

Rebonds spéciaux de liquides Pierre Chantelot

▶ To cite this version:

Pierre Chantelot. Rebonds spéciaux de liquides. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Université Paris Saclay (COmUE), 2018. Français. NNT: 2018SACLX120. tel-02011789

HAL Id: tel-02011789 https://pastel.hal.science/tel-02011789v1

Submitted on 8 Feb 2019

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.







Rebonds spéciaux de liquides

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay préparée à l'Ecole Polytechnique

Ecole doctorale n°579 Sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences (SMEMAG) Spécialité de doctorat : mécanique des fluides

Thèse présentée et soutenue à Paris, le 21 décembre, par

Pierre Chantelot

Composition du Jury :

| Christophe Clanet | |
|---|--------------------|
| Directeur de recherche, Ecole Polytechnique (LadHyX) | Directeur de thèse |
| Serge Mora | |
| Professeur, Université Montpellier 2 (LMGC) | Rapporteur |
| Thierry Ondarçuhu | |
| Directeur de recherche, CNRS (IMFT) | Président du jury |
| Suzie Protière | |
| Chargée de recherche, Université Paris VI (∂ 'Alembert) | Rapporteure |
| David Quéré | |
| Directeur de recherche, ESPCI Paris (PMMH) | Directeur de thèse |
| Frédéric Restagno | |
| Chargé de recherche, Université Paris Sud (LPS) | Examinateur |
| Rose-Marie Sauvage | |
| Direction Générale de l'Armement | Invité |

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Suzie Protière et Serge Mora qui ont accepté d'être les rapporteurs de mon travail ainsi que Thierry Ondarçuhu et Frédéric Restagno qui l'ont examiné. Je veux aussi remercier Rose-Marie Sauvage et la Direction Générale de l'Armement qui ont rendu cette thèse possible. Au-delà de leur présence dans mon jury de thèse, j'ai particulièrement apprécié nos échanges au cours et en dehors de la soutenance.

Lors de ces trois années de thèse, j'ai eu la chance d'interagir et de travailler avec des personnes formidables au sein de l'équipe de David et Christophe et des laboratoires PMMH, LadHyX et Langevin. C'est grâce à vous tous que je ne garde que des bons souvenirs de ces trois dernières années. Cette aventure personnelle, la thèse, a pris tout son sens à travers des rencontres, des discussions, des collaborations... L'aventure est alors devenue collective. Elle n'en est que plus enrichissante à tout point de vue.

Je remercie David et Christophe de m'avoir acceuilli au sein de leur équipe et de la grande liberté qu'ils m'ont donné.

Merci.

Table des matières

Introduction Rebond sur substrats non-mouillants 13 1 1.1Situations menant au rebond 151.2161.2.1Durée du rebond 181.2.2201.2.3211.2.4241.2.5Décollage 261.3Conclusion 272 Rebond sur surfaces macrotexturées 29 30 2.1Amélioration de la superhydrophobie par macrotexturation 2.1.1Etat de l'art 30 2.1.2Variations géométriques 322.2342.2.1Expérience 352.2.236Simulation 2.2.3382.2.4Impact excentré 392.2.5Tore déroulé 41 2.2.6Impacts très excentrés 43Impact sur plusieurs singularités 2.344 2.3.1Défauts rapprochés : $p \le 2R$ 452.3.2492.453Impact sur substrats non plans 553 3.1Rebond sur un plan incliné 563.1.1573.1.2Etalement maximal 58

9

59

3.1.3

| | | 3.1.4 | Conclusion et perspectives |) | | |
|----------|-----|------------------------|--|--------|--|--|
| | 3.2 | 3.2 Impact sur un cône | | | | |
| | | 3.2.1 | Diagramme de phase | | | |
| | | 3.2.2 | Temps de contact |) | | |
| | | 3.2.3 | Dynamique à temps court $\ldots \ldots \ldots$ | j | | |
| | | 3.2.4 | Etalement maximal | , | | |
| | | 3.2.5 | Fragmentation | , | | |
| | | 3.2.6 | Conclusion et perspectives |) | | |
| | 3.3 | Impac | t sur une sphère |) | | |
| | | 3.3.1 | Temps caractéristiques | | | |
| | | 3.3.2 | Dynamique initiale | - | | |
| | | 3.3.3 | Etalement maximal |) | | |
| | | 3.3.4 | Coefficient de restitution | j | | |
| | | 3.3.5 | Conclusion et perspectives | ; | | |
| 4 | Imp | act su | r substrats déformables 79 |) | | |
| | 4.1 | Impac | t et déformation $\ldots \ldots 79$ |) | | |
| | 4.2 | Rebon | d sur un trampoline | | | |
| | | 4.2.1 | Expérience | | | |
| | | 4.2.2 | Temps du rebond | Į | | |
| | | 4.2.3 | Déflexion de la membrane |) | | |
| | | 4.2.4 | Modélisation | ,) | | |
| | | 4.2.5 | Conclusion et autres régimes d'impact |) | | |
| | 4.3 | Splash | sur bains visqueux | - | | |
| | | 4.3.1 | Expérience | - | | |
| | | 4.3.2 | Seuil de fragmentation |) | | |
| | | 4.3.3 | Effet de la profondeur | ; | | |
| | | 4.3.4 | Dynamique à temps court | | | |
| | | 4.3.5 | Conclusion et perspectives |) | | |
| 5 | Sur | faces a | ctives 97 | , | | |
| | 5.1 | Goutte | es frappées \ldots \ldots \ldots \ldots 99 |) | | |
| | | 5.1.1 | Expérience |) | | |
| | | 5.1.2 | Etalement maximal |) | | |
| | | 5.1.3 | Décollage | c | | |
| | | 5.1.4 | Dynamique du film mince | , | | |
| | | 5.1.5 | Dynamique du bourrelet | j | | |
| | | 5.1.6 | Contrôle des formes transitoires | ; | | |
| | | 5.1.7 | Sculptures liquides éphémères |) | | |
| | 5.2 | Impac | t sur une surface activable |) | | |
| | 5.3 | 5.3 Conclusion | | | | |

TABLE DES MATIÈRES

| 6 Rebond et viscosité | | | 115 | | |
|--------------------------|--|--|------------|--|--|
| | 6.1 | Expérience | . 116 | | |
| | | 6.1.1 Coefficient de restitution | . 117 | | |
| | | 6.1.2 Temps de contact | . 119 | | |
| | 6.2 | Etalement | . 120 | | |
| | 6.3 | Rétraction | . 120 | | |
| | 6.4 | Analyse Energétique | . 122 | | |
| | 6.5 | Conclusion et perspectives | . 125 | | |
| Co | onclu | ision | 127 | | |
| \mathbf{A} | Inst | abilité de Rayleigh-Plateau en géométrie torique : rupture d'un an | i - | | |
| | nea | u liquide en expansion | 131 | | |
| в | Mo | délisation d'une membrane tendue | 135 | | |
| \mathbf{C} | Détermination de l'énergie d'une goutte lors d'un impact | | | | |
| | C.1 | Analyse d'image | . 137 | | |
| | C.2 | Bilan d'énergie | . 138 | | |
| | | C.2.1 Energie du centre de masse | . 138 | | |
| | | C.2.2 Energie interne | . 138 | | |
| | C.3 | Résolution temporelle | . 141 | | |
| D Ondes dans un hydrogel | | les dans un hydrogel | 143 | | |
| | D.1 | Préparation et rhéologie d'un hydrogel d'Agar | . 144 | | |
| | D.2 | Ondes propagatives | . 145 | | |
| | | D.2.1 Mesure de la relation de dispersion | . 145 | | |
| | | D.2.2 Mesure des champs de déplacement | . 148 | | |
| | D.3 | Instabilité de Faraday élastique | . 151 | | |
| | | D.3.1 Mesure de la relation de dispersion | . 152 | | |
| | D.4 | Proposition de calcul de la relation de dispersion | . 153 | | |
| | | D.4.1 Ondes dans un échantillon d'épaisseur finie $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$ | . 154 | | |
| | | D.4.2 Ondes de surface | . 157 | | |
| | D.5 | Conclusion et perspectives | . 158 | | |
| \mathbf{E} | Art | icles publiés | 161 | | |

Introduction

Réalisons ensemble la première expérience de cette thèse, en remplissant un verre d'eau. Le liquide s'écoule, adopte la forme du contenant sans le remplir dans sa totalité. Ce comportement permet de distinguer les liquides des solides, qui possèdent une forme propre, et des gaz, qui tendent à occuper la totalité du volume qui leur est proposé. Cette distinction est cependant mise à mal par l'observation des bulles de savon ou des gouttes dans une émulsion, qui possèdent une forme sphérique très stable.

Cette apparente contradiction disparait lorsque l'on considère les interactions entre les molécules d'un fluide. La phase liquide est dans un état condensé où l'attraction entre les molécules est plus forte que l'agitation thermique, mais cependant assez faible pour leur permettre de se réarranger. Une conséquence de cette interaction attractive est qu'une molécule située à la surface du fluide se trouve dans un état énergétiquement défavorable par rapport à une molécule en son sein. Les liquides cherchent donc à minimiser leur surface. On comprend alors la forme sphérique des gouttes et des bulles : la sphère est une surface minimale. Les films de savon permettent notamment de visualiser une grande variété de surfaces minimales. Otto Frei a même exploité cette capacité des films pour dessiner le toit du stade olympique de Munich (figure 1a). On appelle tension de surface la force par unité de longueur qui maintient les liquides dans ces configurations d'énergie minimale. La valeur de cette force dépend uniquement de la nature du liquide.



FIGURE 1 : **a** Film de savon utilisé par Otto Frei pour déterminer une surface minimale lors de la conception du stade olympique de Munich. Tiré de [1]. **b** Eau à l'intérieur d'un tube capillaire (diamètre $\sim 1 \text{ mm}$) mouillant. Nous remarquons la forme courbée de l'interface. **c** Eau versée dans un verre. Cette fois la surface du liquide est plane sauf près des bords où nous observons un ménisque.



FIGURE 2 : Goutte d'eau millimétrique déposée sur un substrat : a hydrophile, b hydrophobe, c superhydrophobe.

Si les manifestations de la tension de surface sont évidentes pour des bulles de savon, nous n'observons que rarement les liquides sous une forme sphérique. Les effets de la tension de surface n'apparaissent qu'à petite échelle. Au-delà d'une taille critique, la gravité devient la force dominante. Cette échelle critique, appelée longueur capillaire, vaut pour l'eau de l'ordre de 3 mm, ce qui explique que la plupart des surfaces liquides que nous observons soient aplaties par la gravité. Nous illustrons ce phénomène en montrant l'interface courbée observée dans un tube capillaire (figure 1b) et la surface plane du verre d'eau de notre expérience initiale (figure 1c). Nous remarquons toutefois la présence d'une courbure de l'interface, appelée ménisque, au niveau des parois du verre. Nous nous penchons alors sur les effets liés au contact entre liquide et solide.

Le mouillage est l'étude de l'étalement d'un liquide sur un substrat solide. Quand on dépose une goutte de liquide sur un solide, le liquide adopte la forme d'une calotte sphérique qui fait un angle, appelé angle de contact θ , avec le substrat. L'angle observé dépend de la nature du matériau et du liquide. Les figures 2a et b montrent les angles obtenus en déposant une goutte d'eau sur un matériau hydrophile ($\theta < 90^{\circ}$), par exemple du verre, et hydrophobe ($\theta > 90^{\circ}$), par exemple de la cire. La valeur de cet angle est fixée par l'équilibre de trois tensions de surface qui s'appliquent au niveau de la ligne de contact. Cet équilibre a été compris par Young [2]. L'angle de contact varie entre 0° (mouillage total) et 120° sur les matériaux présentant la chimie de surface la plus hydrophobe. Sur des substrats réels, l'angle de contact n'est pas bien défini. La ligne de contact peut s'accrocher au niveau des défauts de la surface et on peut observer des angles différents de celui prédit par Young. Ce phénomène est responsable de l'adhésion du liquide sur ces substrats.

Pourtant certaines surfaces naturelles, comme les feuilles de lotus ou les ailes de certains insectes, présentent des angles de contact plus élevés. On dit que ces matériaux sont superhydrophobes et on montre dans la figure 2c une goutte d'eau déposée sur une telle surface. Cette propriété remarquable des surfaces naturelles a été décrite par Barthlott *et al.* [3], l'hydrophobie étant renforcée par la présence de textures à l'échelle micrométrique. Nous présentons sur la figure 3 des exemples de textures naturelles et obtenues au



FIGURE 3 : Images de microtextures obtenues par microscopie électronique à balayge. **a** Feuille de Lotus. La barre d'echelle représente 20 μ m. Extrait de [3]. **b** Patte d'une araignée d'eau. La barre d'echelle représente 50 μ m. Adpaté de [4]. **c** Substrat après application d'Ultra Ever Dry. La barre d'echelle représente 0.5 μ m.

laboratoire, qui traduisent la rugosité élevée et la diversité de ces matériaux. Les surfaces superhydrophobes que l'on utilisera au cours de cette thèse sont fabriquées en les recouvrant à l'aide d'une solution (l'Ultra Ever Dry ou le Glaco) de nanoparticules dispersées dans un solvant. Après évaporation du solvant, une couche rugueuse de nanobilles hydrophobes recouvre le substrat, lui conférant la chimie de surface et la texture nécessaires à la superhydrophobie. La valeur de l'angle de contact est expliquée par les modèles de Wenzel [5], quand le liquide envahit les microtextures, et de Cassie [6], quand le liquide repose au sommet des textures. Ces deux états ne sont pas équivalents : si le liquide envahit la texture, l'adhésion entre solide et liquide se trouve renforcée, alors que s'il reste au sommet, elle diminue drastiquement. D'autres stratégies permettent également d'obtenir des états superhydrophobes. On peut texturer le liquide plutôt que le solide et créer ainsi des billes liquides [7] ou se placer en situation de caléfaction [8], c'est-à-dire isoler les gouttes de la surface par un coussin de leur propre vapeur.

La faible adhésion de l'état Casssie donne aux gouttes déposées sur les surfaces superhydrophobes des propriétés remarquables. Les gouttes sont extrêmement mobiles, elles roulent sur la surface [9], emportent les poussières qui y sont déposées [3] et peuvent même rebondir [10]. Les matériaux non-mouillants ont ainsi des propriétés auto-nettoyantes, antipluie ou même anti-buée [11].

Au cours de cette thèse, nous nous intéressons au rebond d'une goutte d'eau sur une surface superhydrophobe. Nous présentons, dans un premier chapitre, un aperçu des situations menant au rebond. Nous décrivons la dynamique d'un impact à l'aide d'informations extraites à la fois de la littérature et d'expériences originales. Dans un deuxième chapitre, nous engendrons un premier exemple de rebond *spécial* en modifiant la géométrie de la surface, à une échelle intermédiaire entre celle des microtextures et celle de la goutte, en y ajoutant un défaut ponctuel. Nous voyons que le temps de contact associé à un tel rebond est réduit et présentons également des impacts sur des motifs formés de plusieurs défauts. Le troisième chapitre est consacré à des variations géométriques à l'échelle de la goutte. Nous réalisons des impacts sur trois types de substrats non-mouillants : des plans inclinés,

INTRODUCTION

des cônes et des sphères. Nous mettons en évidence les points communs et les différences par rapport aux impacts sur un plan. Dans le quatrième chapitre, nous mettons en avant un nouvel ingrédient : le mouvement. Nous utilisons des substrats pouvant être déformés par l'impact du liquide. Nous mettons en évidence un nouveau mécanisme de rebond qui permet de choisir le temps de rebond d'une goutte. Nous nous intéressons aussi à l'influence de la déformation sur le splash. Le cinquième chapitre traite également de l'effet du mouvement sur l'interaction entre une goutte d'eau et une surface superhydrophobe, en utilisant des substrats rigides dont le mouvement peut être contrôlé. Nous montrons que des formes nouvelles peuvent être adoptées par une goutte soumise à un mouvement vertical impulsionnel. Nous réalisons des impacts sur une surface pouvant être activée par le contact entre le liquide et le solide. Dans le sixième chapitre, nous modifions non plus le substrat mais le liquide, et étudions les impacts de gouttes visqueuses sur une surface superhydrophobe. Enfin, nous présentons en annexe une étude indépendante, traitant de la propagation des ondes dans un solide élastique mou.

Chapitre 1

Rebond sur substrats non-mouillants

Retour à la table des matières

| Sommaire | | | | | |
|----------|-------|--|--|--|--|
| 1.1 | Situa | tions menant au rebond $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots 15$ | | | |
| 1.2 | Desci | ription d'un rebond $\ldots \ldots 16$ | | | |
| | 1.2.1 | Durée du rebond | | | |
| | 1.2.2 | Initiation du contact | | | |
| | 1.2.3 | Etalement $\ldots \ldots 21$ | | | |
| | 1.2.4 | Rétraction | | | |
| | 1.2.5 | Décollage | | | |
| 1.3 | Conc | lusion | | | |

L'impact d'une goutte de liquide sur une surface solide est un phénomène auquel nous assistons quotidiennement. Cet événement que nous observons d'innombrables fois lors d'une pluie est d'une grande importance dans des domaines aussi variés que l'ingéniérie et les géosciences. L'impression jet d'encre, le refroidissement par pulvérisation, la protection contre la corrosion ou l'érosion des sols font partie des raisons pour lesquelles de nombreux scientifiques et industriels s'intéressent aux impacts. Malgré de nombreux efforts, le caractère éphémère des impacts a longtemps rendu leur observation puis leur description quantitative impossible. Les premières observations de l'impact d'une goutte sur un solide ont été réalisées par Worthington en 1876 [12, 13]. La figure 1.1a montre les dessins qu'il a réalisé suite à l'observation de l'impact d'une goutte de mercure sur une plaque de verre. Depuis ce travail pionnier, l'amélioration des techniques d'imagerie à haute vitesse a permis de caractériser les dénouements possibles d'un impact et d'étudier la dynamique des phénomènes fluides qui lui sont associés. Trois issues sont possibles lors de l'impact d'une goutte de liquide sur une surface solide [16, 17]. (i) La déposition : le liquide s'étale sur le substrat et reste au repos. C'est la situation rapportée par Worthington (figure 1.1a). (ii) Le splash : au cours de l'étalement, un fin feuillet de liquide est éjecté de la goutte



FIGURE 1.1 : a Dessins de l'impact d'une goutte de mercure sur une surface en verre. Adapté de [13] b Photos de l'impact d'une goutte d'eau lachée d'une hauteur de 6 m. On observe l'éjection et la fragementation d'un feuillet de liquide. Extrait de [14]. c Prise de vue à longue durée d'exposition des rebonds successifs d'une goutte d'eau sur une surface superhydrophobe. La ligne lumineuse nous permet de visualiser la trajectoire du liquide. Extrait de [15].

puis se fragmente, ce qui engendre la formation d'une multitude de gouttelettes. La figure 1.1b montre les premières photographies d'un tel évènement prises par OG. Engel en 1955 [14]. (iii) Le rebond : le liquide s'étale puis se rétracte avant de quitter complètement le substrat. La figure 1.1c présente une succession de rebonds obtenue en faisant tomber une goutte d'eau sur une surface superhydrophobe [15].

