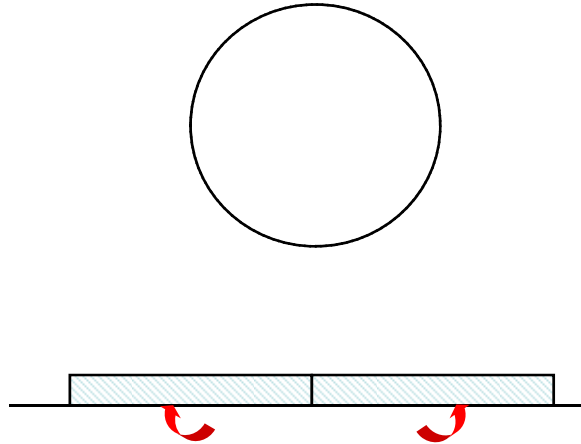
$$(We + 12) \frac{D_{\max}}{D_0} = 8 + \left( \frac{D_{\max}}{D_0} \right)^3 \left[ 3(1 - \cos \theta_{dyn}) + \frac{3}{2} \delta \frac{We}{\sqrt{Re}} \right]$$

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

$\delta$  correspond au temps que met la goutte pour atteindre l'étalement maximum

## La phase d'étalement

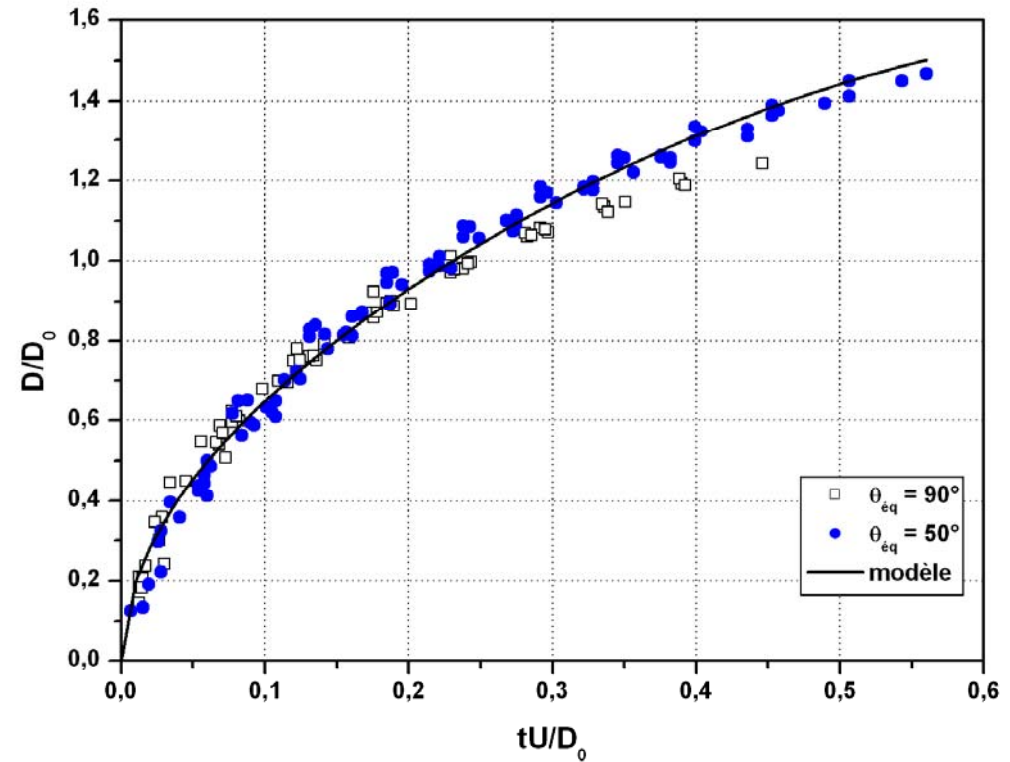
### Évolution temporelle du diamètre de contact



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

avec

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



## *Résumé*

---

### Phase d'étalement:

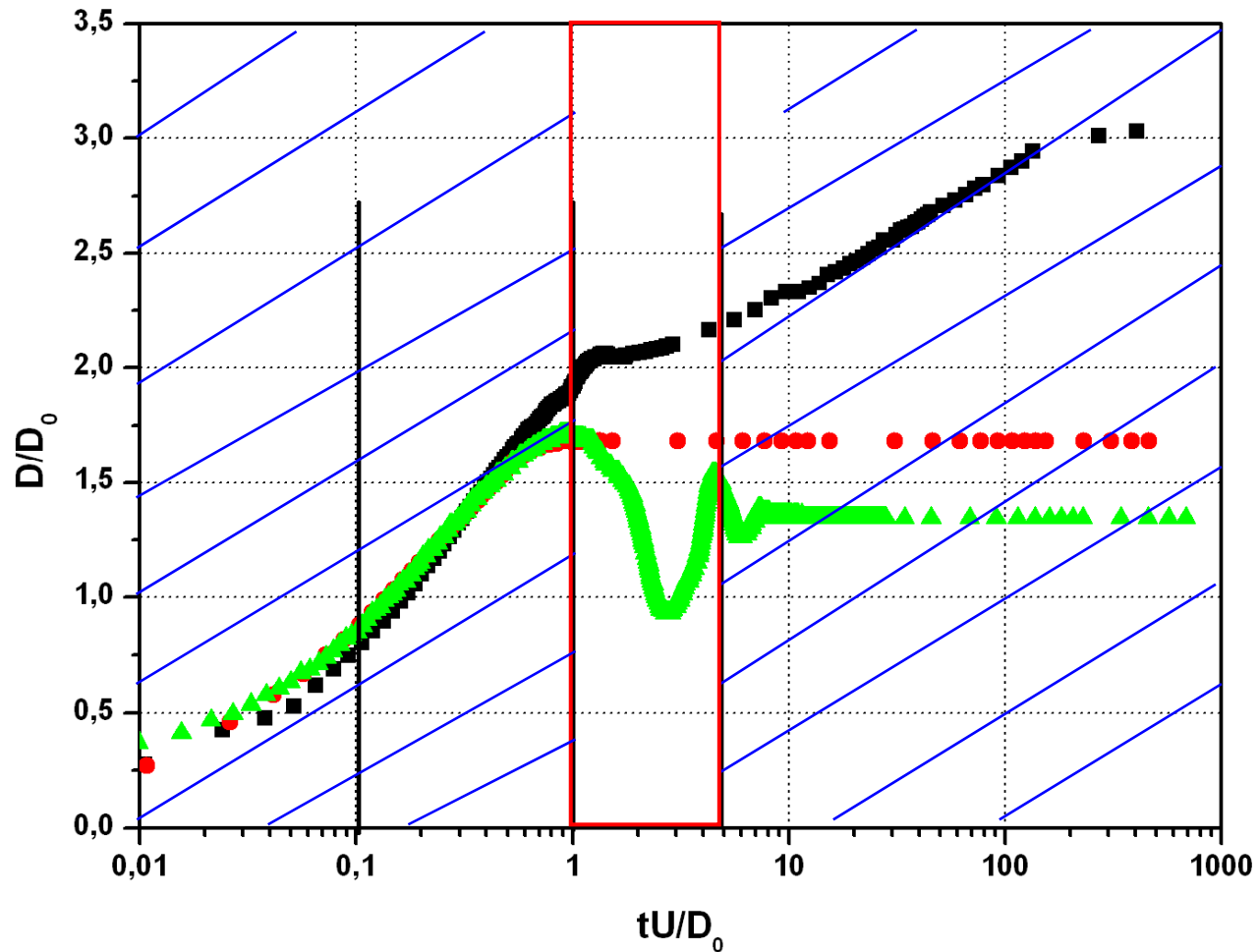
Influence de l'angle d'équilibre sur le diamètre maximum

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

Modèle énergétique pour l'étalement maximum

Modèle géométrique pour l'évolution temporelle du diamètre de contact

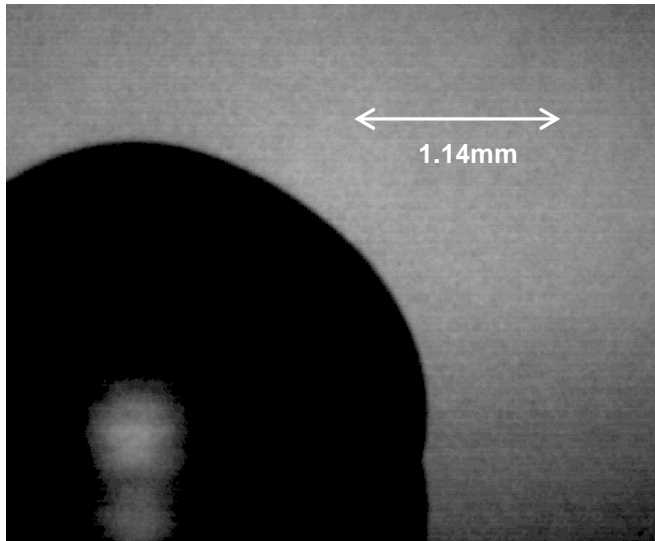
## *La phase de transition*



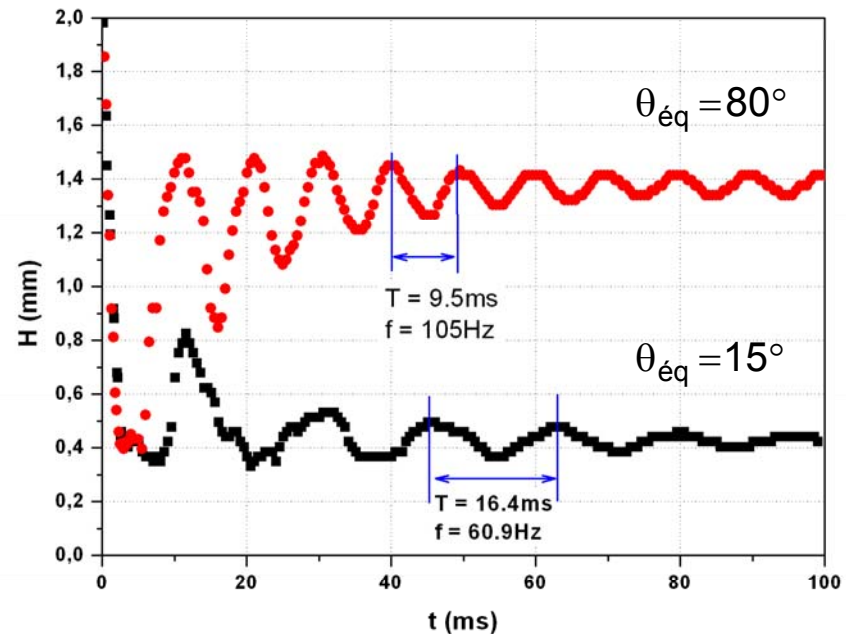


## La phase de transition

### Fréquence d'oscillation



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



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

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



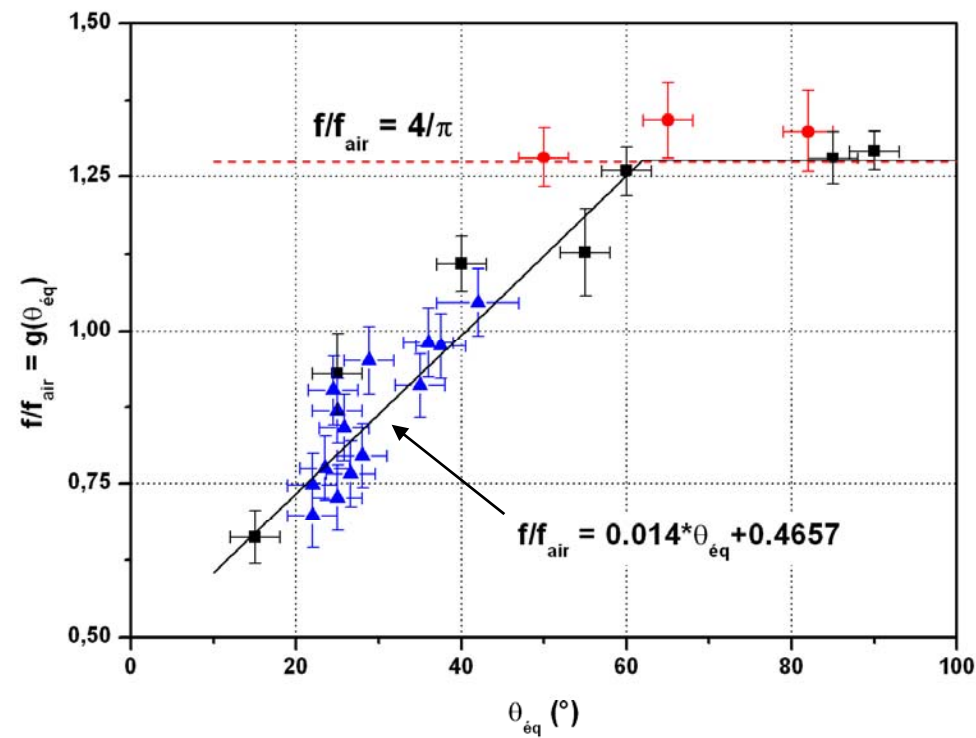
$$f = g(\theta_{\text{éq}}) \cdot f_{\text{air}}$$

Clift et al (1978) Academic, New York



## *La phase de transition*

### Fréquence d'oscillation



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

## La phase de transition

### Détermination de la tension de surface de l'éthylène glycol

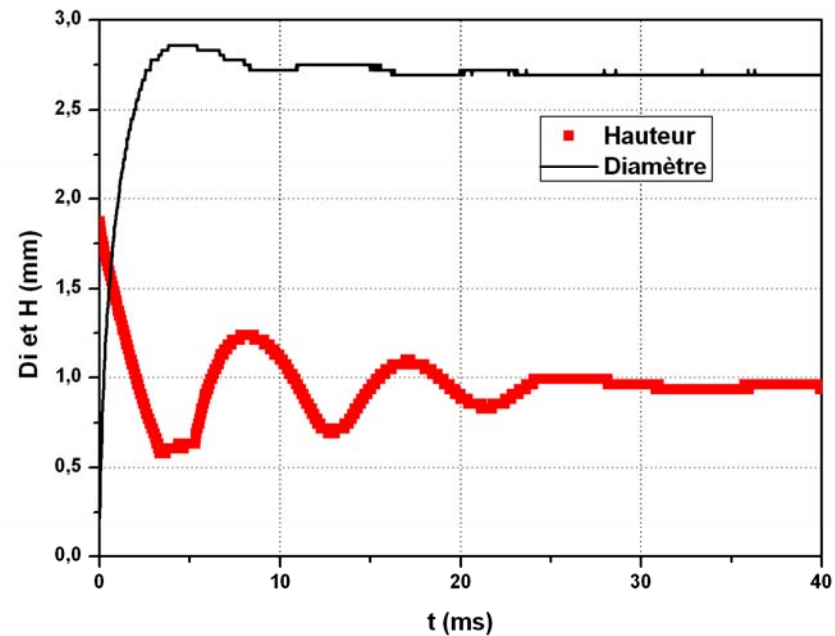
$$f = g(\theta_{\text{éq}}) \cdot f_{\text{air}} \quad \text{avec} \quad f_{\text{air}} = \sqrt{\frac{\sigma}{\rho D_0^3}}$$