Pour distinguer les conditions menant à chacune de ces trois situations, il convient d'identifier les paramètres physiques pertinents pour le problème de l'impact. Nous considèrons une goutte de rayon R formée à partir d'un liquide de densité ρ , viscosité η et tension de surface γ . Cette goutte entourée d'un gaz (densité ρ_g , viscosité η_g), le plus souvent de l'air, tombe sur un solide à une vitesse V. Nous comparons les effets gravitaires et les effets capillaires à l'aide du nombre de Bond : $Bo = \rho q R^2 / \gamma$. Nous négligeons la gravité car nous étudions l'impact de gouttes millimétriques. Nous faisons alors intervenir pour décrire un impact 7 variables définies par 3 dimensions; un impact peut donc être caractérisé par 4 nombres sans dimension. Les nombre de Reynolds $Re = \rho RV/\eta$ et Weber $We = \rho R V^2 / \gamma$ comparent respectivement l'inertie aux forces visqueuses et capillaires. Nous pouvons alternativement utiliser un autre jeu de nombres adimensionnés pour réaliser cette comparaison : le nombre d'Ohnesorge $Oh = \eta / \sqrt{\rho R \gamma}$ qui équilibre capillarité et viscosité et le nombre capillaire $Ca = \eta V/\gamma$ qui compare les effets inertiels et capillaires. Le rôle du gaz est capturé à travers les quotients η/η_g et ρ/ρ_g . Enfin les propriétés de mouillage du substrat ainsi que sa rugosité ont une grande influence sur les phénomènes observés lors d'un impact.

Dans ce chapitre, nous identifions dans la littérature les situations dans lesquelles le

rebond d'une goutte peut être observé puis nous explorons l'état de l'art de la description d'un rebond.

1.1 Situations menant au rebond

Nous recensons les situations menant au rebond d'une goutte. De Ruiter *et al.* [18] ont montré que des gouttes peuvent rebondir sur des substrats solides quel que soit leur mouillage. En utilisant une technique d'interférométrie à haute vitesse, ils ont montré que pour de faibles nombres de weber (We < 4) un film de lubrification empêche le contact entre le liquide et le solide (figure 1.2a). Les figures d'interférence montrent que le film d'air est d'épaisseur micrométrique et donc extrêmement sensible à la rugosité du substrat. Après quelques rebonds, le film d'air est drainé et il y a contact entre le liquide et le solide. Ce type de rebond ne dépend pas de la tension de surface et a été observé pour des liquides jusqu'à 100 fois plus visqueux que l'eau. Ce mécanisme de rebond existe également entre deux interfaces liquides, Couder *et al.* [19] ont montré que la vibration verticale d'un bain de liquide permet d'entretenir le film d'air présent sous la goutte et d'observer indéfiniment les rebonds entrevus par [18].

L'absence de contact entre le liquide et la surface, permise par la présence d'un film de lubrification, peut être maintenue jusqu'à des nombres de Weber de l'ordre de 100 en situation de caléfaction : des gouttes de liquides volatiles rebondissent alors sur un coussin de leur propre vapeur [20]. Un film d'air peut également être maintenu sous la goutte lors d'un impact à haute vitesse sur un solide en mouvement. De l'air est entraîné sous le liquide par le mouvement du solide ce qui empêche le contact [21, 22].

Si un film d'air ne peut pas être maintenu entre le liquide et le solide, une autre stratégie pour permettre le rebond consiste à entourer le liquide d'une armure solide en plaçant des particules à sa surface (il faut que les particules restent à la surface du liquide). Les billes liquides, obtenues de cette manière, peuvent résister à des impacts à vitesse modérée [7]. Le contact se fait entre les particules solides à la surface du liquide et le substrat. Des billes d'hydrogels molles ($G' \approx 10$ kPa) peuvent également être assimilées à des gouttes présentant un squelette qui n'occupe qu'une très faible partie de leur volume. Tanaka *et al.* [23] ont montré que de telles billes se déforment et rebondissent de manière analogue à une goutte. Plus récemment, Arora *et al.* [24] ont proposé une description unifiée de l'étalement maximal lors de l'impact de gouttes et de billes élastiques.

Enfin quand le contact entre liquide et solide ne peut-être évité, l'utilisation d'un substrat non-mouillant permet le rebond total d'une goutte. Les substrats superhydrophobes permettent le rebond de gouttes d'eau pour des nombres de Weber compris entre 0.1 et 100 [15]. Le contact entre le liquide et le solide a lieu en haut des microtextures responsables de la superhydrophobie : le liquide est majoritairement entouré d'air.



FIGURE 1.2 : **a** (haut) Vue de côté de l'impact d'une goutte d'eau (V = 0.22 m/s) sur une surface en verre poli. Les figures d'interférence (bas) montrent l'absence de contact entre l'eau et le verre. La barre d'échelle représente une longueur de 1 mm et la séquence d'image a une durée totale de 9 ms. Adapté de [18]. **b** Rebond d'un goutte d'huile silicone sur un bain du même fluide vibré verticalement. La goutte a un diamètre de 1 mm et les photos sont prise à 6 ms d'intervalle. Une onde est émise par la goutte sur le bain. Extrait de [25].

Ces exemples tirés de la littérature nous montrent que l'on observe des rebonds uniquement si l'on arrive à supprimer ou à limiter très fortement le contact entre liquide et solide. L'absence de ligne de contact lors de tels impacts réduit la dissipation d'énergie par viscosité et permet les échanges entre énergie cinétique et énergie de surface qui sont nécessaire au rebond. Les rebonds ont principalement lieu à vitesse d'impact modérée (0.1 < We < 100). En fonction du mécanisme de rebond choisi, des liquides peuvent rebondir quelle que soit leur tension de surface et leur viscosité.

1.2 Description d'un rebond

Dans ce manuscrit, nous nous intéressons plus particulièrement au rebond de gouttes d'eau sur des substrats superhydrophobes. Nous décrivons ici un tel rebond en utilisant à la fois des informations tirées de la littérature et d'expériences originales. Nous caractérisons d'abord la durée totale du rebond et le divisons en plusieurs étapes que nous détaillons chronologiquement par la suite.

Nos observations sont obtenues lors de l'impact de gouttes d'eau distillées ($\rho = 1000$ kg/m³, $\gamma = 72$ mN/m) sur un solide que nous rendons non-mouillant en pulvérisant une solution commerciale d'Ultra Ever Dry. Après traitement le solide est recouvert de plusieurs



FIGURE 1.3 : **a** Séquence d'image de l'impact d'une goutte d'eau (R = 1.3 mm, V = 1.1 m/s) sur une surface superhydrophobe. Nous définissons successivement les temps d'étalement, τ_s , de formation du jet, τ_j et de contact τ . Ici le liquide rebondit après un temps de 13.5 ms. **b** Nous mesurons durant l'impact le rayon de contact r entre le liquide et la surface.

couches de nanobilles hydrophobes qui lui confèrent la chimie de surface et la rugosité nécessaire pour présenter les angles de contact élevés ($\theta_a = 166^\circ \pm 4^\circ$ et $\theta_r = 159^\circ \pm 2^\circ$) caractéristiques de la superhydrophobie. Nous varions la vitesse d'impact V et le rayon des gouttes R à l'aide d'aiguilles calibrées dont nous changeons la hauteur. Une caméra rapide fonctionnant à 10000 im/s enregistre des vues de côté lors de chaque impact.

Une séquence d'images de l'impact d'une goutte d'eau de rayon R = 1.3 mm à la vitesse V = 1.1 m/s est présentée dans la figure 1.3a. Nous définissons l'instant initial comme le moment où la goutte entre en contact avec le substrat. Dès cet instant, le liquide commence à s'étaler, il forme un mince film liquide qui s'étend radialement (t = 1.0 ms). Nous remarquons la forme pyramidale prise par le haut de la goutte à t = 1.0 ms; cette structure résulte de la propagation d'ondes capillaires [26]. L'étalement se poursuit jusqu'à ce que le liquide atteigne son extension maximale R_{max} après un temps τ_s qui vaut ici 3.1 ms. Vu de côté, le liquide semble adopter la forme d'un disque; en réalité la goutte est constituée d'un bourrelet périphérique épais qui nous cache la présence d'un film liquide plus fin en son centre. Ensuite le liquide se rétracte, ce mouvement horizontal se poursuit jusqu'à l'effondrement du tore périphérique qui entraine la création d'un jet à l'instant $\tau_j = 6.1$ ms. Le mouvement du liquide devient alors vertical et la goutte quitte la surface sous une forme allongée après un temps $\tau = 13.5$ ms.

Nous mesurons le rayon de contact r durant l'impact et nous rapportons sa variation en fonction du temps dans la figure 1.3b. L'étalement et la rétraction ne sont pas symétriques. La phase d'étalement occupe approximativement un quart du temps total de rebond. Les dynamiques de ces deux phases sont également très différentes.

L'observation du mécanisme de rebond nous conduit à le séparer non plus classiquement en deux mais en trois phases : (1) l'étalement qui transforme le mouvement vertical du fluide en un mouvement horizontal, (2) la rétraction du liquide sous forme étalée et (3) son décollage qui convertit le mouvement horizontal initié lors de la rétraction en un mouvement vertical. Avant de décrire en détail les caractéristiques de chacune de ces étapes, nous identifions les échelles de temps sur lesquelles elles ont lieu. Nous nous intéressons d'abord au temps global du rebond τ_0 puis aux temps intermédiaires d'étalement τ_s et de formation du jet τ_j .

1.2.1 Durée du rebond

Pour caractériser le rebond, il est utile de déterminer sa durée totale, que nous appelons τ_0 , et ses variations avec les paramètres d'impact. Cette étude a été réalisée par Richard *et al.* [10] qui ont observé que τ_0 ne dépend pas de la vitesse d'impact (figure 1.4a). Ils ont également mesuré la variation du temps de contact avec le rayon des gouttes impactantes (figure 1.4b) qui fait apparaître une loi de puissance d'exposant 3/2.

Ils ont rationalisé ces observations, en expliquant les déformations d'une goutte de faible viscosité par un équilibre entre inertie et capillarité. L'amplitude des déformations augmente avec V au contraire du temps de contact qui reste constant. Ce comportement, analogue à celui d'un oscillateur harmonique, nous conduit à modéliser la goutte comme un ressort de masse ρR^3 et de raideur γ . Par analogie avec la fréquence d'oscillation d'un oscillateur harmonique, ils obtiennent alors la loi d'échelle inertio-capillaire :

$$\tau_0 \sim \sqrt{\rho R^3/\gamma}.$$

Cette loi d'échelle reproduit les caractéristiques observées dans les expériences : le temps de contact est indépendant de la vitesse d'impact et il présente une variation à la puissance 3/2 avec R. Le temps inertio-capillaire correspond à la période des oscillations libres d'une goutte déterminée par Lord Rayleigh [27]. Bien qu'ici la goutte soit en contact avec un solide, seuls les préfacteurs sont différents (2.2 contre 2.6). Une compilation des préfacteurs mesurés lors de l'impact sur différents matériaux non-mouillants est disponible dans le matériel supplémentaire de [28].



FIGURE 1.4 : **a** Temps de contact τ_0 de gouttes d'eau en fonction de leur vitesse d'impact. τ_0 est indépendant de la vitesse d'impact. **b** Temps de contact en fonction du rayon R des gouttes. On observe que $\tau_0 \propto R^{3/2}$. Extrait de [10].



FIGURE 1.5 : **a** Temps τ_0 (triangles noirs), τ_s (points bleus) et τ_j (points rouges) en fonction de V pour des gouttes de rayon 1.3 mm. Ces trois temps ne varient pas avec V. **b** Temps τ_0 , τ_s et τ_j en fonction du rayon R des gouttes (même code couleur). Les lignes pointillées représentent la loi d'échelle inertio-capillaire avec des préfacteurs de 0.65, 1.3 et 2.6. τ_s et τ_j représentent 25% et 50% du temps de rebond total respectivement. Les barres d'erreur représentent la déviation standard observée lors de la mesure d'un temps pour différentes vitesses.

Chevy *et al.* [29] ont étendu la mesure du temps de contact aux faibles vitesses d'impact $(We \leq 1)$. Ils ont observé que le temps de contact augmente fortement quand la vitesse d'impact diminue. Ils expliquent cette augmentation en dérivant une raideur effective plus faible des gouttes dans ce régime.

Nous mesurons aussi les temps intermédiaires τ_s , pour lequel le liquide est à son maximum d'étalement, et τ_j , qui correspond à l'amorce d'un mouvement vertical du liquide. La figure 1.5a représente les temps τ_0 (triangles noirs), τ_s (points bleus) et τ_j (points rouges) en fonction de la vitesse d'impact V dans le régime où τ_0 est ne dépend pas V. τ_s et τ_j sont également indépendants de V. Ils représentent respectivement approximativement 25% et 50% du temps total de rebond. Les phases d'étalement et de rétraction (au sens large) sur une surface superhydrophobe ne sont pas symétriques comme nous l'avions pressenti en analysant la figure 1.3b. Nous traçons également les variations de ces 3 temps en fonction du rayon des gouttes dans la figure 1.5b (même code couleur). τ_0 , τ_s et τ_j semblent tous suivre une loi de puissance avec un exposant 3/2 mais avec des préfacteurs différents. Les lignes noires, rouges et bleues représentent la loi d'échelle inertio-capillaire avec les préfacteurs 2.6, 1.3 et 0.65 respectivement. Les variations de τ_s et τ_j avec V et R suggèrent que ces deux temps suivent la même loi d'échelle que τ_0 .

Nous avons maintenant identifié les temps séparant les trois étapes du rebond. L'étalement du liquide se déroule entre t = 0 ms et $t = \tau_s$. Ensuite, le fluide se rétracte sous une forme aplatie entre $t = \tau_s$ et $t = \tau_j$. Ces deux étapes se déroulent chacune durant un quart du temps de rebond. Enfin, le décollage de la goutte sous une forme verticale allongée se déroule de $t = \tau_j$ à $t = \tau_0$ soit durant la moitié du temps de rebond. Nous pouvons alors écrire le temps total de rebond comme la somme de trois temps intermédiaires :

$$\tau_0 = \tau_s + \tau_r + \tau_d$$

où $\tau_r = \tau_j - \tau_s$ est la durée de la phase de rétraction sous forme aplatie. Les durées de ces trois phases suivent la loi d'échelle inertio-capillaire au même titre que le temps de rebond τ_0 . Nous nous trouvons en présence du cas singulier d'une loi d'échelle fonctionnant de manière additive. Nous exposons maintenant les caractéristiques propres à chacune des étapes du rebond.

1.2.2 Initiation du contact

Nous évoquons d'abord la création du contact entre le liquide et le solide. Pour entrer en contact avec la surface, la goutte doit déplacer l'air qui la sépare du substrat. A mesure qu'elle s'approche, elle crée un film de lubrification au sein duquel la pression est suffisamment forte pour déformer son interface. Le premier contact entre le liquide et le solide ne se fait pas en un point mais sur un anneau ce qui emprisonne un disque d'air au centre du liquide. Chandra & Avedisian [30] ont été les premiers à observer la bulle, signature du disque d'air, capturée à l'intérieur de la goutte lors de l'impact (figure 1.6a). Plus tard Lee *et al.* [31] ont réalisé des images avec une technique de rayon X à contraste de phase permettant d'avoir accès à la dynamique de la formation du disque d'air et de sa rétraction sous la forme d'une bulle lors de l'impact d'une goutte d'eau sur un wafer de silicium (figure 1.6b). Les échelles temporelles et spatiales mises en évidence sont extrêmement réduites : l'épaisseur du film d'air est évaluée à 1 μ m et la formation de la bulle dure 200 μ s. Kolinski *et al.* [32] ont étudié la rupture du film présent transitoirement sous une goutte lors de l'impact grâce à une technique de réflection totale interne. Le



FIGURE 1.6 : a Vue de trois quart de l'impact d'une goutte d'heptane (We = 43) sur une surface métallique à température ambiante. Une bulle se forme au point d'impact. Extrait de [30]. b Séquence d'images caractéristique de l'évolution du film d'air emprisonné lors de l'impact d'un goutte d'eau (R = 1.3 mm, V = 1.25 m/s) sur un wafer de silicium. Les images sont obtenues pas imagerie rapide rayon X par contraste de phase (Lee *et al.* [31]). c Images en réflection totale interne de la rupture discrète du film d'air sous une goutte d'isopropanol lâchée d'une hauteur de 1 cm. Les zones noires indiquent un contact entre le liquide et le substrat. Extrait de [32].

1.2. DESCRIPTION D'UN REBOND

mouillage est initié en de nombreux points discrets (figure 1.6c). La capture de ce film d'air n'a pas été étudiée sur des substrats présentant une rugosité où des défauts localisés. La très faible épaisseur ($\sim \mu m$) du film d'air laisse présager une influence forte des rugosités sur l'initiation du contact mais aussi sur l'écoulement dans le film de lubrification.

Etant donné la séparation entre l'échelle de temps associée au contact initial, de l'ordre de 100 μ s, et celle associée au rebond, de l'ordre de 10 ms, nous considèrons pour notre étude du rebond que le liquide entre immédiatement en contact avec le haut des rugosités responsables de la superhydrophobie.

1.2.3 Etalement

Le liquide s'étale depuis le contact initial jusqu'à atteindre son empreinte maximum sur le substrat, caractérisée par le rayon maximal R_{max} , au temps τ_s qui représente 25% du temps de rebond. Nous présentons d'abord la dynamique de l'étalement à temps court puis la forme adoptée par le liquide et enfin son rayon maximal.