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

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

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

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



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

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

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

## *Résumé*

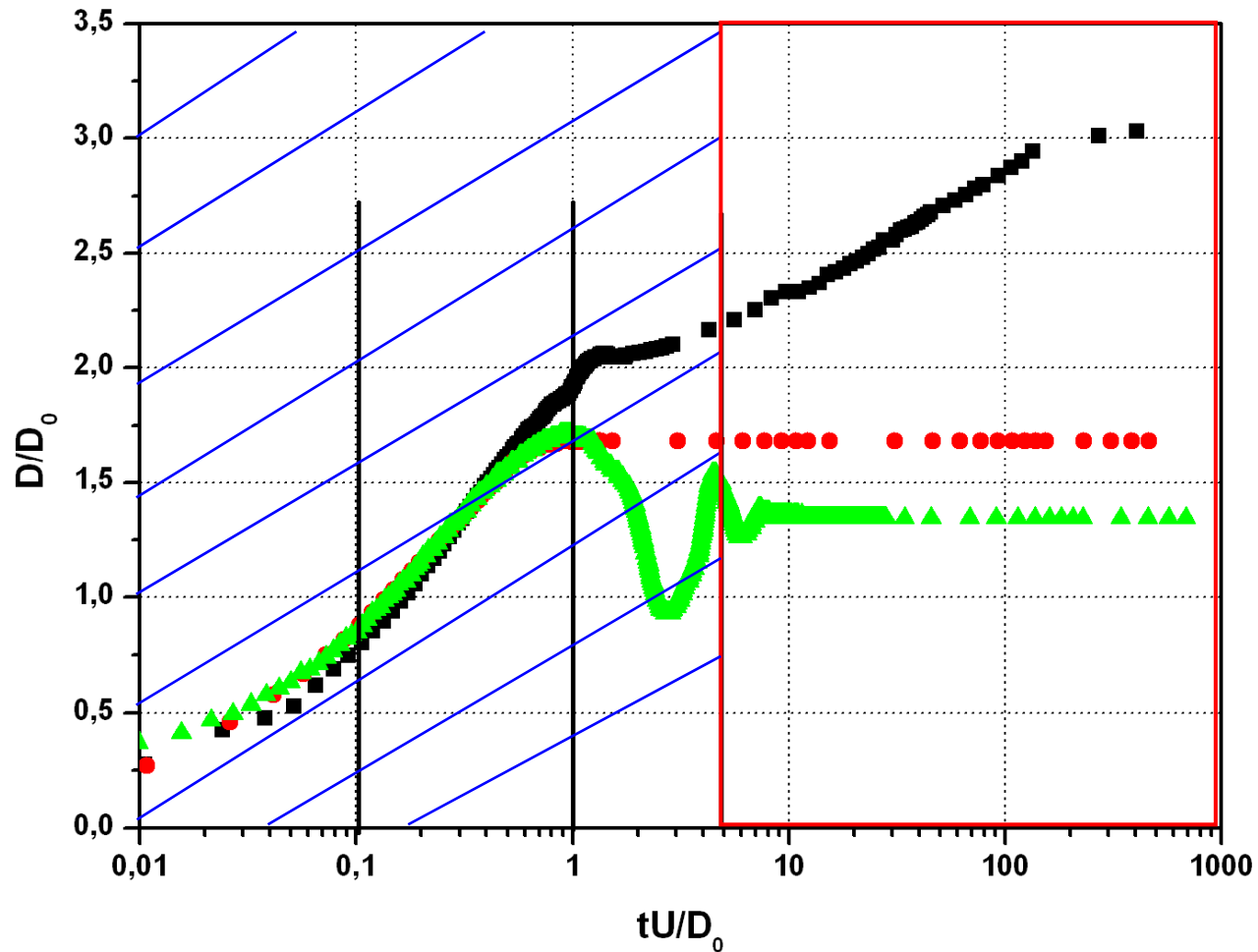
---

### Phase de transition:

Corrélation entre angle d'équilibre et fréquence d'oscillation

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

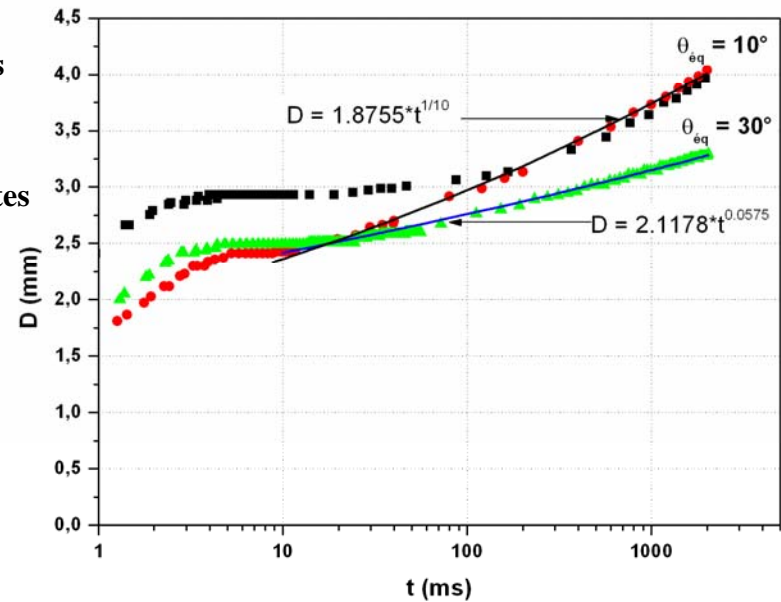
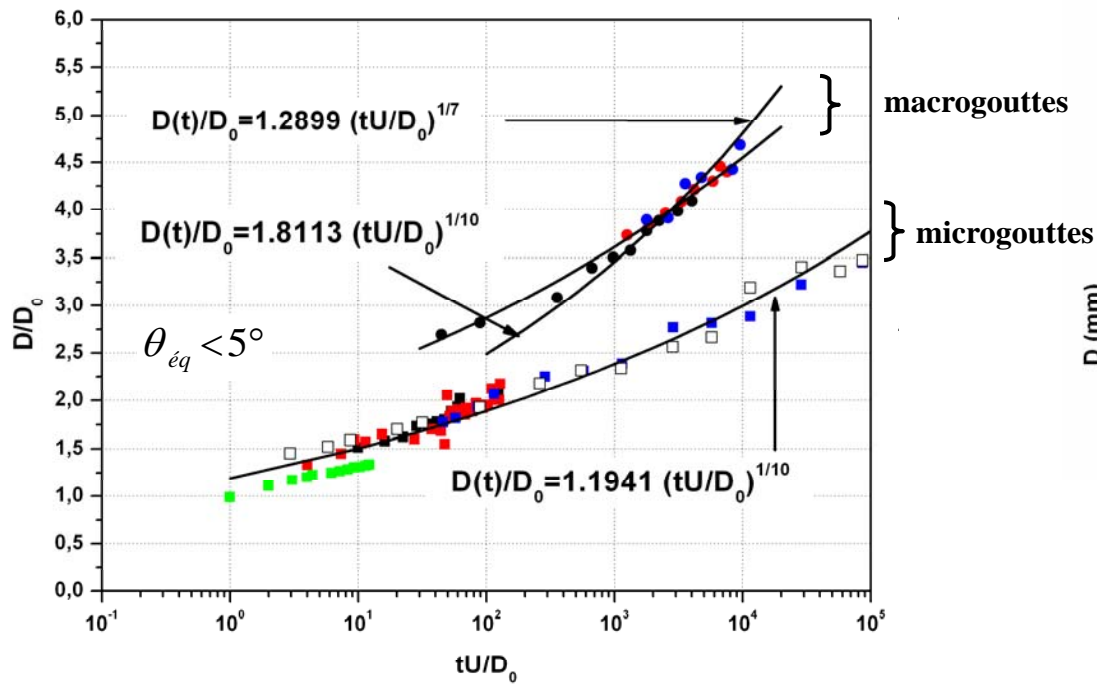
## *La phase capillaire*



## La phase capillaire

Régime asymptotique de la forme sur une surface complètement mouillante

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



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

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

## *Résumé*

---

### Phase capillaire:

Influence de l'angle d'équilibre

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

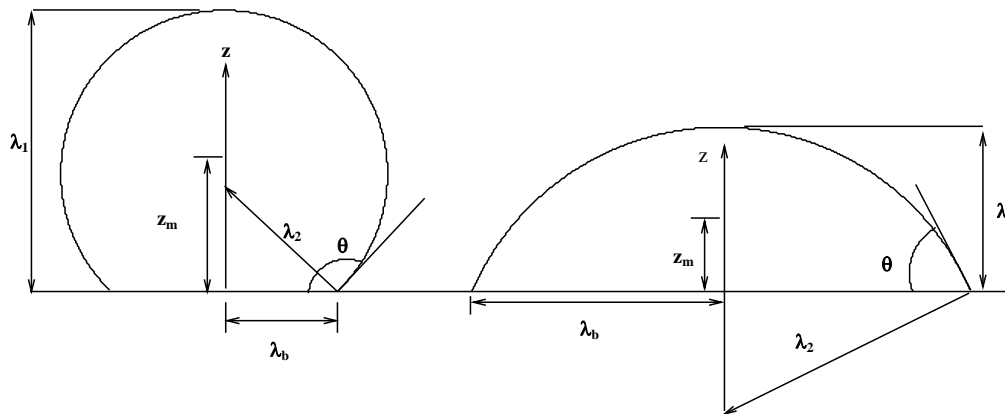
Similitude des mécanismes microgouttes/macrogouttes