La dynamique de l'impact à temps court a été étudiée expérimentalement [33] et théoriquement [34]. Quand $t \ll R/V$, le rayon de contact r suit la loi : $r = \sqrt{3VRt}$. Ce résultat peut être retrouvé en loi d'échelle à l'aide d'un raisonnement géométrique. A un instant t, très proche du contact initial, le liquide n'est affecté par la présence du solide que sur une distance caractéristique $\delta = Vt$. C'est la situation que l'on représente figure 1.7. Le reste de la goutte (représenté en bleu) est toujours animé d'un mouvement vertical de vitesse V. Supposons que la géométrie de la goutte est conservée et que le volume de liquide $\omega \sim r^2 \delta$ est faible et peut-être négligé. Alors au premier ordre, il vient $r^2 \sim R\delta$, soit $r \sim \sqrt{VRt}$. Cette loi d'échelle est valide uniquement si $\omega \ll R^3$ soit $t \ll R/V$. Pour l'impact d'une goutte millimétrique à une vitesse de l'ordre de 1 m/s, la loi d'échelle est vérifiée pour des temps $t \ll 1$ ms. Cet argument géométrique permet de retrouver la dépendance initiale du rayon de contact et la condition de validité associée.

Nous décrivons maintenant la forme de la goutte après le régime à temps court évoqué précédemment, c'est à dire quand t > R/V. Lagubeau *et al.* [35] ont mesuré la forme d'une



FIGURE 1.7 : Schéma d'une goutte quelques instants après le contact. Pour $t \ll R/V$, un argument géométrique prédit $r \sim \sqrt{VRt}$.



FIGURE 1.8 : a Série temporelle de profils de la goutte h représentés en fonction des variables auto-similaires h/h_c et $r\sqrt{h_c}/\sqrt{\Omega}$ où h_c est la hauteur du centre de la goutte et Ω son volume. Les paramètres d'impact sont We = 255 et Re = 1470. b Epaisseur minimale normalisée $h_p/(2R)$ du film central de la goutte en fonction du nombre de Reynolds Re. Les données se rassemblent sur une droite de pente -2/5. Extrait de [35].

goutte d'eau durant son étalement sur une surface hydrophobe à l'aide d'une technique de profilométrie par transformée de Fourier. Ils ont vérifié que le profil h(r, t) de la goutte suit une évolution auto-similaire au début de l'impact (figure 1.8a) prédite par Eggers *et al.* [36] qui ont modélisé la goutte dans l'approximation des films minces. Ce modèle est basé sur un écoulement potentiel rattaché à une couche limite qui se développe au niveau de la surface au cours de l'impact. Près de l'étalement maximal, le liquide adopte la forme d'un film mince ceinturé par un bourrelet périphérique plus épais. L'épaisseur du film est limitée par la croissance de la couche limite visqueuse. L'épaisseur minimale de ce film h_p suit la loi d'échelle : $h_p/R \sim Re^{-2/5}$. La figure 1.8b montre l'épaisseur limite normalisée h_p/R du film central en fonction de Re mesurée par [35] ([37] présente des résultats similaires). Les données se rassemblent sur une droite de pente -2/5 cependant la faible variation de h_p/R dans le domaine accessible expérimentalement ne permet pas de valider avec certitude cette loi d'échelle.

Le rayon maximum adopté par une goutte lors de son impact sur un solide a fait l'objet de beaucoup d'attention. De nombreuses relations liant le rayon maximal aux paramètres d'impact ont été obtenues en écrivant des équilibres entre les contributions inertielles, visqueuses et capillaires. Si l'on considère l'impact de liquides visqueux, l'équilibre entre inertie ($\sim \rho R^3 V^2$) et viscosité ($\sim \eta V/hR_{max}^3$) dérivé par [30] mène à la loi d'échelle :

$$R_{max}/R \sim Re^{1/5}$$
.

Pour des liquides peu visqueux, deux lois d'échelle asymptotiques ont été proposées pour équilibrer les effets inertiels et capillaires. Si l'on considère la transformation totale de l'énergie cinétique initiale (~ $\rho R^3 V^2$) en énergie de surface quand l'étalement est maximal (~ γR_{max}^2), on obtient :

$$R_{max}/R \sim W e^{1/2}.$$

Cette loi d'échelle n'est pas observée lors du rebond de gouttes car les vitesses nécéssaires



FIGURE 1.9 : Etalement visqueux normalisé $R_{max}/RRe^{-1/5}$ en fonction du paramètre d'impact $P = WeRe^{-2/5}$ pour l'impact de gouttes d'eau et de mélanges eau-glycerol sur des surfaces métalliques hydrophobes. La ligne pointillée représente l'interpolation entre les lois d'échelle en $We^{1/2}$ et $Re^{1/5}$. Extrait de [40].

pour vérifier expérimentalement ce régime d'impact asymptotique ne sont pas atteintes sans fragmentation du liquide. Elle est en revanche vérifiée lors d'impacts à plus haute vitesse [38]. Clanet *et al.* [39] ont proposé d'équilibrer l'inertie et la capillarité en utilisant la conservation du volume. Quand la goutte est étalée la conservation du volume s'écrit $R^3 \sim R_{max}^2 h$ où h est la hauteur moyenne du liquide étalé. Ils interprètent h comme consécutive de la décélération subie par le liquide lors de l'impact, V^2/R , soit $h \sim \sqrt{\gamma R/\rho V^2}$. La loi d'échelle obtenue est :

$$R_{max}/R \sim W e^{1/4}$$
.

Cette loi d'échelle décrit de manière satisfaisante l'extension maximale de gouttes d'eau impactant une surface superhydrophobe. Cependant Lagubeau *et al.* [35] ont montré que la forme étalée d'une goutte dépend de sa viscosité dans le régime étudié. Il faut donc prendre la viscosité en compte en même temps que l'inertie et la capillarité pour prédire l'étalement maximal du liquide. Eggers *et al.* [36] ont proposé d'interpoler l'étalement maximal entre les lois d'échelles asymptotiques variant en $We^{1/2}$ et $Re^{1/5}$:

$$R_{max}/R \propto Re^{1/5} f(WeRe^{-2/5})$$

où f est une fonction d'ajustement qui dépend du paramètre d'impact $P = WeRe^{-2/5}$. La figure 1.9 montre que les données de [40] pour des impacts de gouttes d'eau et de mélanges de eau-glycerol sur des surfaces métalliques hydrophobes se rassemblent quand l'étalement visqueux normalisé $R_{max}/RRe^{-1/5}$ est traçé en fonction du paramètre d'impact P. Si l'on choisi de tracer le même graphique en choisissant pour paramètre d'impact $P = WeRe^{-4/5}$ en nous inspirant de la loi d'échelle en $We^{1/4}$, les données ne rassemblent pas sur une courbe maîtresse. L'ajustement représenté par la ligne pointillée montre que l'on se situe dans un régime intermédiaire entre les régimes visqueux (petit P) et inertiels (grand P) où l'on doit prendre en compte à la fois l'inertie, la capillarité et la dissipation visqueuse.

1.2.4 Rétraction

La rétraction d'une goutte après qu'elle a atteint son étalement maximal a été étudiée sur des matériaux hydrophobes par Bartolo *et al.* [41]. Ils ont observé que l'on peut définir un régime de rétraction à vitesse constante, V_{ret} , à partir de la mesure du rayon de contact r(t) dont un exemple mesuré lors d'un impact sur une surface superhydrophobe est présenté dans la figure 1.3b. Ils ont également remarqué que le taux de rétraction V_{ret}/R_{max} est constant quand on fait varier la vitesse d'impact mais qu'il dépend de la viscosité du liquide. Ces observations sont résumées dans la figure 1.10a qui représente le taux de rétraction normalisé par le temps inertio-capillaire $\sqrt{\rho R^3/\gamma}$ en fonction du nombre d'Ohnesorge *Oh*. Ils distinguent deux régimes : un régime inertiel où le taux de rétraction ne dépend pas de la viscosité du liquide et un régime visqueux où le taux de rétraction varie comme l'inverse de *Oh*. La transition entre les deux comportements a lieu pour *Oh* \approx 0.05. Pour modéliser ce phénomène, ils considèrent deux mécanismes limites qui équilibrent les contributions capillaires avec (i) les contributions inertielles ou (ii) les contributions visqueuses.

Le démouillage inertiel peut-être compris à l'aide d'un mécanisme de type Taylor-Culick [42, 43] dont nous présentons le schéma de principe figure 1.10b. La goutte qui se rétracte prend la forme d'un film liquide mince d'épaisseur h entouré d'un bourrelet de masse M et de rayon R_{max} qui collecte le liquide. En considérant une situation axisymétrique et que en appliquant la seconde loi de Newton au bourrelet, Bartolo *et al.* obtiennent : $d(MV_{ret})/dt = 2\gamma$. L'expérience montrant que la vitesse V_{ret} est constante, Ils écrivent la variation de masse $dM = \rho V_{ret}hdt$ soit :

$$V_{ret} = \sqrt{\frac{2\gamma}{\rho h}}.$$

En utilisant la conservation du volume $h \sim R^3/R_{max}^2$, il vient l'expression finale $V_{ret}/R_{max} \sim \sqrt{\gamma/(\rho R^3)}$ qui correspond au régime observé pour Oh < 0.05 figure 1.10. Le même raisonnement a été utilisé par [44] sur des matériaux superhydrophobes. Le fait que la goutte se rétracte sur un solide peut également être pris en compte en introduisant l'angle de reculée θ_r [45].

Dans le régime visqueux, ils supposent que l'énergie cinétique initiale est dissipée par un écoulement visqueux proche de la ligne de contact. Au début de la rétraction le liquide prend la forme d'un calotte sphérique dont le rayon R_{max} est grand devant R. L'approximation de petit angle de contact $\theta(t)$ est applicable. Les vitesses de rétraction mesurées pour des liquides visqueux sur une surface hydrophobe par Bartolo *et al.* sont bien plus faibles que dans le régime inertiel. Ils négligent alors l'inertie du liquide au cours de la phase de rétraction et considèrent l'équilibre entre la force capillaire et la force visqueuse. La force capillaire qui s'exerce dans le coin de liquide proche de la ligne de contact varie



FIGURE 1.10 : **a** Taux de rétraction V_{ret}/R_{max} normalisé par le temps inertio-capillaire $\tau = \sqrt{\rho R^3/\gamma}$ en fonction du nombre d'Ohnesorge, *Oh*. Dans le régime inertiel $\tau V_{ret}/R_{max}$ est constant (a) alors qu'il varie comme 1/Oh dans le régime visqueux (b). Tiré de [41]. **b** Schéma du démouillage inertiel d'un film mince d'épaisseur *h*. Le liquide est collecté dans un bourrelet de masse M qui se déplace à la vitesse V_{ret} sous l'action de la tension de surface γ .

comme :

$$F_{\gamma} \sim \gamma r(t)(\cos\theta_R - \cos\theta).$$

Cette force est compensée par le friction visqueuse dans le coin qui s'écrit :

$$F_{\eta} \sim \frac{\eta r \dot{r}}{\theta} \ln(\frac{\Lambda}{\lambda})$$

où Λ et λ sont respectivement les longueurs de coupure macroscopique et microscopique. Dans le cas de l'impact d'une goutte sur un solide non prémouillé, on choisit typiquement une longueur macroscopique de l'ordre du rayon des gouttes $\Lambda \sim 1$ mm et une longueur microscopique de l'ordre de $\lambda \sim 1-10$ nm. L'équilibre de ces deux forces permet d'obtenir une relation entre l'angle θ et la vitesse \dot{r} [46, 47, 48] :

$$\frac{\dot{r}}{r} \sim \frac{\gamma}{\eta r} \frac{(\cos \theta_R - \cos \theta)\theta}{\ln(\Lambda/\lambda)}$$

Bartolo *et al.* ont proposé d'évaluer cette relation au début de la rétraction où l'on peut faire l'approximation $\theta \ll 1$ et en considérant la conservation du volume $R^3 \sim r^3 \theta$. Ils obtiennent alors :

$$\frac{\dot{r}}{r} \sim \frac{\gamma}{\eta R} \frac{(\cos \theta_R - 1 + \theta^2/2)\theta^{4/3}}{\ln(\Lambda/\lambda)}$$

Ils estiment alors le taux de rétraction V_{ret}/R_{max} comme le maximum de \dot{r}/r soit :

$$\frac{V_{ret}}{R_{max}} \sim \frac{\gamma}{\eta R} \frac{(1 - \cos \theta_R)^{5/3}}{\ln(\Lambda/\lambda)}$$

Le taux de rétraction varie comme l'inverse du nombre d'Ohnesorge dans le régime visqueux ce qui correspond au comportement observé quand Oh > 0.05 dans la figure 1.10.

1.2.5 Décollage

Nos observations du rebond d'une goutte d'eau sur une surface superhydrophobe nous ont conduit à séparer la phase de démouillage du liquide en une étape de rétraction sous la forme d'un film mince, qui correspond à celle étudiée par [41] et [44], et une phase de décollage sous une forme verticale allongée. La présence de ces deux étapes distinctes, sur un substrat superhydrophobe, est également mise en évidence par nos mesures de r(t)pour plusieurs vitesses V. Les évolutions temporelles de r (figure 1.11a) montrent des comportements différents entre $t = \tau_s$ et $t = \tau_j$ puis entre $t = \tau_j$ et $t = \tau_0$. Entre τ_s et τ_j , r dépend de la vitesse d'impact. Entre ces deux instants, les courbes de r/R_{max} se rassemblent (figure 1.11b) ce qui confirme que la phase de démouillage sous la forme d'un film mince se fait bien à taux de rétraction constant comme sur un solide hydrophobe. Au contraire, la dynamique du rayon de contact lors de la phase de décollage (entre τ_j et τ_0), qui n'est pas présente dans les expériences de [41], ne dépend pas de la vitesse d'impact : elle a lieu à vitesse constante.

La phase de décollage commence à l'instant $t = \tau_j$ où un jet vertical est créé. Ce jet est la signature de la conversion du mouvement horizontal généré lors de la rétraction en un mouvement vertical qui va entrainer le décollage du liquide. Bartolo *et al.* [49] ont mesuré la vitesse d'éjection du jet en fonction de la vitesse d'impact. Ils ont rapporté que la vitesse d'éjection du jet peut atteindre 40 fois la vitesse d'impact et ont mis en évidence la présence de deux singularités qui correspondent à l'effondrement d'une cavité crée par les déformations du liquide. Le mouvement vertical initié par le jet se poursuit par le décollage du liquide sous une forme allongée quand $t = \tau_0$. Une façon de caractériser ce décollage est de mesurer la vitesse verticale du centre de masse du liquide, ce qui nous renseigne sur la quantité d'énergie cinétique initiale perdue au cours de l'impact. Une goutte d'eau que l'on laisse tomber sur un substrat non-mouillant peut rebondir de nombreuses fois avant de s'arrêter. Cette constatation nous donne l'intuition que le rebond



FIGURE 1.11 : **a** Rayon de contact r(t) mesuré lors de l'impact de gouttes d'eau (R = 1.3 mm) sur une surface superhydrophobe pour différents V. Pour $t > \tau_j$, les courbes se rassemblent indiquant un comportement qui n'est plus à taux de rétraction constant. **b** Rayon de contact normalisé r/R_{max} en fonction de t dans les mêmes conditions que a. Lorsque la goutte se rétracte sous la forme d'un film mince le taux de rétraction est constant comme indiqué par la superposition des courbes entre τ_s et τ_j .



FIGURE 1.12 : **a** Coefficient de restitution ε en fonction de V pour l'impact d'une goutte d'eau (R = 0.5 mm) sur une surface superhydrophobe. Les chocs sont très élastiques, entre 0.15 et 0.3 m/s ε prend une valeur constante égale à 0.9. Extrait de [15] **b** Coefficient de restitution ε en fonction du nombre de Weber We pour des gouttes d'eau, d'acétone et d'éthanol en caléfaction. Le coefficient de restitution est une fonction décroissante du nombre de Weber : $\varepsilon \sim We^{-1/2}$. Extrait de [50].

est un phénomène peu dissipatif. Pour caractériser la persistance des rebonds, Richard etal. [15] ont définit le coefficient de restitution $\varepsilon = |V'/V|$ où V' est la vitesse du centre de masse du liquide quand il quitte la surface. Ils ont mesuré ε en fonction de V lors de l'impact sur des surfaces superhydrophobes (figure 1.12a). Pour de très faibles vitesses d'impact ($\approx 0.1 \text{ m/s}$), ε augmente avec V ce qu'ils ont interprété comme consécutif à l'existence d'une vitesse minimale de rebond causée par l'adhésion. Ensuite le coefficient de restitution atteint une valeur maximale de l'ordre de 0.90 qu'il conserve entre 0.15 et 0.3 m/s. Au-delà, ε décroit avec V. La décroissance du coefficient de restitution avec la vitesse d'impact a été étudiée par Biance et al. [50] pour des impacts en caléfaction. Les mesures de ε en fonction du nombre de Weber We montrent une variation : $\varepsilon \sim We^{-1/2}$. Pour des impacts en caléfaction la valeur maximale de ε est proche de 1 et il n'y pas de décroissance à très faible vitesse synonyme d'un vitesse seuil pour le rebond, l'adhésion est inexistante en caléfaction. La perte d'élasticité du rebond avec l'augmentation de V est attribuée à deux causes : les pertes d'énergies par viscosité lors de l'impact et le transfert d'énergie au décollage entre le mouvement de translation vertical et les oscillations de la surface de la goutte. Plus V augmente, plus l'amplitude des oscillations est grande et moins le choc est élastique. Le rôle joué par la dissipation visqueuse au cours de l'impact est souvent négligé du fait de sa brièveté (~ 10 ms). Il n'existe cependant pas d'expérience quantitatives de rebond de gouttes visqueuses sur des substrats non-mouillants qui permettraient d'élucider l'influence de la dissipation au cours du contact sur le coefficient de restitution.

1.3 Conclusion

Ce chapitre nous a permis d'identifier les issues possibles de l'impact d'une goutte de liquide sur un solide. Nous nous intéressons particulièrement au phénomène de rebond. Nous avons identifié dans la littérature les situations où ce phénomène a lieu. Elles ont pour point commun l'absence apparente de contact entre le liquide et le substrat. Nous avons ensuite décrit le rebond d'une goutte sur une surface superhydrophobe de façon

CHAPITRE 1. REBOND SUR SUBSTRATS NON-MOUILLANTS

globale puis en détaillant chronologiquement chacune des étapes qui le caractérisent.

Nous apportons dans ce chapitre une contribution originale, la division de la dynamique du rebond en trois étapes distinctes d'étalement, de rétraction et de décollage. Cette dernière étape souvent assimilée à la rétraction représente près de la moitié du temps de contact et possède une dynamique propre.

Chapitre 2

Rebond sur surfaces macrotexturées

Retour à la table des matières

Sommaire

| 2.1 | Amél | ioration de la superhydrophobie par macrotexturation $~.~.~30$ |
|-----|-------|--|
| | 2.1.1 | Etat de l'art |
| | 2.1.2 | Variations géométriques |
| 2.2 | Impa | ct sur une macrotexture ponctuelle |
| | 2.2.1 | Expérience |
| | 2.2.2 | Simulation |
| | 2.2.3 | Modèle de blob |
| | 2.2.4 | Impact excentré |
| | 2.2.5 | Tore déroulé |
| | 2.2.6 | Impacts très excentrés |
| 2.3 | Impa | ct sur plusieurs singularités |
| | 2.3.1 | Défauts rapprochés : $p \le 2R$ |
| | 2.3.2 | Défauts éloignés : $p > 2R$ |
| 2.4 | Conc | $lusion et perspectives \ldots 53$ |

L'étude de l'impact sur plusieurs fils et sur une macrotexture ponctuelle a été réalisée avec Anaïs Gauthier. Les simulations numériques sont l'oeuvre de l'équipe d'Ilya Karlin (ETH Zurich) avec qui nous avons collaboré pour étudier le rebond sur une singularité non-mouillante.

L'une des manifestations les plus remarquables de la capacité des surfaces superhydrophobes à repousser un liquide est le phénomène de rebond décrit au chapitre 1. L'interaction entre une goutte d'eau et un matériau non-mouillant lors d'un impact est à la fois localisée (\sim mm²) et brève (\sim 10 ms). Ces deux caractéristiques ont pour conséquence des échanges (de chaleur [51, 52], de quantité de mouvement [53] ou chimiques [54]) réduits,



FIGURE 2.1 : Carte des températures de la surface du liquide et du substrat lors d'un rebond visualisée par imagerie thermique à haute vitesse. La goutte laisse une empreinte thermique sur la surface après son départ. Adapté de [52].

ce qui permet de créer des matériaux aux propriétés nouvelles. Par exemple, Mishchenko et al. [51] ont montré qu'une goutte d'eau en surfusion impactant un matériau superhydrophobe peut rebondir avant de geler, lui conférant ainsi une fonction anti-glace. Shiri *et* al. [52] ont mis en évidence expérimentalement les échanges de chaleur entre une goutte d'eau chaude et un substrat non-mouillant froid à l'aide d'une caméra thermique haute vitesse (figure 2.1). Ils ont montré que les échanges de chaleur avaient lieu par contact direct entre le liquide et le substrat et étaient influencés par l'étalement maximal et le ratio entre le temps de contact et le temps de diffusion thermique.

Pour obtenir des matériaux aux propriétés (par exemple anti-glace) renforcées, on peut chercher à diminuer encore plus l'interaction entre liquide et substrat. Dans ce chapitre, nous prennons le parti de réduire les échanges en diminuant le temps de rebond. Nous cherchons donc à obtenir des substrats capables de repousser un liquide en un temps plus court que le temps de contact obtenu sur une surface superhydrophobe usuelle. Nous nous intéressons particulièrement à l'utilisation de macrotextures, des modifications de la géométrie du substrat à une échelle intermédiaire entre celle des microtextures ($\sim \mu m$) responsables de la superhydrophobie et celle de la goutte ($\sim mm$). Nous présentons un état de l'art de l'utilisation de ces textures spéciales avant de nous tourner vers l'étude d'une macrotexture nouvelle.

2.1 Amélioration de la superhydrophobie par macrotexturation

2.1.1 Etat de l'art

Nous présentons ici deux exemples récents, fondateurs de l'utilisation de ces textures. Bird *et al.* [28] ont choisi d'étudier l'impact de gouttes d'eau sur des surfaces ornées de



FIGURE 2.2 : **a** Vue de dessus de l'impact d'une goutte d'eau millimétrique sur une surface superhydrophobe texturée par une crête. Le liquide s'étale en prenant la forme d'un papillon. Le temps de contact est réduit d'un facteur 2 par rapport à une surface superhydrophobe classique. (insert) Image MEB de la macrotexture superhydrophobe. Adapté de [28]. **b** Séquence d'images décrivant un impact sur une forêt de macrocônes superhydrophobes. Le liquide rebondit sous la forme d'un *pancake* après 3.4 ms soit une réduction d'un facteur 4 par rapport à une surface non texturée. (insert) Image MEB montrant les macrocônes superhydrophobes. Adapté de [55].

crêtes de taille caractéristique de l'ordre de la centaine de micromètres (insert figure 2.2a) inspirées des veines que l'on trouve à la surface des feuilles de nasturtium ou des ailes du papillon Morpho. La figure 2.2a présente une vue de dessus prise lors de l'impact d'une goutte d'eau sur une telle surface. Le rebond perd son caractère isotrope : le liquide se rétracte plus rapidement le long de la texture et semble se concentrer aux quatre coins de l'image. Ce rebond atypique au cours duquel la distribution du liquide est modifiée par la présence de la macrotexture donne lieu à une réduction du temps de contact d'un facteur 2 par rapport à une surface non texturée. Un second exemple nous vient de l'étude de Liu et al. [55] qui ont réalisé des impacts sur une forêt de macrocônes très élancés (diamètre ~ 100 µm et hauteur ~ 1 mm) dont une image MEB est présentée en insert figure 2.2b. Ici la goutte s'étale de manière isotrope comme lors d'un impact classique mais quitte le substrat alors qu'elle est étalée à son maximum sous la forme d'un *pancake* (figure 2.2b). L'effet sur le temps de contact est spectaculaire : il est divisé par 4.

Comment comprendre les effets remarquables engendrés par des macrotextures aussi différentes ? Gauthier *et al.* [56] ont proposé de lier la forme prise par le liquide lors de l'impact à la réduction du temps de contact observée. Inspirés par l'expérience de Bird *et al.*, ils ont réalisé des impacts sur des substrats texturés par un fil (de diamètre $\sim 100 \ \mu$ m), dont l'effet est en tout point similaire à celui des crêtes présentées précédemment, en faisant varier systématiquement la vitesse d'impact et le rayon des gouttes.

La figure 2.3a présente l'impact d'une goutte d'eau de rayon R = 1.3 mm à la vitesse de V = 1.0 m/s. La goutte ne s'étale et ne se rétracte pas de manière isotrope : le liquide



FIGURE 2.3 : Vue de dessus de l'impact d'une goutte d'eau (R = 1.3 mm) sur une surface nonmouillante texturée par un fil superhydrophobe. **a** Pour V = 1.0 m/s, le liquide se concentre dans 4 lobes au cours du rebond, $\tau = 7.6 \text{ ms}$ soit une réduction de 56% par rapport à une surface classique. **b** Pour V = 0.5 m/s, le liquide se répartit en 2 globules de part et d'autre du fil et se détache du substrat après 10.6 ms. Adapté de [56].

s'étale peu le long du fil ce qui entraine la formation de quatre globules. Par la suite le liquide prend la forme d'un papillon comme précédemment observé par [28]. La phase de démouillage a lieu principalement selon l'axe du fil ce qui a pour conséquence de concentrer le liquide dans les globules. La goutte rebondit après $t = \tau = 7.6$ ms ce qui correspond à une réduction d'un facteur 2 par rapport au temps de contact τ_0 sur une surface sans macrotexture. Pour une vitesse d'impact de 0.5 m/s la goutte s'étale peu, elle prend alors une forme carré (figure 2.3b). Cette fois encore le démouillage se fait préférentiellement le long de la texture ce qui entraine le séparation du liquide dans deux lobes, de chaque côté du fil. Le temps de contact obtenu est $\tau = 10.6$ ms, une valeur plus importante que celle reportée figure 2.3a mais toujours nettement inférieure à τ_0 .

Ces deux exemples confirment l'hypothèse de Gauthier *et al.* : des formes différentes prises au cours de l'impact mènent à des temps de rebond différents. Ils interprétent alors géométriquement les valeurs de τ obtenues. Ainsi, le temps de contact est proportionnel sur une surface classique à $\sqrt{\rho\Omega/\gamma}$ où Ω est le volume de la goutte. Quand la goutte tombe à haute vitesse sur une surface texturée par un fil, le liquide est promptement redirigé dans quatre lobes, tous soumis à l'inertie, qui cause leur étalement, et à la capillarité, qui entraine leur rétraction. Chaque sous-unité ayant un volume $\Omega/4$, ils s'attendent pour des sous-unités indépendantes à un temps de rebond $\tau \simeq \tau_0/\sqrt{4}$ soit une réduction d'un facteur 2 comme observé expérimentalement. Cet argument se vérifie également à vitesse d'impact intermédiaire où le liquide forme deux globules, le temps de contact attendu et observé est $\tau \simeq \tau_0/\sqrt{2}$.

2.1.2 Variations géométriques

Il est tentant de tester ce modèle géométrique à l'aide de macrotextures engendrant de nouvelles figures d'impact. Nous nous sommes notamment intéressés aux formes obtenues en utilisant des combinaisons de macrotextures élancées. La figure 2.4a présente



FIGURE 2.4 : **a** Vue de dessus de l'impact d'une goutte d'eau (Rayon R = 1.3 mm et vitesse V = 0.9 m/s) sur 2 fils superhydrophobes formant un motif en croix. La goutte est séparée en 4 sous-unités au cours de l'impact. On mesure $\tau = 6.6$ ms. **b** Temps de rebond τ_0 sur une surface usuelle (triangles noirs) et τ sur la surface texturée (ronds bleus) mesurés en fonction de la vitesse d'impact V. Au-dessus de 0.5 m/s, τ est relativement constant et réduit d'un facteur 2 par rapport à τ_0 .

l'impact d'une goutte d'eau (R = 1.3 mm et V = 0.9 m/s) sur une surface texturée par 2 fils formant un motif en croix. Le liquide peine à s'étaler dans la direction des textures, créant rapidement 4 globules liquides qui subsistent tout au long du rebond. Nous mesurons $\tau = 6.6 \text{ ms}$, une valeur très proche de celle prédite par le raisonnement géométrique de Gauthier *et al.* : $\tau_0/2 = 6.5 \pm 0.5 \text{ ms}$.

L'originalité de cette expérience se cache dans la variation de τ avec V portée en figure 2.4b. Si la courbe est de nouveau en escalier, l'utilisation de deux fils permet de forcer la division de la goutte en 4 sous-unités distinctes même aux vitesses d'impact intermédiaires : seuls deux régimes sont présents. Au dessus de V = 0.5 m/s, le liquide est toujours fragmenté en 4 sous-unités et le temps de rebond est divisé par un facteur 2. Quand V < 0.5 m/s, la goutte conserve son intégrité. Nous retrouvons le temps de contact usuel τ_0 . Nous remarquons que la réduction de τ est ici plus proche de 50% que dans le cas de l'impact sur un seul fil. Nous interprétons ce résultat qualitativement en constatant que les lobes de liquide sont moins connectés (voir séquences d'images 2.3a et 2.4b), ce qui renforce l'hypothèse de leur indépendance.

Si l'utilisation d'un motif en croix permet de tester notre raisonnement basé sur la géométrie de la figure d'impact, il ne permet pas d'observer une plus forte réduction de τ car il n'augmente pas le nombre de fragment créés. Nous testons alors un motif réalisé à l'aide de 6 fils superhydrophobes placés, en forme d'étoile, sur une surface non-mouillante. L'impact d'une goutte (Rayon R = 1.3 mm et V = 1.05 m/s) sur cette macrotexture est présenté en vue de dessus et de côté dans la figure 2.5a. L'eau ne s'étale que peu le long des fils ce qui force la division du liquide en 6 lobes (figure 2.5a, ligne supérieure). Les lobes ne conservent pas leur intégrité tout au long du rebond; ils sont animés d'un mouvement radial vers l'extérieur. Ce mouvement les étire et cause leur fragmentation par instabilité de Rayleigh-Plateau. La vue de côté (figure 2.5a, ligne inférieure) nous permet



FIGURE 2.5 : **a** Vue de dessus et de côté de l'impact d'une goutte d'eau (R = 1.3 mm et V = 1.05 m/s) sur une surface non-mouillante macrotexturée par 6 fils formant une étoile. Le liquide est séparé en 6 lobes animés d'un mouvement radial. Le liquide quitte la surface en son centre après $\tau = 7.3$ ms. **b** Temps de contact τ_0 sur un matériau superhydrophobe usuel (triangles noirs) et τ sur la surface décrite en a (points magenta).

de constater que le liquide quitte la surface en son centre après que les lobes ont décollé ; nous mesurons $\tau = 7.3$ ms.

La figure 2.5b montre la variation de τ avec V, la courbe adopte une forme en escalier. Pour V < 0.7 m/s, τ coincide avec τ_0 . Pour des vitesses supérieures à 0.7 m/s, nous observons une décroissance du temps de contact avec la vitesse d'impact. Ce comportement contraste avec nos observations précédentes sur des macrotextures élancées. Diviser la goutte en de plus nombreuses sous-parties n'entraîne pas toujours un rebond plus rapide. Ici, chaque globule s'étale puis est éjecté vers l'extérieur, nous ne pouvons donc pas décrire l'impact comme celui de globules s'étalant puis se rétractant indépendamment. L'interprétation géométrique de la figure d'impact n'est pas valide dans ce cas.

Ces deux variations géométriques sur les traces de [56], nous montrent l'existence d'un lien entre figure d'impact et réduction du temps de contact. Ces expériences soulignent le fait que fragmentation n'égale pas réduction du temps de contact. Il convient de s'assurer que les fragments créés se comportent comme des gouttes indépendantes. Prenant le contrepied de la fragmentation, nous nous intéressons au rebond de formes nouvelles, connectées, que l'on peut engendrer à l'aide de textures simples.

2.2 Impact sur une macrotexture ponctuelle

Nous nous intéressons aux formes générées par l'impact de gouttes d'eau sur la macrotexture la plus simple que l'on puisse imaginer : une macrotexture ponctuelle. Malgré son apparente simplicité, la présence d'un tel défaut ponctuel a été associée à des effets forts comme la fragmentation de gouttes lors d'impacts en caléfaction [57] ou l'apparition du splash [58].



FIGURE 2.6 : Vue de trois-quart de l'impact d'une goutte (R = 1.6 mm et V = 1.2 m/s) sur une bille de verre de rayon $r = 200 \ \mu m$ collée à un wafer de silicium. Ces deux éléments sont superhydrophobes. Le liquide décolle sous la forme d'un anneau après 10.3 ms.

2.2.1 Expérience

Le substrat est fabriqué en collant une bille de verre de rayon $r = 200 \pm 20 \ \mu\text{m}$, la macrotexture, sur une pastille de silicium. Ces deux éléments sont rendus superhydrophobes en leur appliquant un traitement en spray composé de billes nanométriques hydrophobes dispersées dans l'acétone (Ultra Ever Dry, UltraTech International). Après évaporation du solvant, le substrat est entièrement recouvert par les billes nanométriques qui lui confèrent sa superhydrophobie : une goutte déposée sur ce substrat a des angles de contact d'avancée et de reculée de $166^{\circ} \pm 4^{\circ}$ et $159^{\circ} \pm 2^{\circ}$ respectivement. Nous faisons tomber des gouttes d'eau distillée (densité $\rho = 1000 \ \text{kg/m}^3$ et tension de surface $\gamma = 72 \ \text{mN/m}$) sur les surfaces ainsi fabriquées. La vitesse d'impact V est variée entre 0.4 et 1.6 m/s en ajustant la hauteur de l'aiguille calibrée ($R = 1...2.4 \ \text{mm}$) à partir de laquelle les gouttes sont formées. Nous nous assurons également de réaliser des impacts centrés en filmant le rebond en vue de dessus et de côté à l'aide de deux caméras rapides fonctionnant à 10000 images par seconde et en ajustant la position de l'aiguille à l'aide de 2 vis micrométriques.

Nous distinguons deux scénarii lors d'impacts sur cette texture. (i) A basse vitesse d'impact (V < 0.9 m/s pour R = 1.3 mm), le rebond n'est pas modifié qualitativement par rapport à celui sur une surface non-mouillante sans macrotexture. La goutte s'étale puis se rétracte avant de décoller sous une forme allongée. (ii) Quand $V > V^*$ ($V^* = 0.9 \text{ m/s}$ pour R = 1.3 mm), le décollage a lieu sous la forme inhabituelle d'un anneau (figure 2.6). Le début du rebond n'est pas modifié par la présence de la bille. Au cours de l'étalement, la goutte s'aplatit et un mince film liquide se forme en son centre. Ce film est percé par le défaut central ce qui entraine le démouillage du film mince. Le liquide démouille vers l'extérieur jusqu'à entrer en collision avec le bourrelet en périphérie de la goutte qui se déplace vers l'intérieur. La collision de ces deux entités se déplaçant dans des directions opposées entraine la création d'un mouvement vertical qui conduit au décollage de la goutte sous la forme d'un anneau. Cet anneau possède également une dynamique horizontale qui entraîne sa fermeture au cours de son vol.

Le temps de rebond peut prendre deux valeurs distinctes en fonction de V qui corres-


FIGURE 2.7 : **a** Temps de contact τ de gouttes d'eau (R = 1.3 mm) rebondissant sur une pastille de silicium superhydrophobe (triangles noirs, τ_0) et sur la même surface ornée d'un défaut ponctuel (points bleus, données expérimentales et cercles rouges, résultat des simulations). τ et τ_0 sont représentés en fonction de V. **b** Temps de rebond avec (τ_0) et sans (τ) macrotexture mesuré pour des gouttes de différents rayons. τ est mesuré dans le régime $V > V^*$ où il est réduit (points bleus, données expérimentales; cercles rouges, résultat des simulations). Les lignes pointillées sont des ajustements : tirets noirs, $\tau_0 \approx 2.6(\rho R^3/\gamma)^{1/2}$ et tirets bleus, $\tau \approx 0.48\tau_0$. **c** Temps de rebond normalisé τ/τ_0 en fonction de nombre de Weber ($We = \rho RV^2/\gamma$) pour des gouttes de différents R. La transition entre les deux régimes de rebond se fait à un nombre de weber critique de 20 ± 2 .

pondent aux deux régimes décrits précédemment. La courbe $\tau(V)$ présente deux plateaux en présence d'une macrotexture ponctuelle (figure 2.7a). A faible vitesse d'impact, nous obtenons $\tau \simeq \tau_0$ (triangles noirs et points bleus confondus). Le temps de rebond est très fortement réduit quand $V > V^*$, il passe de manière discontinue de τ_0 à $0.48\tau_0$ et ce dans une large gamme de vitesse. Cette réduction du temps de contact correspond de manière univoque au décollage du liquide sous la forme d'un anneau.