## Méthode Variationnelle: principe

### Prédiction de l'évolution complète du diamètre de contact

Hypothèses:

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



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

$E_c$ : énergie cinétique

$E_p$ : énergie potentielle

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

Conditions initiales

$$x(0) = 1$$

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

→

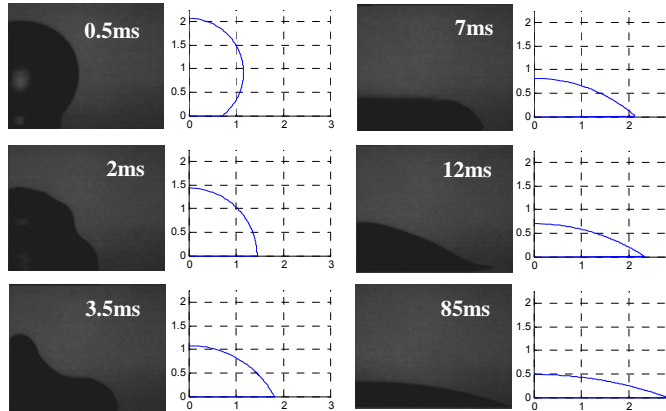
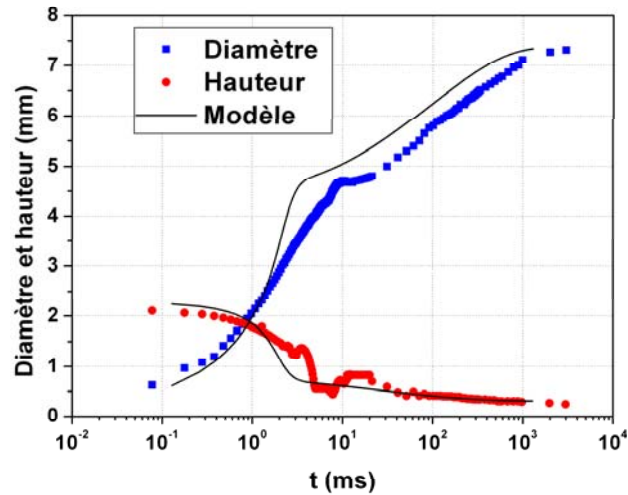
$$\frac{dx}{dt^*} = y$$

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

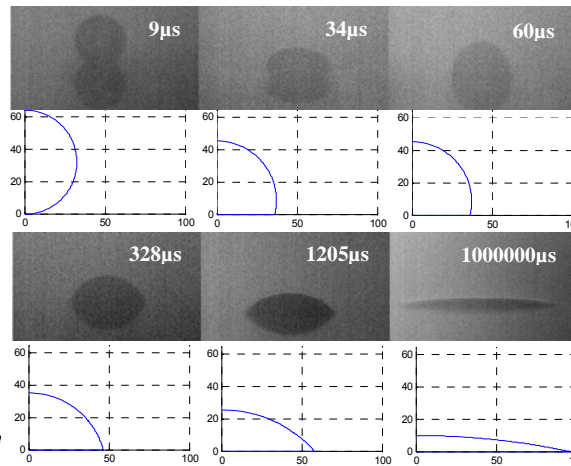
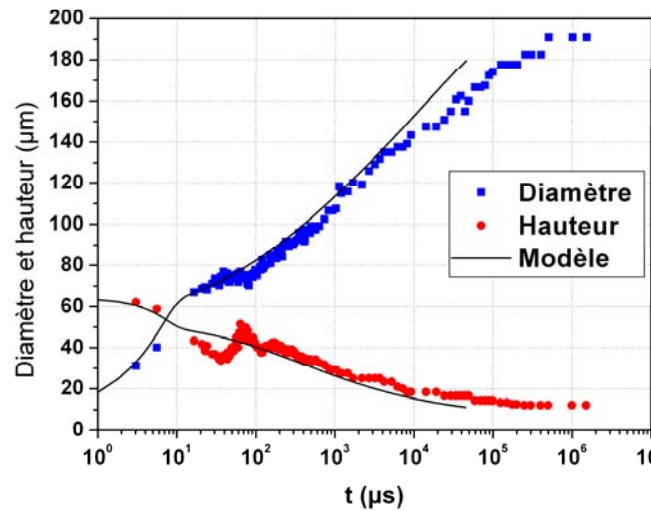
Contient le seul coefficient de dissipation  $F_d$

(Bechtel et al (1881), INIST CNRS vol6

## Comparaison avec l'expérience



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



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



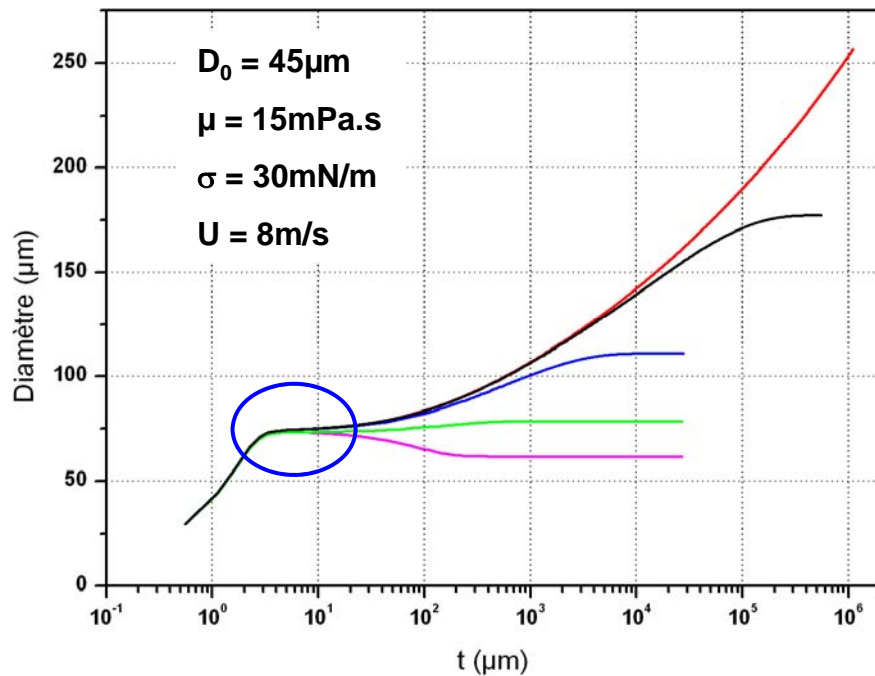
## Un outil de prédiction

Utile dans la prédiction du diamètre de contact.