Nous faisons varier le rayon R des gouttes entre 1 et 2.4 mm et nous reportons la valeur de τ_0 et τ quand $V > V^*$ dans la figure 2.7b. Ces deux variables semblent suivre une loi de puissance avec un exposant 1.5 ± 0.03 . Cet exposant est caractéristique de la loi d'échelle inertio-capillaire : $\tau \sim (\rho R^3 / \gamma)^{1/2}$. Nos mesures suggèrent que cette loi est valable pour les impacts avec et sans macrotexture, mais avec des préfacteurs différents : l'ajustement en tirets noirs (τ_0) a un préfacteur 2.60 \pm 0.2 alors que celui en tiret bleus (τ) un préfacteur 1.24 \pm 0.3 (figure 2.7b).

Nous traçons dans la figure 2.7c le temps de contact normalisé τ/τ_0 en fonction du nombre de Weber pour des gouttes dont nous faisons varier le rayon (couleurs). Les courbes obtenues pour les différents rayons se rassemblent sur une courbe maîtresse. La transition vers le régime de rebond en anneau se produit pour un nombre de Weber $We = 20 \pm 2$. La transition entre ces deux régimes a lieu quand la vitesse d'impact est suffisante pour nucléer le film mince. Cet évènement se produit lorsque la largeur du défaut est proche de l'épaisseur du film h [59].

2.2.2 Simulation

Pour mieux comprendre ce mécanisme de rebond original, nous avons simulé l'impact d'une goutte d'eau sur une singularité superhydrophobe. Nous utilisons une méthode lat-



FIGURE 2.8 : Vue de trois-quart (haut) et de coupe (bas) de la simulation de l'impact d'une goutte d'eau (R = 1.3 mm et V = 1.28 m/s) sur une macrotexture sphérique de rayon $r = 200 \text{ }\mu\text{m}$. Les vues de coupe nous permettent de visualiser la formation de l'anneau (t = 3.7 ms) et la collision des bourrelets (t = 6.1 ms).

tice Boltzmann entropique (ELBM) adaptée aux écoulements multiphasiques [60, 61, 62]. Les paramètres expérimentaux et numériques sont mis en correspondance à l'aide des nombres adimensionnés suivants : le nombre de Reynolds ($Re = \rho RV/\eta$ où η est la viscosité du liquide) et de Weber ($We = \rho RV^2/\gamma$) et en choisissant un angle de contact constant de 161° proche de l'angle d'avancée et de rétraction de nos surfaces.

La figure 2.8 présente une vue de trois quart et de coupe extraite de la simulation de l'impact d'une goutte d'eau (R = 1.3 mm et V = 1.28 m/s) sur une macrotexture sphérique de rayon $r = 200 \text{ \mum}$. La séquence d'images présentée est en accord à la fois qualitatif (figure 2.6) et quantitatif avec l'expérience : nous obtenons $\tau = 6.7 \text{ ms}$ une valeur très proche de celle mesurée expérimentalement ($\tau = 6.6 \pm 0.1 \text{ ms}$). La vue de coupe permet d'observer des évènements cachés par le bourrelet périphérique dans nos expériences. Notamment, la vue de coupe confirme que le défaut nuclée le film liquide quand son diamètre est comparable à l'épaisseur du film. Elle permet également de visualiser comment un mouvement vertical est créé par la collision des deux bourrelets de démouillage se déplaçant dans des directions opposées. La collision n'est pas symétrique : le bourrelet périphérique possède la majorité de la quantité de mouvement. Cette asymétrie est illustrée par les l'oblicité des sections du tore dans l'image finale de la figure 2.8. Le décollage se fait vers l'intérieur.

Nous tirons des simulations la dépendance du temps de rebond en fonction de V et R. Nous retrouvons les deux régimes d'impact obtenus expérimentalement et les plateaux de τ qui leur sont associés. Les figures 2.7a et 2.7b montrent l'accord quantitatif entre les résultats des simulations (cercles rouges) et des expériences (points bleus).

Le mécanisme de rebond entrevu à l'aide des expériences et des simulations semble nécessiter uniquement la nucléation du film mince en son centre. Pour tester la généralité de ce mécanisme, nous réalisons des impacts sur des macrotextures ponctuelles variées. Nous testons deux formes de défauts pouvant être assimilées à des singularités : des piliers et des cônes. La figure 2.9a présente un impact sur un pilier de même diamètre et hauteur



FIGURE 2.9 : **a** Impact d'une goutte (R = 1.3 mm et V = 1.2 m/s) sur un pilier superhydrophobe de hauteur et diamètre 400 µm. Le liquide rebondit après 6.7 ms, un temps très réduit par rapport au temps de contact sur une surface usuelle, sous la forme d'un anneau. **b** Rebond d'une goutte (R = 1.3 mm et V = 0.91 m/s) sur une macrotexture conique (hauteur et diamètre : 2 mm). Le liquide n'est plus en contact avec le substrat après 7.2 ms.

 $(2r = 400 \ \mu\text{m})$ et la figure 2.9b présente le rebond d'une goutte sur une cône de hauteur et diamètre 2 mm. Dans les deux cas le liquide rebondit sous la forme d'un tore, le mécanisme de rebond en anneau est conservé.

2.2.3 Modèle de blob

L'étude des impacts sur des macrotextures élancées nous a montré que la forme adoptée par le liquide peut être liée au temps de contact. Plus spécifiquement, la fragmentation du liquide impactant en des sous-unités de volume ω , inférieur à celui de la goutte Ω , qui s'étalent et se rétractent indépendamment entraine une réduction du temps de rebond d'un facteur $\sqrt{\Omega/\omega}$.

Nous nous proposons de généraliser ce raisonnement à des situations dans lesquelles les gouttes ne se fragmentent pas. Lors du rebond sur une texture ponctuelle, la goutte conserve son intégrité (dans la gamme de vitesse d'impact considérée), il n'y a pas de sousunités directement visibles. Cependant une nouvelle distance caractéristique apparaît au cours de l'impact. Le liquide s'étale puis se rétracte; cette seconde phase se déroule non seulement de l'extérieur vers le centre mais aussi du centre vers l'extérieur si le défaut est capable de rompre le film mince. La largeur de l'anneau, l, semble être la longueur caractéristique des sous-unités fictives (ou blobs) que nous recherchons. Chacun de ces blobs (de volume ω) s'étale puis se rétracte, une condition nécessaire pour utiliser le modèle sous-unité comme nous l'avons vu pour les combinaisons de textures élancées. La nature inertio-capillaire des impact étant conservée lors du rebond en anneau , nous appliquons la loi d'échelle au niveau d'un blob : $\tau \sim (\rho \omega / \gamma)^{1/2}$. Nous obtenons alors τ



FIGURE 2.10 : a Croquis de dessus d'une goutte atteignant son extension maximale lors de l'impact sur une singularité (en noir). L'impact est centré, nous nommons l la largeur de l'anneau créé. b Même schéma pour un impact excentré d'une distance x. Les blobs, esquissés par une ligne pointillée, ne sont plus symétriques mais présentent une taille maximale l_+ et minimale l_- .

en fonction de τ_0 en comparant le volume ω d'un blob au volume Ω de la goutte. Cette comparaison peut être réalisée graphiquement. Dans le cas d'un impact centré, représenté figure 2.10a, nous avons $l \approx R_{max}$ si $r \ll R_{max}$, une condition toujours vérifiée dans notre étude. L'impact étant centré, il existe une seule valeur de l: la goutte quitte la surface en bloc. En supposant que la goutte étalée peut être décrite comme un film de hauteur moyenne h, nous estimons le rapport entre le volume d'un blob et celui de la goutte par $\pi l^2 h/4\pi R_{max}^2 h$ soit à peu près 1/4. Nous obtenons $\tau \simeq \tau_0/2$, en bon accord avec nos données qui sont ajustées par $\tau = 0.48\tau_0$ (figures 2.7a and b).

2.2.4 Impact excentré

Réaliser des impacts centrés ne nous permet de tester de manière convaincante le modèle de blob car l et R_{max} varient de la même façon avec la vitesse d'impact, le rapport ω/Ω est alors constant quel que soit V et nous ne pouvons pas observer la variation de τ avec l. Nous faisons varier l et R_{max} de manière simple et indépendante en réalisant des impacts excentrés. Nous effectuons des rebonds décentrés d'une distance x en déplaçant l'aiguille à partir de la laquelle la goutte est formée avec une vis micrométrique. Nous pouvons alors faire varier la distance entre le centre de la macrotexture et celui de la goutte avec une précision de 20 μ m. Pour une distance x fixée, les blobs ont une taille qui varie continument entre l_- et l_+ comme défini dans la figure 2.10b.

La figure 2.11 montre l'impact d'une goutte (R = 1.3 mm et $V = 1.3 \text{ m/s} > V^*$) excentrée d'une distance x = 0.7 mm par rapport au centre de la macrotexture. L'étalement et la rupture du film ne sont pas perturbés par l'excentrement. Un impact asymétrique a pour conséquence un rebond asymétrique : la goutte ne décolle pas en une seule fois. Le liquide associé au blob de taille l_- décolle après 5.7 ms alors que le blob de taille l_+ décolle 1.7 ms plus tard ce qui fixe le temps de rebond, $\tau = 7.4$ ms. La vue de coupe des sections de tore confirme quantitativement cette description. Nous remarquons que l'anneau liquide qui rebondit est incliné, une conséquence du rebond rapide de la partie la plus mince de l'anneau liquide. Malgré un excentrement marqué ($x/R \approx 0.55$), le mécanisme de rebond



FIGURE 2.11 : Vue de côté et de coupe (issue des simulations) de l'impact d'une goutte de rayon R = 1.3 mm à la vitesse V = 1.3 m/s sur une macrotexture ponctuelle. L'excentrement est de x = 0.7 mm. Les sous-unités de gauche et de droite décollent après 5.7 ms et $\tau = 7.4 \text{ ms}$ respectivement.

n'est pas modifié et le temps de contact reste réduit : $\tau \approx 0.52\tau_0$, un temps comparable à celui observé pour des impacts centrés.

Pour chaque impact excentré réalisé en variant x entre 0 et R (pour x > R, le liquide ne rebondit plus sous la forme d'un tore), nous mesurons les valeurs du temps de contact associés aux blobs de taille l_{-} et l_{+} . Nous traçons dans la figure 2.12 le temps de contact adimensionné τ/τ_0 en fonction de la taille du blob *l* normalisée par R_{max} . Dans cette expérience R_{max} est fixé : nous gardons la taille de la goutte (R = 1.3 mm) et la vitesse d'impact d'impact ($V = 1.3 \text{ m/s} > V^*$) constantes. Les triangles bleus représentent le temps de rebond correspondant aux *petits* blobs $(l/R_{max} < 1)$ et les points bleus celui des grands blobs $(l/R_{max} > 1)$. Les résultats issus des simulations sont reportés en les symboles creux. Expériences et simulations sont en accord quantitatif. Le temps de contact semble avoir une évolution linéaire avec la taille l des sous-unités (ligne pointillée) ce qui nous suggère d'appliquer le modèle de blob aux impacts excentrés. Le rapport entre le volume d'un blob de taille l et le volume total de la goutte est $\omega/\Omega \approx \pi l^2/4\pi R_{max}^2$. En supposant que le rebond conserve son caractère inertio-capillaire, nous avons pour un blob $\tau \sim (\rho \omega / \gamma)^{1/2}$ soit $\tau \approx \tau_0 (l/2R_{max})$. Nous retrouvons la dépendance linéaire en l de τ . Le modèle prédit que le temps de contact adimensionné τ/τ_0 évolue comme le rapport l/R_{max} avec un coefficient de proportionnalité 1/2. La ligne pointillée ajustant les données (figure 2.12) a une pente 0.37. Une piste expliquant la différence entre ces préfacteurs réside dans l'estimation du volume ω d'une sous-unité. En effet, nous supposons que la goutte étalée possède une épaisseur constante h alors que la vue de trois quart (figure 2.6) et les vues en coupe (figure 2.11) montrent la présence d'un important bourrelet à la périphérie du liquide étalé. L'hypothèse d'épaisseur constante nous conduit à sous-estimer le volume des petites sous-unités et à surestimer celui des grandes. Nous nous attendons donc à observer



FIGURE 2.12 : Temps de rebond τ adimensionné par τ_0 en fonction de la taille normalisée des blobs l/R_{max} lors de l'impact excentré d'une goutte (R = 1.3 mm, $V = 1.3 \text{ m/s} > V^*$). Les points bleus (expériences) et les cercles rouges (simulations) correspondent au départ de la sous-unité de taille l_+ . Les triangles (même code couleur) représentent le décollage du *petit* blob (taille l_-). Les données sont ajustées par la ligne pointillée de pente 0.37.

un préfacteur plus faible que 1/2, ce qui est le cas à la fois dans les expériences et dans les simulations.

Réaliser des impacts excentrés permet de tester le modèle de blob en variant continument la taille des sous-unités et en mesurant le temps de contact associé. Ce modèle, très simple, généralise l'approche initiée par [56] à une situation où la goutte ne se fragmente pas et ne présente donc pas de sous-unités visibles. Pour améliorer la robustesse de notre approche, nous avons choisi de tester cet argument géométrique sur un substrat macrotexturé créant une figure d'impact différente.

2.2.5 Tore déroulé

Nous réalisons des impacts sur un substrat présentant une rainure guidant le liquide lors de son étalement. Celui-ci prend alors une forme allongée dont la largeur est fixée par celle de la rainure W. Un schéma de l'expérience est présenté dans la figure 2.13a. Nous pouvons rapprocher cette expérience de l'impact sur une texture ponctuelle en remarquant qu'un ruban liquide est en fait un tore que l'on aurait déroulé ; la différence est qu'ici la largeur du ruban n'est plus auto-déterminée mais imposée par le substrat. Nous usinons une rainure de profondeur 0.5 mm et de largeur W = 2.2 mm dans un bloc de laiton. Nous choisissons de réaliser des impacts en caléfaction. En effet, la présence d'arêtes crée des points d'accroche pour le liquide ce qui augmente artificiellement le temps de contact et entraine une dispersion des mesures. Nous portons le substrat à une température de 350 °C et nous formons des gouttes d'éthanol à l'aide d'une aiguille calibrée. Au point d'ébullition (78 °C à la pression standard), le liquide a pour densité $\rho = 728$ kg/m³ et pour tension de surface $\gamma = 17.8$ mN/m. Nous observons alors des rebonds en tout point semblables à ceux obtenus sur une surface non-mouillante à température ambiante.



FIGURE 2.13 : a Schéma de l'impact d'une goutte de rayon R tombant à la vitesse V sur un substrat sur lequel nous avons usiné une rainure de largeur W. Nous portons le substrat à la température de 350 °C pour se placer en situation de caléfaction. b Vue de côté et de dessus de l'impact d'une goutte d'éthanol (R = 0.93 mm et V = 0.7 m/s) dans une rainure de largeur W = 2.2 mm. Le liquide est guidé par la rainure et atteint son extension l_{max} après 3.2 ms, il rebondit ensuite sous la forme d'un cylindre après $\tau = 7.2$ ms $< \tau_0$.

Des vues de côté et de dessus simultanées lors de l'impact d'une goutte de rayon R = 0.93 mm à la vitesse V = 0.7 m/s sont présentées dans la figure 2.13b. La goutte s'étale de manière isotrope puis le liquide est guidé par la rainure. Il prend une forme allongée de largeur W selon l'axe de la texture jusqu'à atteindre son extension longitudinale maximale l_{max} . Les bourrelets, s'étant formés au niveau des murs latéraux, se rétractent alors orthogonalement à l'axe de la rainure de sorte que le liquide augmente son extension longitudinale. Ensuite les deux bourrelets entrent en collision ce qui crée un mouvement vertical qui cause le décollage du liquide sous la forme d'un cylindre après $\tau = 7.2 \pm 0.1$ ms, un temps réduit par rapport au temps $\tau_0 = 13.6 \pm 1$ ms pour des gouttes en caléfaction sur un substrat plan. La figure 2.14a représente l'évolution des temps τ_0 (triangles noirs) et τ (points rouges) en fonction de la vitesse V. τ est une fonction décroissante de V et il est toujours réduit par rapport à τ_0 dans la gamme de vitesses que nous étudions.

Le liquide s'étale puis se rétracte perpendiculairement à l'axe de la rainure; la distance analogue à la largeur l de l'anneau semble être la largeur W de la rainure. Nous considèrons des sous-unités de taille W ayant un volume $\omega = W^2 h$ où est h est l'épaisseur moyenne du ruban étalé. Le volume de la goutte s'écrit $\Omega = W l_{max} h$. Nous nous attendons à une réduction du temps de contact d'un facteur $\sqrt{\Omega/\omega}$, soit $\tau = \sqrt{W/l_{max}}\tau_0$. Le modèle prédit une variation linéaire du temps de contact normalisé τ/τ_0 avec la racine carrée de l'inverse du rapport d'aspect du ruban. Nous observons cette loi d'échelle dans la figure 2.14b où nous représentons τ/τ_0 en fonction de $(W/l_{max})^{1/2}$. Les données sont ajustées par la ligne pointillée dont la pente est 1 ± 0.1 .



FIGURE 2.14 : **a** Temps de contact τ_0 , sur une surface usuelle (triangles noirs), et τ , sur une surface texturée par une rainure de largeur W = 2.2 mm (points rouges), de gouttes d'éthanol (R = 0.93 mm) en calefaction en fonction de V. τ est une fonction décroissante de V et il est réduit par rapport à τ_0 . **b** Temps de contact normalisé τ/τ_0 en fonction de $(W/l_{max})^{1/2}$ pour les données de a. La ligne pointillée représente la loi d'échelle attendue sans préfacteur.

Cette expérience supplémentaire montre que le modèle de blob résiste à un changement de géométrie. Au-delà du temps de contact, le modèle permet de prédire le comportement du temps de rebond τ en fonction de la vitesse V. Ici, τ est une fonction décroissante de V, un comportement inhabituel à la fois sur des surfaces non-mouillantes usuelles et macrotexturées. Ce comportement est obtenu car ici W est fixé par la géométrie du substrat alors que lors des impacts sur une singularité ou un fil la taille des blobs varie avec V.

2.2.6 Impacts très excentrés

La réduction du temps de contact obtenue par le mécanisme de rebond en anneau est préservée même pour des excentrements de l'ordre du rayon de la goutte : une propriété ayant un intérêt pratique évident. Si nous augmentons encore la distance x, le rebond est profondément modifié : nous n'observons plus le décollage du liquide sous la forme d'un tore. La figure 2.15 présente une vue de dessus de l'impact d'une goutte d'eau (R = 1.3mm, V = 1.3 m/s) excentrée d'une distance x = 2.5 mm par rapport au centre de la macrotexture ponctuelle. Le liquide s'étale de manière isotrope jusqu'à entrer en contact avec le défaut (si $x < R_{max}$), puis il est dévié ce qui entraine la formation de deux lobes (t = 2.8 ms). Lors de la rétraction du liquide ces lobes sont animés d'un mouvement de rotation autour de l'axe normal à la surface, ce qui entraine la fragmentation de la goutte. Le liquide décolle après $\tau = 10.6$ ms, un temps réduit de 25% par rapport à τ_0 malgré l'excentrement très prononcé ($x/R \approx 1.9$).

Nous mesurons le temps de contact τ en fonction de x dans les expériences (points bleus) et les simulations (cercles rouges, figure 2.15b). τ est réduit pour $0 < x < R_{max}$; quand le liquide n'entre plus en contact avec le défaut nous retrouvons enfin $\tau = \tau_0$. Il est



FIGURE 2.15 : **a** Vues de dessus de l'impact (R = 1.3 mm, V = 1.3 m/s) sur un substrat texturé par un défaut ponctuel. La goutte est excentrée de x = 2.5 mm > R. Le temps de contact est de $\tau = 10.6 \text{ ms}$, une valeur nettement inférieure à τ_0 . **b** Temps τ en fonction de l'excentrement x pour une goutte de rayon 1.3 mm ayant une vitesse V = 1.3 m/s. Les points bleus sont extraits des expériences et les cercles rouges des simulations. La réduction du temps de contact reste significative même pour x > R.

intéressant de remarquer que τ approche la valeur limite τ_0 abruptement, permettant une réduction significative du temps de rebond sur une plage de x très importante.

L'étude de l'impact sur une macrotexture ponctuelle superhydrophobe nous a permis de décrire un nouveau mécanisme de rebond qui voit le liquide décoller sous la forme d'un tore. Cette macrotexture, très simple, a un effet marqué sur le temps de contact : il est typiquement réduit d'un facteur 2 pour les impacts centrés mais aussi pour les impacts excentrés jusqu'à une distance comparable au rayon de la goutte impactante. Le temps de rebond reste réduit aussi longtemps qu'il y a contact entre le liquide et le défaut, une propriété fondamentale si l'on souhaite créer des matériaux à la superhydrophobie renforcée.

2.3 Impact sur plusieurs singularités

Pour créer des matériaux à la superhydrophobie renforcée, sur une surface étendue, il est important de comprendre comment agencer plusieurs singularités. Nous cherchons une stratégie d'association des textures qui permette d'obtenir un temps de contact réduit pour des gouttes tombant de manière aléatoire sur le substrat. Une macrotexture ponctuelle provoque une réduction du temps de rebond d'une goutte dès que le liquide touche la texture. Nous faisons la distinction entre deux stratégies de placement des défauts ponctuels. (i) Nous disposons les macrotextures de sorte que la distance entre deux défauts soit plus petite que le diamètre de la goutte. Nous nous assurons alors de la nucléation du film mince formé lors de l'impact en au moins un point. (ii) Nous espaçons les singularités de plus d'un diamètre de goutte, les deux mécanismes de rebond obtenus dans le cas d'une texture ponctuelle sont envisageables. Cette distinction conserve toutefois un caractère artificiel : la pluie tombant sur un matériau superhydrophobe est polydisperse [63, 64].



FIGURE 2.16 : Nous étudions des motifs formés de 2 à 4 piliers de diamètre d_p et hauteur h_p placés de manière équidistante. Nous notons p la distance entre 2 piliers.

Les surfaces texturées sont fabriquées à partir d'un bloc de laiton que nous usinons à la micro-fraiseuse numérique, un procédé de fabrication qui permet de tester des configurations à plusieurs défauts en contrôlant précisément leur position relative. Les macrotextures ponctuelles sont des piliers de hauteur $h_p = 400 \ \mu\text{m}$ et de diamètre $d_p = 200 \ \text{ou} 400 \ \mu\text{m}$. Nous nous intéressons à des configurations comprenant n = 2, 3, 4 défauts séparés d'une distance p. La figure 2.16 représente les 3 dispositions étudiées. Les substrats obtenus sont rendus non-mouillants par l'application d'un traitement en spray d'Ultra Ever Dry. Nous effectuons des impacts centrés de gouttes d'eau distillée de rayon $R = 1 \ \text{mm}$, 1.3 mm et 1.8 mm générées par des aiguilles calibrées dont nous contrôlons la position avec deux vis micrométriques. La vitesse d'impact est ajustée entre 0.4 et 1.6 m/s en changeant la hauteur dont nous libèrons le liquide. Nous nous plaçons dans les cas (i) ou (ii) en faisant varier p et R indépendamment et nous enregistrons des vues de dessus et de côté avec deux caméras rapides fonctionnant à la cadence de 10000 im/s.

2.3.1 Défauts rapprochés : $p \le 2R$

Nous nous intéressons dans un premier temps au comportement de gouttes tombant sur des défauts séparés d'une distance $p \leq 2R$. Nous réalisons des impacts centrés de sorte que tous les défauts composants le motif soient recouverts d'un film liquide au cours de l'impact. Nous distinguons deux comportements lors de telles expérience et ce quel que soit le nombre de défauts. Si $p \approx 2R$, la forme du liquide durant l'étalement est fortement influencée par la disposition des piliers : la périphérie de la goutte est rectiligne en face des piliers. Les figures 2.17a, b et c illustrent les formes engendrées en montrant des instantanés de l'impact de gouttes de rayon R = 1.3 mm sur des motifs où p = 3 mm. Quand p < 2R, la figure d'impact est moins marquée par la présence sous-jacente des défauts. Des ondulations sont cependant visibles à la périphérie de la goutte (figure 2.17d, R = 1.8mm et p = 3 mm).

L'influence d'une microstructure sur la forme prise par un film liquide en écoulement, d'épaisseur semblable à leur taille, a été étudiée dans le cas des ressauts hydrauliques [65] et des nappes de Savart [66]. Dans ces deux configurations, des formes polygonales rappelant la structure cachée ont été observées. Ici les formes polygonales semblent être gé-



FIGURE 2.17 : **a**, **b**, **c** Images choisies de l'impact de gouttes d'eau (R = 1.3 mm, $V \approx 1 \text{ m/s}$) sur des motifs non-mouillants composés de 2, 3 et 4 piliers respectivement. Les piliers sont espacés d'une distance p = 3 mm. Nous remarquons qu'au cours de son étalement la périphérie du liquide adopte des formes rectilignes surprenantes. **d** Instantané de l'impact d'une goutte de rayon R = 1.8mm sur 4 piliers espacé de p = 3 mm. La structure sous-jacente du motif est moins visible quand p < 2R.

nérées seulement si $p \approx 2R$. Qualitativement, nous remarquons qu'il faut que la périphérie de la goutte soit déviée par les piliers pour obtenir des lignes droites. La perturbation de l'interface n'a lieu que lorsque le liquide commence à s'étaler avant de recouvrir les défauts.

Nous nous intéressons maintenant au temps de rebond obtenu sur des substrats texturés par des motifs où $p \approx 2R$. En effet, dans le cas limite opposé $p \ll 2R$, nous nous rapprochons de l'impact sur une texture ponctuelle. La figure 2.18 montre des vues de dessus et de côté d'une goutte (R = 1.3 mm) tombant sur une surface superhydrophobe ornée de deux piliers ($p = 3 \text{ mm}, h_p = 400 \text{ }\mu\text{m}$ et $d_p = 200 \text{ }\mu\text{m}$) de même mouillage. La figure 2.18a présente un impact à V = 0.75 m/s, l'étalement du liquide est perturbé par les macrotextures : nous observons une périphérie rectiligne orthogonalement à l'axe reliant les piliers et un étalement moindre du liquide dans cette direction. Le film liquide formé est nucléé par les deux défauts. Le démouillage a lieu de manière isotrope autour des singularités (t = 4.0 ms), ce qui entraine la formation de deux globules de part et d'autre de l'axe reliant les défauts (t = 5.8 ms). Ces deux lobes se rétractent puis décollent après $\tau = 10.5 \pm 0.1$ ms, un temps réduit comparé à $\tau_0 = 13.6$ ms le temps de rebond sur une surface sans défauts. Les deux lobes coalescent après le rebond. La figure 2.18b montre une séquence d'images issues de l'impact d'une goutte (R = 1.3 mm) à vitesse plus élevée (V = 1.2 m/s). Après la nucléation du film mince, la séquence d'image est notablement différente. Le liquide n'est pas divisé en 2 mais en 4 lobes de part et d'autres de l'axe liant les piliers. Chacun de ces lobes se rétracte avant de décoller de manière indépendante (t = 6.8 - 7.8 ms). Nous mesurons $\tau = 6.6 \pm 0.3 \text{ ms}$, un temps bien inférieur à τ_0 et au temps mesuré à plus faible V.

Alors que l'impact sur une macrotexture ponctuelle permet le rebond du liquide d'un bloc sous la forme d'un anneau, l'utilisation de deux défauts provoque la fragmentation de la goutte en sous-unités visibles. Les figures d'impact à basse et haute vitesse rappellent les formes observées lors de l'impact sur un fil. Nous mesurons de manière systématique



FIGURE 2.18 : **a** Vues de dessus et de côté de l'impact (R = 1.3 mm et V = 0.75 m/s) sur un motif formé par deux piliers. Le liquide se divise en 2 globules et décolle après 10.6 ms, un temps réduit de 25 % par rapport à τ_0 . **b** Mêmes vues pour une goutte (R = 1.3 mm) ayant une vitesse V = 1.2 m/s. La figure d'impact fait apparaître 4 lobes connectés. Nous mesurons $\tau = 6.6$ ms.

 τ et τ_0 en fonction de V et nous rapportons les résultats dans la figure 2.19. Le temps de contact τ_0 ne dépend pas de V (triangles noirs) et vaut $\tau_0 = 13.6$ ms. En présence des défauts, τ est modifié et adopte un comportement discontinu (points bleus). A faible vitesse d'impact entre 0.3 et 0.8 m/s, τ est constant et réduit de 20% par rapport à τ_0 . Entre 0.8 et 1.4 m/s, τ est réduit d'un facteur typiquement 2 par rapport à τ_0 . Les variations de τ sont qualitativement semblables à celles rapportées lors de l'impact sur une macrotexture élancée. Nous interprétons le comportement de τ à l'aide du modèle de sous-unités. Le liquide est divisé en 2 (V < 0.8 m/s) ou 4 lobes (V > 0.8 m/s); le modèle prédit une réduction du temps de contact d'un facteur $\sqrt{2}$ ou 2 respectivement. Nous représentons ces prédictions figure 2.19 par des lignes pointillées cyan. L'accord est satisfaisant aux hautes vitesses cependant le modèle sous-estime le temps de contact aux faibles vitesses. Cet écart s'explique qualitativement par le caractère connecté des sous-unités observées à faible vitesse d'impact, comme rapporté par [56] lors des impacts sur un fil.

L'impact sur 2 piliers présentant de fortes similarités avec l'impact sur un fil, nous tentons de poursuivre cette analogie et créons un motif en plaçant des piliers aux quatre coins d'un carré. Une séquence d'images de l'impact d'une goutte d'eau distillée (R = 1.3mm et V = 0.8 m/s) sur un matériau non-mouillant orné de 4 piliers formant un carré (p = 3 mm, $h_p = 400$ µm et $d_p = 200$ µm) est présentée à la figure 2.20a. L'étalement



FIGURE 2.19 : Temps de rebond τ_0 (triangles noirs) et τ (points bleus) en fonction de V sur un matériau classique et texturé par deux piliers respectivement. Les lignes pointillées représentent les valeurs τ_0 , $\tau_0/\sqrt{2}$ et $\tau_0/2$.

du liquide est perturbé par la présence des textures. La figure d'impact prend transitoirement la forme d'un carré, puis les 4 défauts percent simultanément le film liquide. Quatre globules sont formés aux sommets du carré liquide (t = 3.6 ms). Ces lobes grossissent au cours de la rétraction, alimentés en liquide par le démouillage du film central. Ils se rétractent puis décollent après $\tau = 6.3 \pm 0.1$ ms, un temps correspondant à 46% du temps de contact sur une surface classique.

Nous faisons varier la vitesse V et nous rapportons les valeurs de τ_0 et τ dans la figure 2.20b. τ_0 (triangles noirs) ne dépend pas de V alors que τ (points bleus) présente un comportement discontinu. Pour V < 0.75 m/s, τ prend des valeurs comparables à τ_0 ; le liquide n'est pas fragmenté. Au-delà de cette vitesse, le temps de contact est réduit et semble prendre une valeur fixée légèrement inférieure à $\tau_0/2$. Dans ce régime la goutte est divisée en 4 sous-unités (figure 2.20a).

Le liquide présentant des sous-unités visibles au cours de l'impact, nous tentons une nouvelle fois d'appliquer le modèle de blob. Celui-ci prédit une réduction du temps de rebond d'un facteur 2 par rapport à τ_0 pour une division en 4 sous-parties. Cette prédiction est légèrement supérieure au temps de contact observé expérimentalement. Nous pouvons rapprocher cette expérience à 4 piliers de l'impact sur un motif en croix formé par deux macrotextures élancées. Dans les deux cas, nous inhibons la division du liquide en deux sous-unités : la courbe $\tau(V)$ ne présente qu'une discontinuité. Ces expériences diffèrent cependant par la valeur de transition entre les deux comportements (0.5 m/s pour la croix formée de fils contre 0.75 m/s ici). Cette discontinuité est fixée par des phénomènes différents : le refus de mouillage le long des textures élancées et la nucléation du film mince dans le cas des piliers.

L'impact sur des substrats ornés de plusieurs macrotextures ponctuelles placées de sorte que $p \approx 2R$ crée un mécanisme de rebond plus proche de celui obtenu pour les



FIGURE 2.20 : **a** Vues de dessus et de côté de l'impact d'une goutte (R = 1.3 mm et V = 0.8 m/s) sur un matériau non-mouillant texturé par 4 piliers de même hydrophobie. La goutte se sépare en 4 globules après la nucléation du film liquide. Nous mesurons $\tau = 6.3$ ms, un temps réduit d'un facteur légèrement supérieur à 2 par rapport à τ_0 . **b** Temps de rebond sur un substrat superhydrophobe usuel (τ_0 , triangles noirs) et texturé par 4 piliers formant un carré (τ , points bleus) en fonction de V. Quand V > 0.75 m/s, τ suit un plateau et est réduit d'un facteur un peu supérieur à 2.

macrotextures élancées que sur une unique singularité. Le liquide est fragmenté et nous identifions visuellement plusieurs sous-unités. La réduction du temps de contact dans les différents régimes de vitesse d'impact est alors prédite par le modèle de blobs. Les seuils en vitesse entre les régimes de réduction du temps de contact sont différents en fonction de la nature des macrotextures. Ils correspondent à des phénomènes différents : un démouillage plus rapide le long des textures dans le cas des fils et la nucléation du film liquide mince pour les singularités.

2.3.2 Défauts éloignés : p > 2R

Nous considérons maintenant des singularités plus éloignées telles que p > 2R. Si la goutte tombe au-dessus d'un pilier, nous observons un rebond en anneau, possiblement perturbé par la présence d'une autre singularité. Au contraire, si la goutte ne tombe pas au-dessus d'un pilier, elle peut alors s'étaler librement jusqu'à entrer en contact avec un (cas des impacts très excentrés vus précédemment) ou plusieurs piliers. Les surfaces que nous étudions présentent 2 ou 4 piliers ($h_p = d_p = 400 \ \mu m$) espacés de p = 4 ou p = 5 mm. Nous réalisons des impacts centrés de sorte que le liquide entre en contact, en même temps, avec toutes les macrotextures composant le motif.

La figure 2.21 montre des vues de dessus et de côté de l'impact d'une goutte d'eau (R = 1.3 mm) sur un substrat texturé par deux piliers espacés de p = 4 mm. Pour V = 0.7 m/s (figure 2.21a), le liquide s'étale de manière isotrope jusqu'à ce que la goutte entre en contact avec les piliers. L'étalement est alors gêné dans la direction définie par l'axe reliant les piliers : la goutte prend une forme rectangulaire (t = 4.4 ms). Ensuite, le liquide se rétracte et décolle après $\tau = 11.4 \text{ ms}$ sous une forme oblongue. A plus haute



FIGURE 2.21 : Vues de dessus et de côté de gouttes (rayon R = 1.3mm) tombant sur des surfaces texturées par deux piliers ($h_p = d_p = 400 \ \mu$ m) espacés de $p = 4 \ mm$. a Pour $V = 0.7 \ m/s$, l'étalement de la goutte est frustré par les piliers, elle prend une forme rectangulaire. Nous mesurons $\tau = 11.4 \ ms$. b A plus grande vitesse ($V = 1.1 \ m/s$), des lobes se forment quand le liquide est dévié par les piliers. La phase de rétraction à lieu principalement selon l'axe reliant les piliers entre eux formant deux bourrelets dont la collision fait décoller le liquide après 7.7 ms, un temps inférieur à τ_0 .

vitesse (V = 1.1 m/s, figure 2.21b), deux lobes se forment lors du contact entre le liquide et les singularités (t = 2.0 ms). Ces lobes sont ensuite animés d'un mouvement de rotation autour de l'axe normal au plan du substrat durant la rétraction du liquide. Cette rétraction s'effectue principalement selon la direction définie par la droite reliant les deux piliers. Les lobes décollent en premier et indépendamment. Ils sont ensuite suivis par liquide présent au centre lors de la collision des bourrelets de démouillage. Nous mesurons un temps de rebond $\tau = 7.7 \text{ ms}$, ce temps est réduit par rapport à $\tau_0 = 13.6 \text{ ms}$, le temps de contact sur une surface sans macrotextures.