Doivent être connus:

l'angle d'équilibre

les nombres de Weber et Reynolds



Détermination de  $\theta_{dyn}$  à partir de nos travaux



Permet de déterminer  $D_{max}$

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



Ajustement du coefficient  $F_d$

$\theta_{eq}$

## *Résumé*

---

### Méthode Variationnelle:

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

Détermination de  $D_{\text{max}}$  à partir de  $U$ ,  $D_0$

Ajustement du coefficient d'ajustement  $F_d$  dans la Méthode Variationnelle

Obtention de l'évolution temporelle complète du diamètre

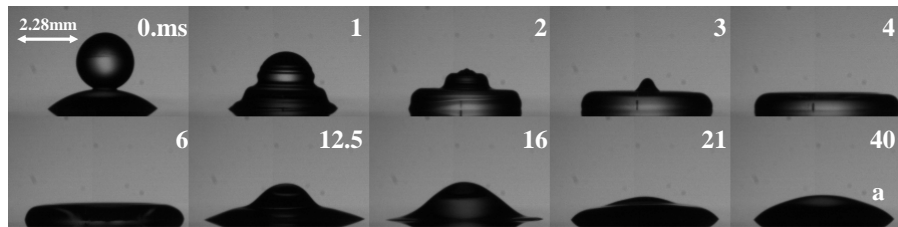
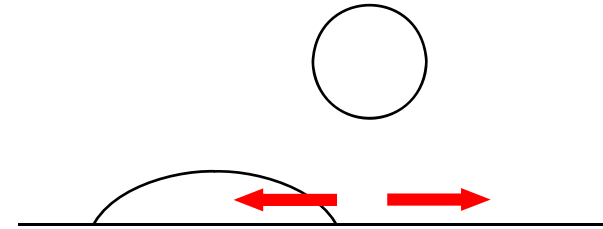
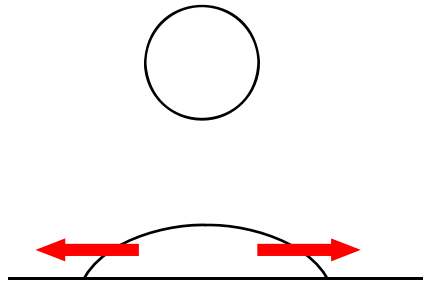
# Coalescence

## Coalescence

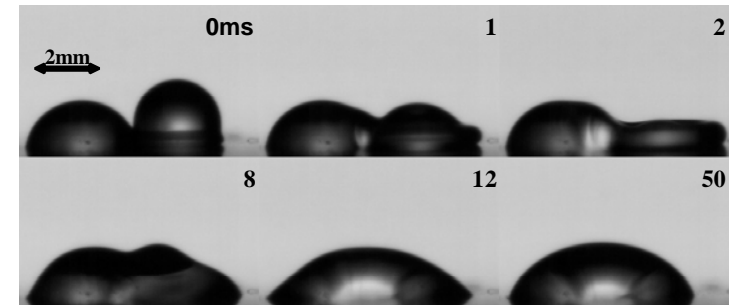
Deux cas particuliers de coalescence

Configuration axisymétrique

Configuration non axisymétrique



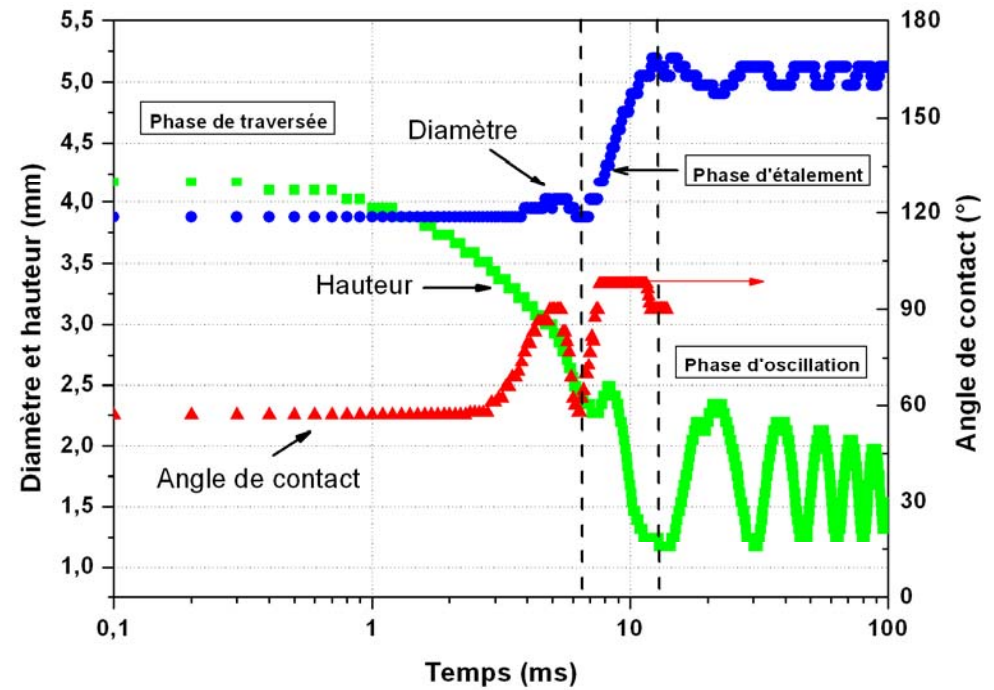
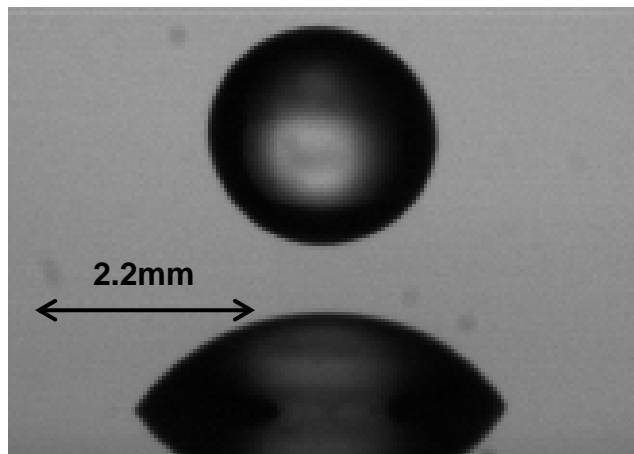
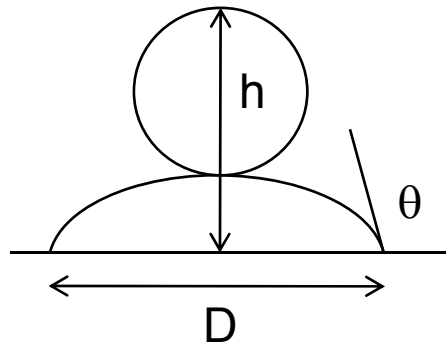
$D_0 = 2.28\text{mm}$ ,  $U = 0.6\text{m/s}$ ,  $\mu = 1\text{mPa}\cdot\text{s}$ ,  
 $\sigma = 73\text{mN/m}$ ,  $\rho = 1000\text{kg/m}^3$