Nous mesurons de manière systématique les temps τ_0 et τ en faisant varier V pour des gouttes de rayon R = 1.3 mm. Quand le liquide ne rentre pas en contact avec les textures (V < 0.6 m/s), τ (points bleus) et τ_0 (triangles noirs) sont confondus (figure 2.22). Nous notons $V_c = 0.6$ la vitesse pour laquelle le liquide rentre en contact avec les piliers. Pour $V > V_c$, le temps de contact décroit continument avec la vitesse d'impact jusqu'à l'apparition d'une discontinuité pour V = 0.9 m/s. Cette discontinuité coïncide avec la formation de lobes lors de l'étalement. τ présente un comportement complexe, dépendant de la vitesse d'impact. Ce comportement semble de prime abord présenter des analogies



FIGURE 2.22 : Temps de rebond τ (points bleus) d'une goutte (R = 1.3 mm) impactant une surface ornée de 2 piliers (p = 4 mm) en fonction de V. Pour $V > V_c = 0.6 \text{ m/s}$, τ est réduit par rapport à τ_0 (triangles noirs).

avec celui observé lors de l'impact sur un fil ou deux textures rapprochées : il présente 3 zones. Cependant la première transition entre τ_0 et un temps de rebond réduit s'effectue ici de manière continue et nous n'observons pas de plateaux. Les formes prises pas le liquide lors de son étalement sont difficiles à rationaliser. Nous cherchons alors à rendre la figure d'impact plus facilement interprétable en utilisant un motif symétrique.

Nous étudions le rebond centré d'une goutte (R = 1.3 mm) sur un motif formé par 4 piliers espacés de p = 4 mm. Des vues de côté et de dessus d'un impact à la vitesse V = 1 m/s sont présentées dans la figure 2.23. Le liquide s'étale sans être perturbé jusqu'à toucher les piliers qui le dévient ensuite (t = 2.0 ms). Nous assistons à la formation de quatre lobes possédant un mouvement radial et d'une zone centrale qui prend transitoirement la forme d'un carré (t = 4 ms). Lors de la phase de démouillage, la taille des lobes augmente. Nous remarquons grâce à la vue de côté que le liquide emprisonné au centre des textures se rétracte puis quitte le substrat en dernier, définissant ainsi le temps de contact $\tau = 7.0 \text{ ms}$, un temps réduit d'un facteur proche de 2 par rapport au temps de rebond classique τ_0 .

Nous mesurons la variation de τ en fonction de V. A faible vitesse d'impact (V < 0.7 m/s), points bleus (τ) et triangles noirs (τ_0) coïncident (figure 2.24a) : le liquide n'entre pas en contact avec les piliers au cours de son étalement ou si peu que cela ne permet pas de former des lobes. Nous observons un saut quand $V \simeq 0.7$ m/s, au-delà de cette vitesse τ est fortement réduit par rapport à τ_0 et décroit lorsque V augmente. Ce régime où le temps de contact est réduit correspond au rebond décrit figure 2.23. Nous notons V_c la vitesse seuil entre les deux régimes, très proche de la vitesse nécessaire pour que le rayon maximal du liquide soit égal à p/2.

Au cours de l'impact, le liquide entre les textures s'étale et se rétracte indépendamment des lobes qui sont éjectés. C'est cette fraction de liquide qui fixe le temps de contact τ , nous cherchons donc à estimer son volume ω et à le comparer au volume Ω de la goutte.



FIGURE 2.23 : Séquence d'images (vues de dessus et de côté) de l'impact d'une goutte de rayon 1.2 mm à la vitesse de 1 m/s sur un matériau texturé par 4 piliers espacés de p = 3 mm. Une partie du liquide est piégé entre les textures. Nous mesurons $\tau = 7.0$ ms, un temps notablement plus court que $\tau_0 = 13.6$ ms.

Nous réalisons cette comparaison quand l'étalement est maximal. En supposant que la goutte forme un film d'épaisseur h uniforme, nous obtenons $\omega \sim p^2 h$. Nous comparons ce volume à celui d'une goutte étalée lors d'un impact à la même vitesse en l'absence de textures : $\Omega \sim R_{max}^2 h$. Nous interprétons alors les distances p/2 et R_{max} comme les étalements maximaux obtenus pour des impacts aux vitesses V_c et V respectivement. Nous pouvons alors écrire, à partir de la loi d'échelle pour l'étalement maximal $R_{max}/R_0 \sim We^{1/4}$ [39], $p^2 \sim V_c$ et $R_{max}^2 \sim V$. Nous en déduisons la variation du rapport des volumes $\omega/\Omega \sim V_c/V$ puis du rapport du temps des temps de contact $\tau/\tau_0 \sim 1/\sqrt{V/V_c}$.

Nous représentons dans la figure 2.24b le temps de contact normalisé τ/τ_0 en fonction de la vitesse d'impact V adimensionnée par V_c pour des piliers espacés de 4 ou 5 mm et des



FIGURE 2.24 : **a** Temps de contact d'une goutte (R = 1.3 mm) en fonction de V. τ présente un comportement discontinu. Sous V = 0.7 m/s, il est constant et égal à τ_0 ; au-dessus, il est une fonction décroissante de V et de l'ordre de 50% de τ_0 . **b** Temps de contact adimensionné τ/τ_0 en fonction de la vitesse normalisée V/V_c pour des gouttes de rayon variés et des motifs de différents p. La ligne pointillée représente la loi d'échelle $\tau/\tau_0 \sim 1/\sqrt{V/V_c}$ avec un préfacteur 0.65.

gouttes de rayon 1.0, 1.3 et 1.8 mm. Les données se rassemblent sur une courbe maitresse, la ligne pointillée représente la loi d'échelle $\tau/\tau_0 \sim 1/\sqrt{V/V_c}$ avec un préfacteur 0.65. Nous avons également inclus le temps de contact pour le rebond sur 6 fils superhydrophobes (triangles bleus) qui présente un mécanisme de rebond similaire.

2.4 Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre nous avons décrit un mécanisme de rebond nouveau, en anneau, créé par une modification locale de la géométrie du substrat : une macrotexture ponctuelle. Nous avons associé ce rebond spécial à une réduction du temps de contact d'un facteur de l'ordre de 2 et nous avons prédit la valeur de la réduction du temps de rebond par un raisonnement géométrique sur la figure d'impact. Nous avons également mis en évidence la robustesse de ce mécanisme en le reproduisant avec des macrotextures de géométrie différente et en montrant qu'il est préservé pour des rebonds excentrés. Dans un second temps, nous avons cherché à comprendre comment assembler plusieurs textures ponctuelles pour créer un matériau à la superhydrophobie renforcée. Nous avons testé des configurations modèle et interprété les temps de rebond obtenus géométriquement.

La généralité de notre approche permet de comprendre les temps de rebond réduits observés dans de nombreuses situations. Cependant, une description des détails de l'impact à l'échelle de la sous-unité pourrait nous aider à sonder les limites de notre description.

Chapitre 3

Impact sur substrats non plans

Retour à la table des matières

Sommaire

| 3.1 | Rebond sur un plan incliné | | |
|------------|----------------------------|---|--|
| | 3.1.1 | Temps de contact | |
| | 3.1.2 | Etalement maximal 58 | |
| | 3.1.3 | Décollage | |
| | 3.1.4 | Conclusion et perspectives | |
| 3.2 | Impa | ct sur un cône | |
| | 3.2.1 | Diagramme de phase | |
| | 3.2.2 | Temps de contact | |
| | 3.2.3 | Dynamique à temps court | |
| | 3.2.4 | Etalement maximal | |
| | 3.2.5 | Fragmentation | |
| | 3.2.6 | Conclusion et perspectives | |
| 3.3 | Impa | ct sur une sphère \ldots | |
| | 3.3.1 | Temps caractéristiques | |
| | 3.3.2 | Dynamique initiale | |
| | 3.3.3 | Etalement maximal | |
| | 3.3.4 | Coefficient de restitution | |
| | 3.3.5 | Conclusion et perspectives | |

Au chapitre précédent nous avons étudié les effets d'une modification locale de la géométrie de la surface, à une échelle intermédiaire entre celle des microtextures et celle de la goutte, qui peut causer un changement de la figure d'impact. Nous avons lié cette trasnformation à une réduction du temps de contact. Dans ce chapitre, nous nous proposons d'étudier des modifications de la géométrie de la surface à une échelle comparable à celle de la goutte. La surface perd alors sa planéité globale qui était conservée lors de l'impact sur les macrotextures. Il existe dans la littérature de rares exemples d'impacts sur des surfaces à la fois non planes et non-mouillantes. Liu *et al.* [67] ont réalisé des impacts sur des substrats superhydrophobes de forme cylindrique. On peut se représenter cette expérience comme une extension de l'impact sur une macrotexture élancée superhydrophobe. Ils ont observé que le liquide s'étale moins selon l'axe du cylindre (comme lors de l'impact sur un fil) et mesuré une réduction du temps de contact pour différentes valeurs du rapport entre le rayon de la goutte et celui du cylindre. Nous pouvons, en suivant un raisonnement analogue, réaliser des impacts sur des substrats sphériques par extension avec l'expérience de rebond sur une macrotexture ponctuelle. De tels impacts ont été principalement réalisés dans des situations n'engendrant pas de rebond (un récapitulatif des expériences existantes est présenté dans [68]) sauf pour des impacts en caléfaction qui permettent le rebond à faible vitesse d'impact [69]. Nous cherchons à comprendre comment une modification globale de la géométrie du substrat affecte le mécanisme de rebond que nous avons décrit au chapitre 1. Avant d'étudier l'impact sur des substrats non plans, nous nous intéressons à l'impact sur un plan incliné. Nous nous concentrons ensuite sur les géométries coniques et sphériques par extension de l'impact sur une macrotexture ponctuelle.

3.1 Rebond sur un plan incliné

L'impact oblique d'un liquide sur une surface plane donne lieu à des rebonds dans deux situations distinctes : le liquide peut rebondir (1) sur un film d'air lors d'impacts à petit angle et très faible nombre de Weber sur des surfaces polies (Šikalo *et al.* [70]) et (2) sur des surfaces superhydrophobes inclinées (Antonini *et al.* [71]). C'est à la deuxième situation que nous nous intéressons. Nous considèrons l'impact d'une goutte d'eau distillée (densité $\rho = 1000 \text{ kg/m}^3$ et tension de surface $\gamma = 0.072 \text{ N/m}$) de rayon R = 1 mm formée depuis une aiguille calibrée sur un substrat formant un angle α , varié entre 10° et 70°, avec la verticale. Le substrat est rendu non-mouillant par l'application d'un traitement commercial (Ultra Ever Dry) sous forme de spray. Nous faisons varier la vitesse d'impact V entre 0.4 et 1.5 m/s en changeant la hauteur à laquelle les gouttes sont formées. Vpeut être séparée en deux contributions (figure 3.1a) : une composante parallèle au plan du substrat, que nous appelons V_{\parallel} , et une composante orthogonale au plan du substrat, que nous notons V_{\perp} . Une caméra rapide fonctionnant à la cadence de 5000 im/s permet de visualiser le rebond en vue de côté.

La figure 3.1b présente 3 chronophotographies de l'impact d'une goutte de rayon R = 1mm à la vitesse V = 1 m/s sur des surfaces inclinées de 60°, 30° et 10° par rapport à la verticale (de gauche à droite). Le mécanisme de rebond est similaire dans les trois chronophotographies : le liquide s'étale de façon isotrope dès qu'il entre en contact avec le solide jusqu'à atteindre son étalement maximal R_{max} , puis il se rétracte et décolle après un temps que nous nommons τ . Nous appelons V' la vitesse à laquelle la goutte décolle, cette vitesse est également décomposée en des contributions parallèles et orthogonales au plan du substrat. Tout au long du rebond, le liquide semble glisser le long de la pente crée par le substrat : nous définissons l_{\parallel} , la distance sur laquelle la goutte et le solide sont en contact. Malgré le fait que la vitesse d'impact V soit fixée dans ces trois chronophotographies,



FIGURE 3.1 : **a** Schéma de l'impact d'une goutte de rayon R sur une surface superhydrophobe inclinée d'un angle α par rapport à la verticale. La vitesse d'impact V est décomposée en une contribution orthogonale V_{\perp} et une contribution parallèle V_{\parallel} au plan de l'impact. **b** Chronophotographies de l'impact d'une goutte (rayon R = 1 mm) à V = 1 m/s sur des substrats inclinés de 60°, 30° et 10° par rapport à la verticale (de gauche à droite). Les images superposées sont espacées de 2 ms. Nous nommons l_{\parallel} la distance sur laquelle la goutte et le solide sont en contact. Les déformations du liquide sont réduites quand α diminue (ici V est constant) ce qui souligne l'importance de V_{\perp} pour caractériser les impacts.

l'amplitude des déformation du liquide n'est pas constante. Nous remarquons que les déformations sont de plus en plus prononcées quand α augmente c'est à dire quand V_{\perp} augmente. Nous avons alors l'intuition que les déformations du liquide sont contrôlées par la vitesse normale au plan, V_{\perp} . Un raisonnement analogue nous permet de relier la diminution de l_{\parallel} quand α augmente avec une dépendance en V_{\parallel} . Notre étude revisite les caractéristiques du rebond sur un substrat horizontal en mettant en évidence l'effet de l'angle α et en soulignant les phénomènes nouveaux causés par l'inclinaison.

3.1.1 Temps de contact

Nous mesurons le temps de contact τ en faisant varier à la fois la vitesse d'impact V et l'angle α . La figure 3.2a représente les valeurs de τ en fonction de la vitesse normale au substrat V_{\perp} qui semble être pertinente car elle contrôle les déformations du liquide. Avec ce choix d'abscisse les valeurs du temps de contact se rassemblent sur une courbe maîtresse (ce qui n'est pas le cas si nous utilisons V comme montré en insert). Au dessus de V = 0.2 m/s, τ ne dépend pas de V_{\perp} en accord avec la loi d'échelle inertio-capillaire. Dans ce régime τ a une valeur moyenne de 9.0 ± 0.2 ms, indiquée par la ligne pointillée, très semblable à celle que l'on a mesurée sur un matériau non-mouillant horizontal $\tau_0 = 9.4 \pm 0.4$ ms. Quand V < 0.2 m/s, τ augmente quand V diminue en accord qualitatif avec les mesures et prédictions de [29].

Nous mesurons également l_{\parallel} lors de chaque impact dont nous interprétons la valeur à l'aide des résultats obtenus pour le temps de rebond. Si nous supposons que pendant la durée τ du rebond le liquide glisse sur la surface à la vitesse V_{\parallel} , alors nous obtenons : $l_{\parallel} = V_{\parallel}\tau$. La figure 3.2b permet de vérifier cette prédiction quand nous faisons varier V



FIGURE 3.2 : **a** Temps de contact τ en fonction V_{\perp} lors de l'impact de gouttes d'eau de rayon R = 1 mm sur des substrats inclinés de 10° à 60° par rapport à la verticale. Les données se rassemblent sur une courbe maitresse ce qui n'est pas le cas quand on utilise V en abscisse (voir insert). La ligne pointillée représente la valeur moyenne du temps de contact, $\tau = 9.0 \pm 0.2$ ms, dans le régime où il ne dépend pas de la vitesse. **b** Longueur l_{\parallel} parcourue par la goutte sur le solide en fonction de $V_{\parallel}\tau$ pour les mêmes impacts que en a. La ligne pointillée est de pente 1.

et α en traçant l_{\parallel} en fonction de $V_{\parallel}\tau$. Les données se regroupent sur une droite et sont en bon accord avec la ligne pointillée de pente 1. Cette relation de proportionnalité avait été observée par Antonini *et al.* [71] avec un préfacteur de 0.3 < 1. Une hypothèse pour expliquer ce préfacteur notablement plus faible est l'hystérésis d'angle de contact plus importante sur les substrats utilisés par [71] ($\Delta \theta = 15^{\circ}$ contre 7°).

3.1.2 Etalement maximal

L'observation des chronophotographies met en évidence l'importance de la vitesse normale pour décrire les déformations du liquide. Nous nous attendons donc à ce que le rayon maximal R_{max} des gouttes au cours d'un impact soit déterminé par V_{\perp} . Nous adaptons au cas d'un impact oblique la loi d'échelle $R_{max}/R \propto Re^{-1/5}f(WeRe^{-2/5})$ proposée par Eggers *et al.* [36]. Pour ce faire nous définissons les nombres de Reynolds, Re_{\perp} , et de Weber, We_{\perp} , orthogonaux basés sur la vitesse d'impact normale au substrat. Une approche équivalente a été proposée par [40]. Nous choisissons ici de modifier cette loi pour la rendre adaptée à des impacts à très faible vitesse en considérant non pas le ratio R_{max}/R mais plutôt $(R_{max} - R)/R$ qui traduit l'existence d'un rayon minimal d'étalement, celui R de la goutte . Nous pouvons alors écrire :

$$R_{max}/R - 1 \propto Re_{\perp}^{1/5} f(We_{\perp}Re_{\perp}^{2/5})$$

où f est une fonction d'ajustement. Nous traçons dans la figure $3.3 : (R_{max}/R - 1)Re_{\perp}^{-1/5}$ en fonction du paramètre d'impact $P_{\perp} = We_{\perp}Re_{\perp}^{2/5}$. Les données se rassemblent sur une seule courbe lorsque que l'on fait varier V et α . La ligne pointillée est obtenue en approximant la fonction f sous la forme : $(R_{max}/R - 1)Re_{\perp}^{-1/5} = P_{\perp}^{1/2}/(A + P_{\perp}^{1/2})$ proposée par [40]. A est un paramètre ajustable dont la valeur est ici A = 3.0. Cette valeur est différente de celle rapportée par [40] cependant si nous représentons nos données en fonction du ra-



FIGURE 3.3 : Facteur d'étalement visqueux normal $(R_{max}/R-1)Re_{\perp}^{-1/5}$ en fonction du paramètre d'impact orthogonal $P_{\perp} = We_{\perp}Re_{\perp}^{2/5}$ pour l'impact de gouttes d'eau (R = 1 mm) sur des substrats inclinés d'un angle α par rapport à la verticale. Les données se rassemblent sur une courbe maîtresse obtenue en approximant la fonction f sous la forme : $(R_{max}/R-1)Re_{\perp}^{-1/5} = P_{\perp}^{1/2}/(A+P_{\perp}^{1/2})$ proposée par [40]. A est un paramètre ajustable dont la valeur est ici A = 3.0.

tio R_{max}/R , l'ajustement présenté par Laan *et al.* est satisfaisant sauf pour les nombres d'impacts les plus faibles que nous explorons.