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

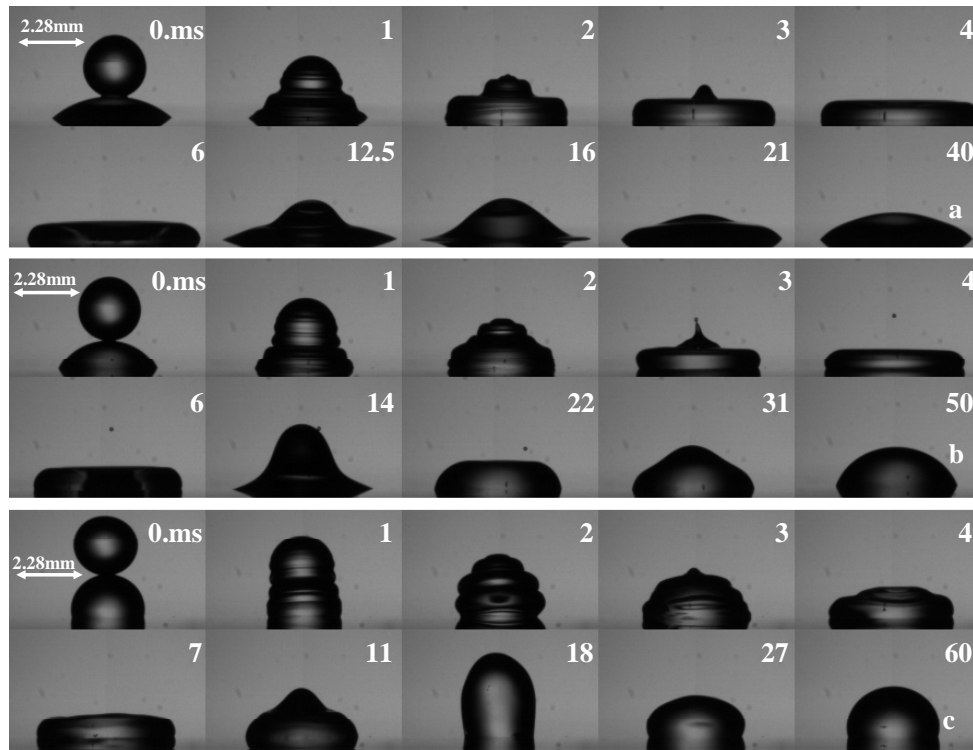
## Coalescence axisymétrique

### Comportement général



## *Effet de la mouillabilité*

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



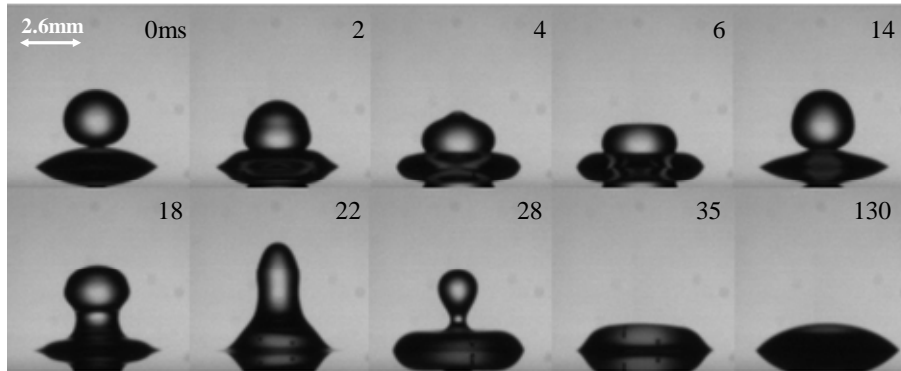
$\theta_{\text{éq}} = 30^\circ$

$\theta_{\text{éq}} = 55^\circ$

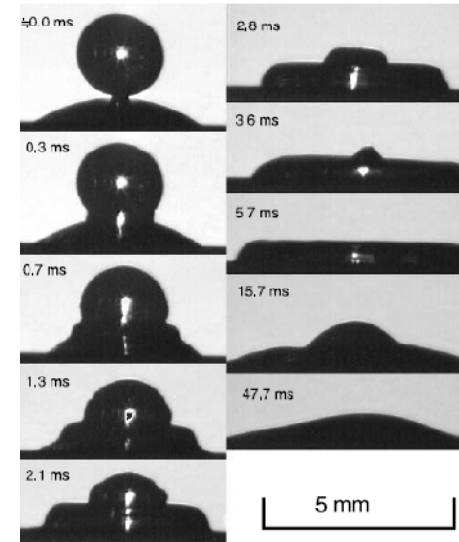
$\theta_{\text{éq}} = 90^\circ$

## Effet de la vitesse

$$\theta_{\text{éq}} = 30^\circ$$

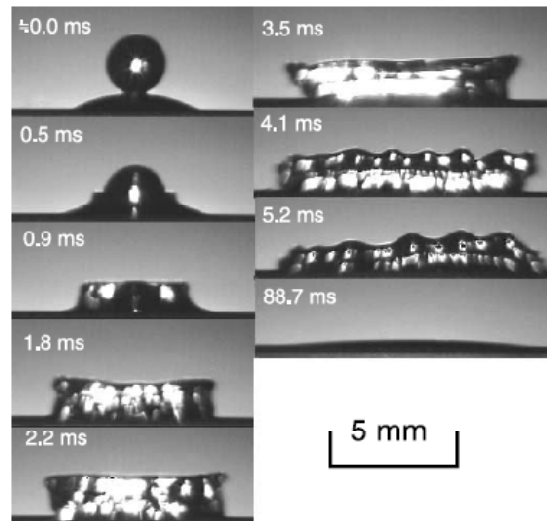


$U = 0.22\text{m/s}$



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

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



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

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

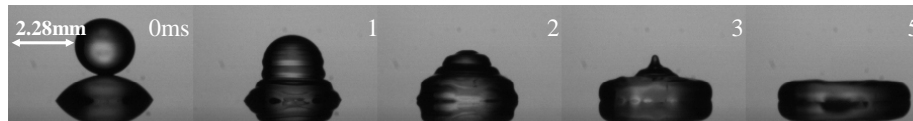


## *Effet de la tension de surface*

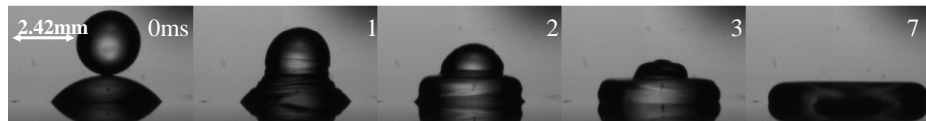
Échelle de longueur: **diamètre d'une goutte de volume double**

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

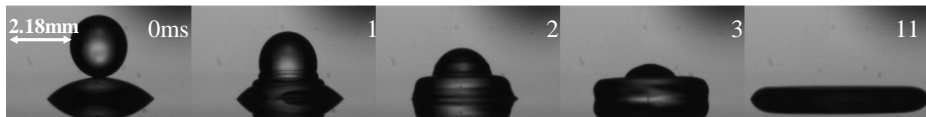
$U = 0.6\text{m/s}$



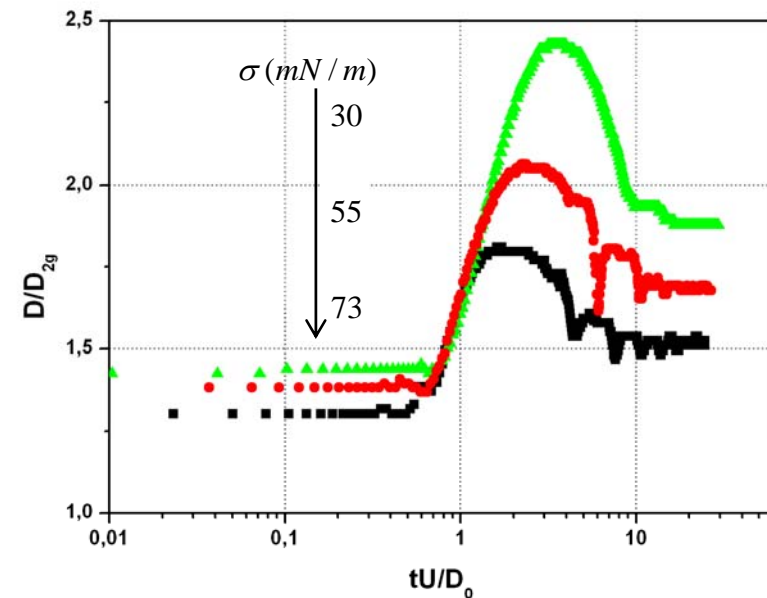
$\sigma = 73\text{mN/m}$ ;



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

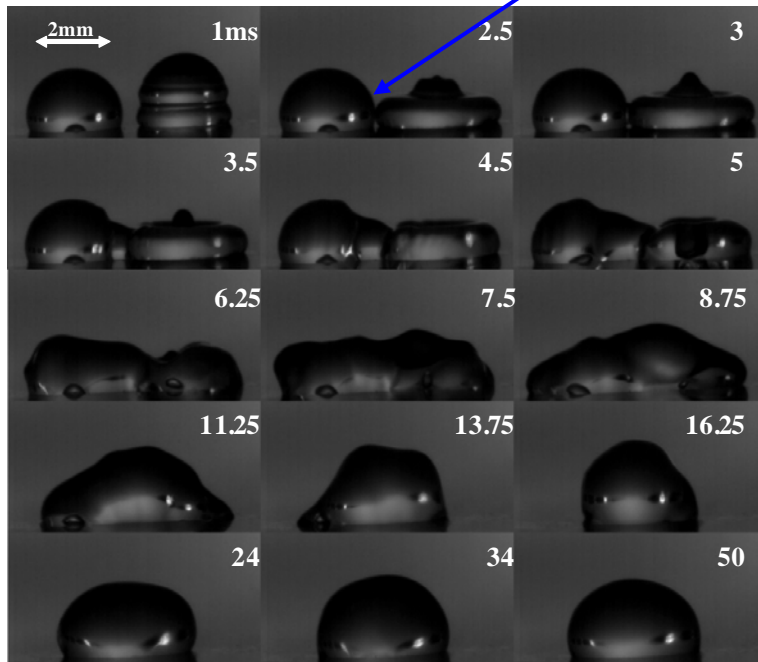


$\sigma = 30\text{mN/m}$

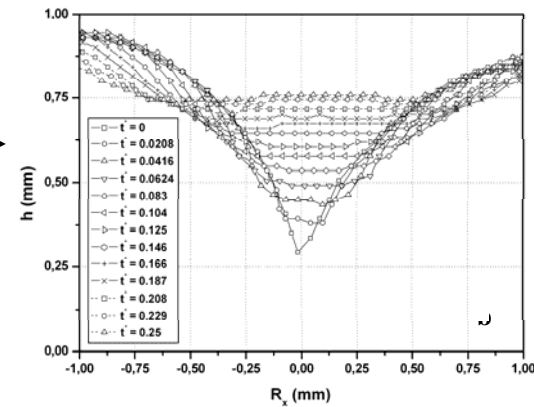


## Coalescence non axisymétrique

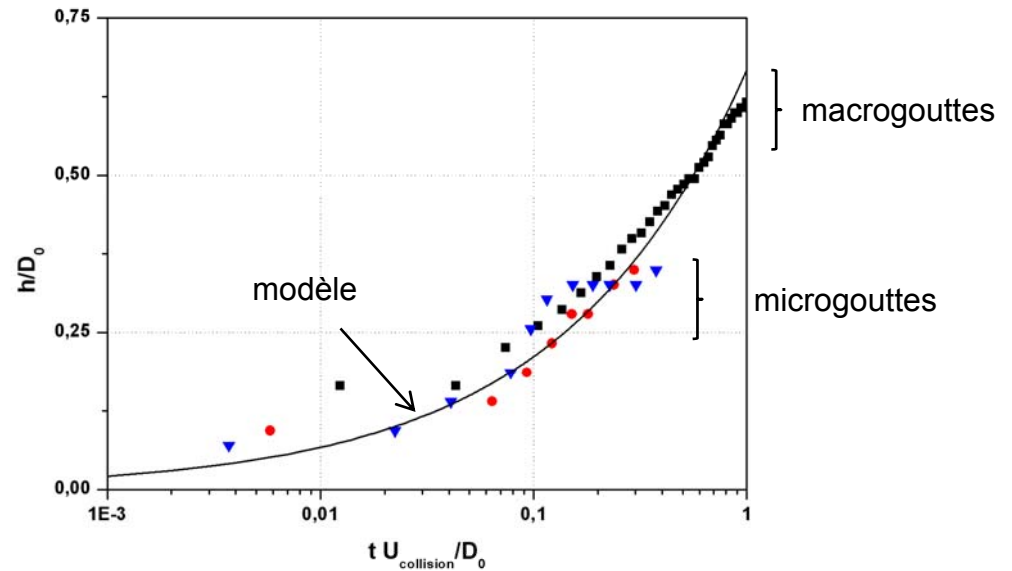
### Lois de comportement



Point de jonction



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



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

## *Résumé*

---

### Coalescence axisymétrique:

Mécanisme de coalescence influencé par:

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

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

### Coalescence non axisymétrique:

Réorganisation de la masse de liquide

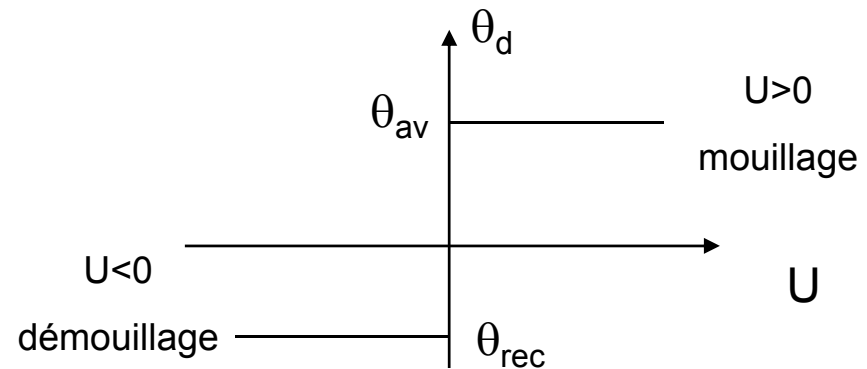
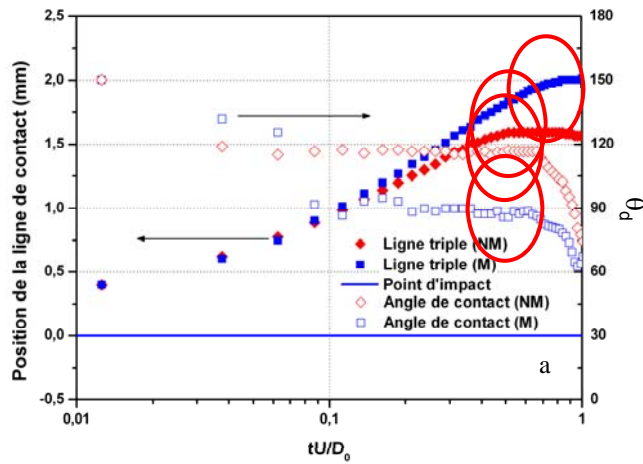
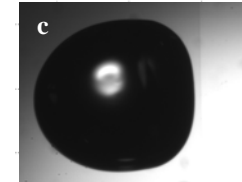
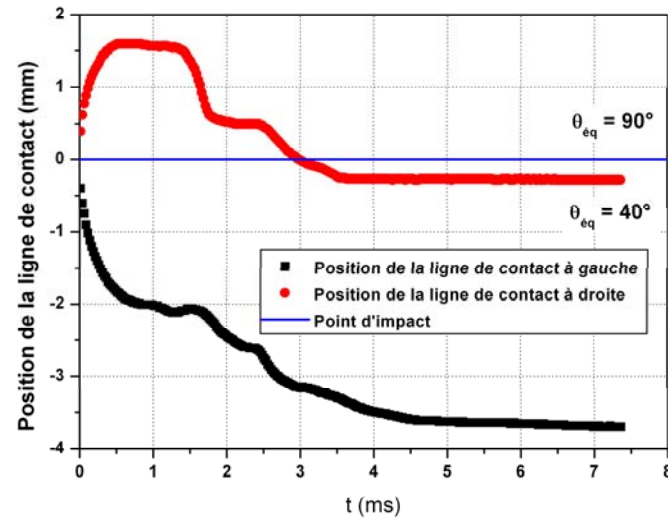
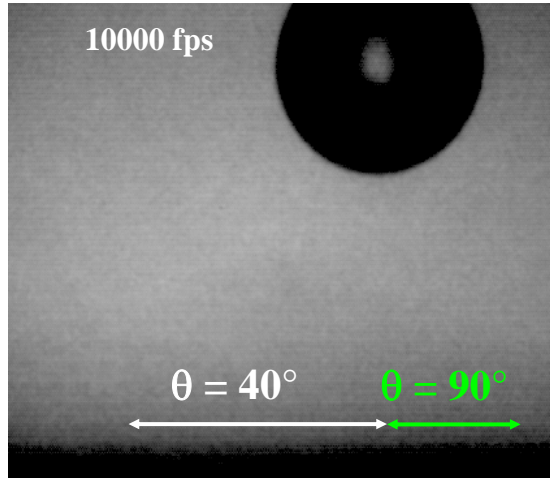
Loi d'évolution du point de coalescence à partir des travaux de Eggers et al (1999) et Menchaca-Rocha et al (2001)

Coefficient d'ajustement identique pour microgouttes et macrogouttes

# Impact sur Surface Hétérogène

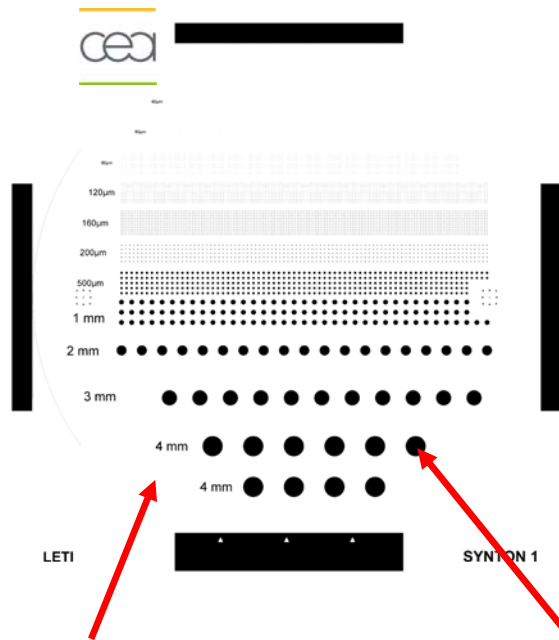
## Surface plane et hétérogène

### Surface mouillante/non mouillante



## Recentrage automatique

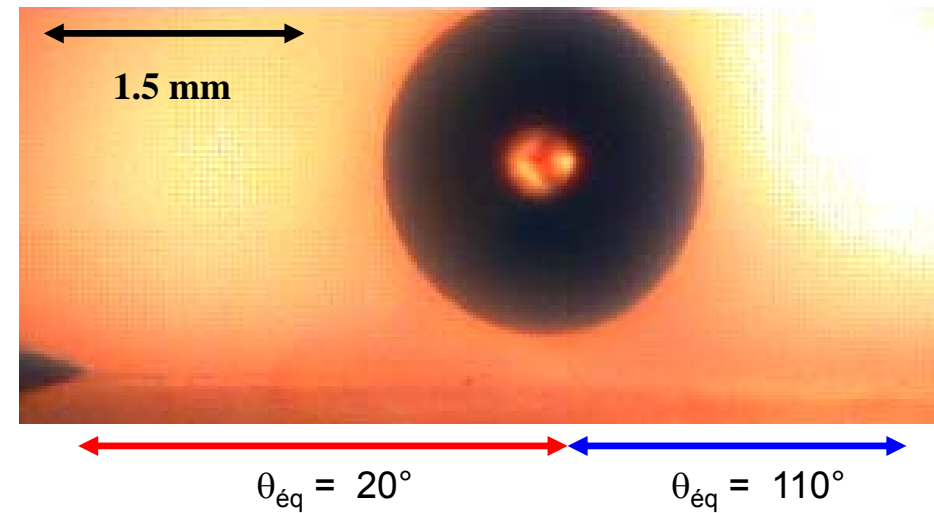
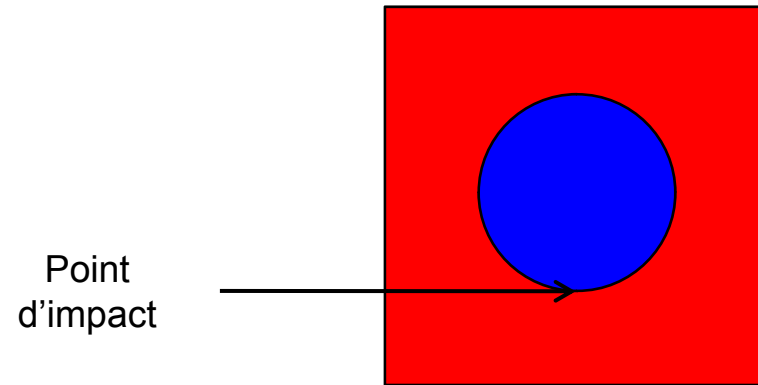
### Test sur Biopuce



Surface silanisée  
Angle de contact avec de l'eau distillée:  $110^\circ$

$\text{SiO}_2$  Angle de contact avec de l'eau distillée:  $20^\circ$

### Schéma de la vue de dessus



## *Forme du film protecteur*

Test sur biopuce

Nombre de gouttes: 3

$D_0$ : 90 $\mu\text{m}$

Concentration: 5%

Dépassement du site avant  
cuisson

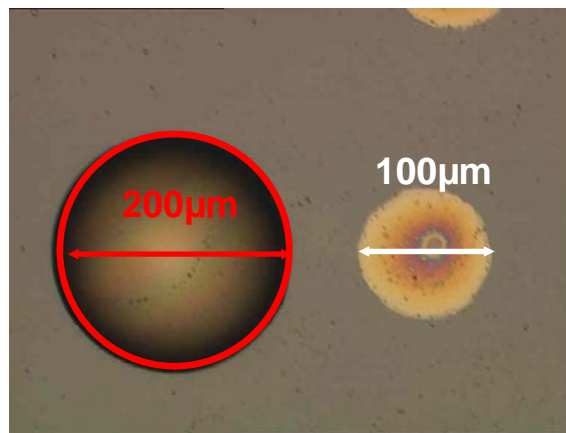
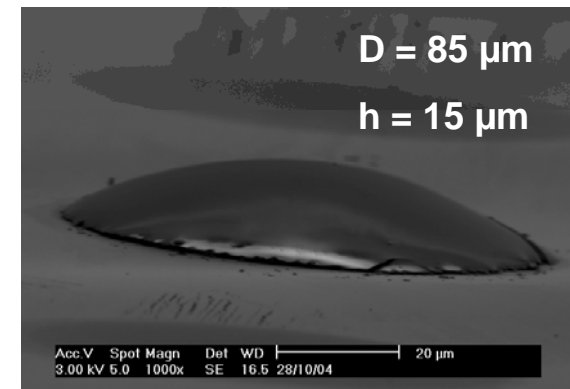


Image MEB après cuisson  
(80°C)



Recentrage du polymère sur le site fonctionnalisé

Protection de l'intégralité du site fonctionnalisé

Forme du film protecteur: sphère tronquée d'épaisseur 15 $\mu\text{m}$

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



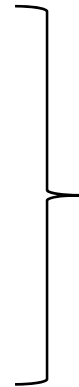
## Test de synthèse in situ

Sur la biopuce

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

avec X étant T, G, C ou A

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

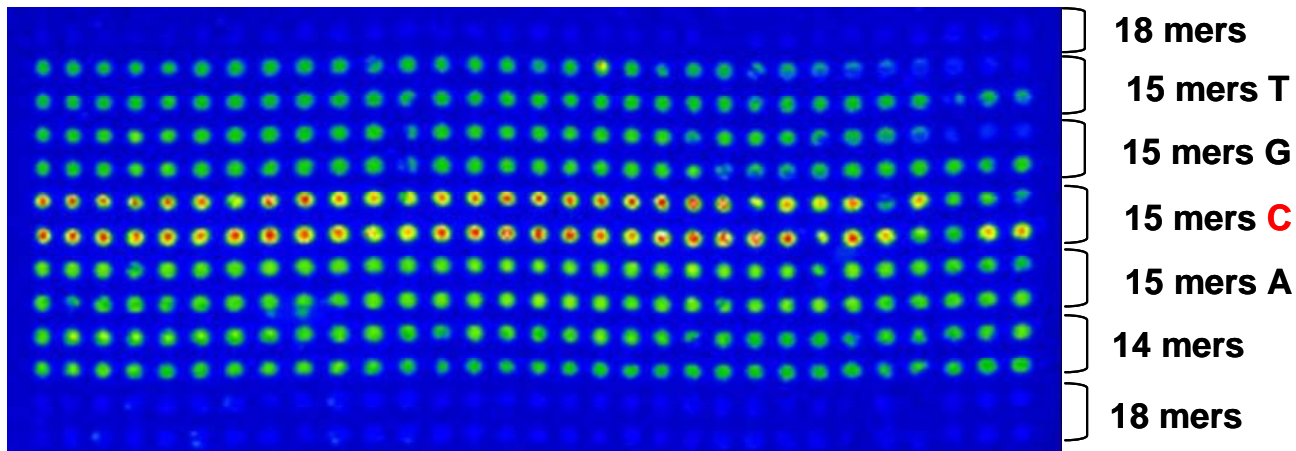


Brin cible

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

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

Brin complémentaire



Site 100µm espacé 200µm centre à centre

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

## *Résumé*

---

### Surface hétérogène:

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

Contrôle de positionnement de la goutte: recentrage

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

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

# Conclusions et Perspectives

## *Conclusions*

---

### 1. Moyens expérimentaux

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

### 2. Description complète du mécanisme d'impact :

En fonction de  $D_0$ ,  $U$ ,  $\sigma$ ,  $\mu$  et  $\theta_{\text{éq}}$

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

## *Conclusions*

---

### 3. Synthèse *in situ* d'oligonucléotides

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

## *Perspectives*

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

### Impact d'une seule goutte

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

### Synthèse *in situ*

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

Merci de votre attention