Les données obtenues lors d'impacts sur un plan incliné permettent d'avoir accès à des paramètres d'impacts faibles facilement en réduisant la vitesse normale. Nous étendons ainsi de 2 décades le domaine de P dans lequel la loi d'échelle est validée et nous montrons la nécessité de prendre en compte le rayon initial de la goutte comme minimum d'étalement à travers le quotient $(R_{max} - R)/R$.

3.1.3 Décollage

Enfin nous évoquons le décollage de la goutte. Nous décomposons la vitesse de décollage V' en une contribution normale et une contribution parallèle que nous étudions séparément. Pour les impacts sur des surfaces formant un angle important avec la verticale, ou plus généralement quand V_{\perp} est grand, il est difficile de mesurer V' du fait de la forme allongée prise par le liquide au décollage et de l'éjection de gouttelettes satellites. Nous nous limitons donc à la mesure de V' quand V_{\perp} est petit. V'_{\perp} et V'_{\parallel} ont des comportements différents. Nous avons montré précédemment que la goutte glisse parallèlement à la surface à la vitesse V_{\parallel} tout au long du rebond, ainsi il semble naturel de supposer que la goutte décolle du substrat à une vitesse $V'_{\parallel} = V_{\parallel}$: le mécanisme de rebond crée de la vitesse seulement dans la direction normale à la surface. Nous représentons alors, dans la figure 3.4a, V'_{\parallel} en fonction de V_{\parallel} . Nous remarquons que V'_{\parallel} est toujours au-dessus de la droite pointillée de pente 1 et qualitativement que plus α est petit plus les données semblent s'éloigner de la prédiction. Ce phénomène peut s'expliquer par l'accélération de la goutte sous l'effet de la gravité au cours du rebond, en effet l_{\parallel} atteint des valeurs centimétriques quand α est petit.



FIGURE 3.4 : **a** Vitesse de la goutte parallèlement au substrat au moment de son décollage, V'_{\parallel} , en fonction de V_{\parallel} . La droite en pointillés est de pente 1. **b** Coefficient de restitution dans la direction orthogonale à la surface ε_{\perp} en fonction de V_{\perp} .

Au contraire, la vitesse V'_{\perp} résulte de l'élasticité du rebond. Nous définissons un coefficient de restitution dans la direction normale au substrat ε_{\perp} par analogie avec l'impact sur une surface horizontale. Nous représentons ce coefficient de restitution en fonction de la vitesse normale au plan responsables des déformations du liquide dans la figure 3.4b. Le comportement est qualitativement semblable à celui rapporté par [15] sur des surfaces horizontales : ε_{\perp} croit à très faible vitesse d'impact avant d'atteindre un maximum puis de décroitre. Nous remarquons que le coefficient de restitution maximal est ici supérieur à 1, cette incohérence est causée en partie par des erreurs de projection de V'. Les impacts sur plan incliné ne sont pas un bon moyen de mesurer le coefficient de restitution.

3.1.4 Conclusion et perspectives

L'étude de l'impact sur un plan incliné ne nous permet pas de mettre en évidence un nouveau mécanisme de rebond. Nous avons retrouvé les propriétés des impacts sur les surfaces non-mouillantes en mettant en évidence que les effets liés aux déformations du liquide sont contrôlés par la vitesse normale au substrat. Utiliser des surfaces formant un petit angle avec la verticale nous permet d'accéder facilement à des vitesses normales faibles. Nous pouvons alors nous affranchir des contraintes habituellement associées aux impacts à faible vitesse telles que les oscillations de la goutte avant le contact et les vitesses d'impact peu reproductibles.

3.2 Impact sur un cône

Nous étudions maintenant l'impact d'une goutte d'eau distillée ($\rho = 1000 \text{ kg/m}^3$ et $\gamma = 72 \text{ mN/m}$) sur une surface conique caractérisée par son demi-angle au sommet α (figure 3.5). Les substrats sont des cônes en laiton dont l'angle α varie entre 30° et 75°. Ces cônes sont rendus non-mouillants par application d'un revêtement de Glaco (Soft 99). Une fois le solvant (isopropanol) évaporé, le cône est recouvert de nanobilles hydrophobes qui lui confèrent son caractère superhydrophobe. Les gouttes de rayon R = 1.0, 1.3 ou 1.8 mm sont formées à l'aide d'aiguilles calibrées dont nous ajustons la hauteur pour faire varier la vitesse d'impact V entre 0.2 et 1.4 m/s. Nous nous assurons d'obtenir des impacts centrés en ajustant la position de l'aiguille à l'aide de 2 vis micrométriques. Des vues de côté et parfois de dessus sont enregistrées à l'aide de une ou deux caméras rapides fonctionnant à une cadence d'acquisition de 10000 images par seconde.



FIGURE 3.5 : Une goutte d'eau de rayon R (varié entre 1.0 et 1.8 mm) impacte à une vitesse V (entre 0.2 et 1.4 m/s) un cône superhydrophobe de demi-angle au sommet α . Nous utilisons des substrats dont l'angle varie entre 30° et 75°.

3.2.1 Diagramme de phase

Dans un premier temps nous nous attachons à répertorier les issues possibles d'un impact sur nos substrats. Nous explorons l'espace des phases en faisant varier α et le nombre de Weber à travers R et V. Nous distinguons trois familles de comportements possibles pour un impact. Ces trois comportements ont pu être mis en évidence pour tous les α testés dans une gamme de nombre de We qui dépend de l'angle du cône.

Nous montrons dans la figure 3.6 une séquence d'images de l'impact d'une goutte (R = 1.3 mm) sur un cône $(\alpha = 50^{\circ})$ à la vitesse V = 0.23 m/s. Le liquide s'étale de manière isotrope jusqu'à prendre une forme aplatie, empalée sur la pointe du cône (t = 7.7 ms). Ensuite le liquide démouille le long de la surface du cône puis décolle. Les étapes successives de ce rebond sont les mêmes que lors de l'impact sur un substrat plan. Cependant, le mouvement du liquide possède une composante verticale au cours de l'étalement et de la rétraction. Nous mesurons un temps de rebond de 18.3 ms.



FIGURE 3.6 : Vue de côté de l'impact d'une goutte (R = 1.3 mm) sur un cône superhydrophobe ($\alpha = 50^{\circ}$) à la vitesse V = 0.23 m/s. Nous mesurons un temps de rebond de 18.3 ms.

La figure 3.7 présente un impact appartenant à la seconde famille observée. Une goutte (R = 1.3 mm) tombe sur un cône $(\alpha = 30^{\circ})$ à V = 0.35 m/s. Le liquide s'étale de manière isotrope le long des parois (t = 3.8 ms) puis la goutte est transpercée par le cône. Elle adopte alors la forme d'un tore tout en restant en contact avec les parois du cône (t = 12.5 ms). Le liquide démouille ensuite le solide, d'abord sous la forme d'un anneau puis en retrouvant une forme plus sphérique en atteignant la pointe (t = 20.9 ms). Enfin le liquide décolle après 26.6 ms, un temps doublé par rapport au temps de contact $\tau_0 = 14.15 \pm 0.65$ ms sur une surface plane de même hydrophobie.



FIGURE 3.7 : Vue de côté de l'impact d'une goutte (R = 1.3 mm) sur un cône superhydrophobe ($\alpha = 30^{\circ}$) à la vitesse V = 0.35 m/s. Nous mesurons un temps de rebond de 26.6 ms. La goutte est transpercée par le cône et prend transitoirement la forme d'un tore.

Le troisième comportement observé est mis en évidence dans la figure 3.8. Nous exhibons trois séquences d'images correspondant à l'impact d'une goutte (R = 1.3 mm) à la vitesse $V = 1.15 \pm 0.02 \text{ m/s}$ sur des cônes de demi-angle au sommet 40° (figure 3.8a), 50° (figure 3.8b) et 60° (figure 3.8c). Dans ces 3 situations, le liquide s'étale de manière isotrope le long du cône et un bourrelet se forme à la périphérie de la goutte. Ensuite le film mince formé par le liquide est nucléé au niveau de la pointe du cône (t = 3.3 ms, figure 3.8c) ce qui entraîne un démouillage le long de ses parois. La géométrie conique nous permet de visualiser de côté le bourrelet caractéristique du démouillage. Le film liquide qui se rétracte depuis la pointe entre en collision avec le bourrelet présent à la périphérie de la goutte qui entraîne le décollage du liquide. Le mécanisme de formation et de décollage du tore liquide est semblable au mécanisme de rebond sur une texture ponctuelle discuté au chapitre 2. Nous mesurons le temps de contact associé aux deux dernières situations : $\tau = 6.5 \text{ ms}$



FIGURE 3.8 : Vues de côté de l'impact d'une goutte de rayon R = 1.3 mm à une vitesse $V = 1.15 \pm 0.02$ m/s. Le liquide quitte la surface sous la forme d'un anneau qui se fragmente sous l'effet de l'instabilité de Rayleigh-Plateau. **a** Quand $\alpha = 40^{\circ}$, le tore a un mouvement vertical descendant. **b** Pour $\alpha = 50^{\circ}$, l'anneau décolle après $\tau = 6.5$ ms et a un mouvement horizontal. **c** Quand $\alpha = 60^{\circ}$, le tore quitte le substrat après 6.7 ms. Nous observons un véritable rebond : le liquide repart vers le haut.

quand $\alpha = 50^{\circ}$ et $\tau = 6.7$ ms quand $\alpha = 60^{\circ}$ (pour $\alpha = 40^{\circ}$, les vues de côté ne permettent pas de déterminer τ). Dans les deux cas le temps de contact est réduit d'un facteur proche de 2 par rapport à l'impact sur une surface non-mouillante plane. Le comportement des tores après leur décollage est notablement différent en fonction du demi-angle au sommet. Pour $\alpha = 40^{\circ}$ (figure 3.8a), l'anneau formé reste proche des parois du cône et le liquide possède un mouvement vertical descendant alors que pour $\alpha = 60^{\circ}$ (figure 3.8c) le tore se dirige vers le haut après avoir quitté le substrat : nous observons un véritable rebond. Dans le cas intermédiaire ($\alpha = 50^{\circ}$, figure 3.8c), le tore ne possède pas de mouvement vertical. Les anneaux liquides ainsi formés se fragmentent ensuite en de nombreuses gouttelettes sous l'influence de l'instabilité de Rayleigh-Plateau. Nous remarquons que le diamètre des tores au moment de leur rupture est différent dans les 3 situations. Quand $\alpha = 40^{\circ}$ ou 50°, le diamètre des tores augmente jusqu'à leur fragmentation sous l'effet de la collision et/ou du contact avec les parois du cône (figures 3.8a et 3.8b). Pour $\alpha = 60^{\circ}$, le tore s'agrandit sous l'effet de la collision des bourrelets puis rétrécit sous l'effet de la tension de surface (figure 3.8c).



FIGURE 3.9 : Domaines d'existence des 3 familles de comportement observées lors de l'impact sur un cône non-mouillant en fonction du demi-angle au sommet α et du nombre de Weber We. Les symboles représentent le rayon des gouttes : $\blacktriangle R = 1.0 \text{ mm}$, $\bullet R = 1.3 \text{ mm}$ et $\blacksquare R = 1.8 \text{ mm}$. Le régime représenté par un fond bleu correspond au rebond d'une goutte sans que la pointe du cône ne perce la goutte. La zone ayant un fond blanc rassemble les impacts ou le liquide prend transitoirement la forme d'un tore au contact du solide avant de rebondir sous une forme sphérique. Le phénomène de rebond en anneau est matérialisé par la zone à fond rouge. La couleur des symboles représente, dans ce régime, la direction du mouvement de l'anneau : vers le bas (symboles violets), horizontal (symboles roses) et vers le haut (symboles rouges).

La figure 3.9 représente les domaines d'existence des trois familles de comportement en fonction de α et du nombre de We. Pour tous les angles explorés, il existe une gamme de nombre de Weber dans laquelle nous observons chacun des trois comportements. Pour la gamme de We la plus faible (zone bleue), nous retrouvons le premier régime décrit. La transition avec le second comportement (zone blanche) se fait lorsque la goutte s'étale suffisamment pour être transpercée par la pointe du cône. Le nombre de Weber associé à cette transition augmente avec l'angle au sommet du cône : pour $\alpha = 30^{\circ}$ elle se situe à un nombre de We inférieur à 1 alors que quand $\alpha = 75^{\circ}$ elle à lieu pour $We \approx 10$. Une fois le film liquide rompu, la goutte peut décoller, soit sous une forme sphérique (zone blanche,) soit sous la forme d'un anneau (zone rouge). La transition entre ces deux régimes est liée à la collision entre les bourrelets périphériques et de démouillage. Le mouvement normal à la plaque engendré par cette collision doit être suffisant pour assurer le décollage. Une nouvelle fois on remarque que le nombre de Weber associé à cette transition augmente avec α . Pour le plus petit angle étudié ($\alpha = 30^{\circ}$) cette transition se produit quand $We \approx 5$ alors que pour $\alpha = 75^{\circ}$ le liquide décolle sous la forme d'un anneau quand $We \approx 30$.

Le régime de formation des tores se subdivise en trois comportements distincts : (i) pour $\alpha = 30^{\circ}$ et 40° (symboles violets) le tore possède un mouvement vers le bas, (ii) quand $\alpha = 45^{\circ}$ et 50° (symboles roses) l'anneau a un mouvement uniquement horizontal et (iii) pour $\alpha = 60^{\circ}$ et 75° (symboles rouges) le liquide rebondit vers le haut. Dans chacun de ces cas le mécanisme de création du tore est le même : le liquide qui démouille le long de la paroi du cône entre en collision avec le bourrelet situé à la périphérie de la goutte. Ce choc crée un mouvement normal à la paroi qui entraine le décollage du liquide. Le mouvement du tore après son décollage résulte à la fois de ce mouvement normal à la paroi et de la résultante de la différence de quantité de mouvement entre les deux bourrelets. Pour $\alpha \approx 45^{\circ}$, le mouvement normal et la quantité de mouvement dominante s'associent de manière remarquable pour créer un mouvement uniquement radial. L'asymétrie des collisions est observable sur les vidéos prises de côté : la section du tore s'ovalise et semble être animée d'un mouvement de rotation qui fait écho à l'oblicité des sections du tore liquide remarquée dans les simulations de l'impact d'une goutte sur une singularité (voir chapitre 2).

3.2.2 Temps de contact

Nous caractérisons les impacts dans le temps en mesurant le temps de contact τ en fonction de la vitesse d'impact V quand $\alpha \geq 45^{\circ}$. Pour des angles inférieurs la notion de temps de contact n'a que peu de sens dans le régime de formation des anneaux : le liquide ne quitte la surface que brièvement avant de rentrer en contact à nouveau avec le substrat. La notion de rebond est liée à un changement de direction du liquide, ce qui n'est pas le cas pour les petits angles où le liquide continue son mouvement vers le bas. Il est de plus difficile de déterminer le temps de contact lors de l'impact sur un cône à l'aide de vues de côté ou de dessus et ce d'autant plus que le liquide reste proche du solide. La figure 3.10a présente le temps de contact de gouttes d'eau (R = 1.3 mm) en fonction de V pour des demi-angles au sommet variés entre 45° et 75°. Si α est fixé, nous pouvons séparer les variations de τ en deux régimes discontinus; nous appelons V_c la vitesse à laquelle apparait la discontinuité. Pour $V < V_c$, nous observons $\tau \ge \tau_0$. Pour $V > V_c$, le temps de contact est brusquement réduit. Dans ce second régime τ est une fonction faiblement décroissante de V et le liquide décolle toujours sous la forme d'un anneau. Les variations du temps de rebond reflètent la transition entre le décollage du liquide sous la forme d'une sphère $(V < V_c)$ ou d'un tore $(V > V_c)$ alors que le percement ou non de la goutte par la pointe du cône ne semble pas avoir d'effet notable sur le temps de contact. Lorsque α augmente, la vitesse V_c de transition entre les deux régimes augmente également comme observé sur le diagramme de phase (figure 3.11, transition entre les zones blanches et rouges). Les courbes $\tau(V)$ semblent translatées vers la droite. Plus le substrat est proche d'un plan, plus le temps de contact pour $V < V_c$ est proche de τ_0 (notamment pour $\alpha = 75^{\circ}$, nous avons $\tau \simeq \tau_0$). Nos données dans ce régime sont très bruitées, ce que nous expliquons qualitativement par la difficulté de réaliser des impacts centrés.

Nous mesurons également le temps de contact sur les cônes d'angle 50° et 60° en faisant varier V et R. La figure 3.10b présente le temps de contact normalisé τ/τ_0 en fonction de la vitesse d'impact V adimensionnée par la vitesse critique V_c . Les données se rassemblent sur une unique courbe ce qui est une indication du fait que le rebond conserve un caractère inertio-capillaire malgré la faible dépendance en vitesse d'impact observée. Le temps de contact est réduit par un facteur de l'ordre de 2, soit une réduction très similaire à celle observée lors du rebond en anneau sur une macrotexture ponctuelle.



FIGURE 3.10 : **a** Temps de contact τ en fonction de V pour l'impact de gouttes (R = 1.3mm) sur des cônes de demi-angle au sommet varié entre 45° et 50°. La ligne pointillée représente le temps de contact τ_0 sur un matériau plan de même hydrophobie. τ présente un comportement discontinu et est brusquement réduit au-delà d'une vitesse critique, V_c , qui augmente avec α . La réduction du temps de contact correspond au rebond sous la forme d'un anneau. **b** Temps de contact adimensionné τ/τ_0 en fonction de V normalisée par V_c . Les données se rassemblent sur une courbe unique, une indication du caractère inertio-capillaire du rebond. Les symboles représentent le rayon des gouttes : $\blacktriangle R = 1.0$ mm, $\bullet R = 1.3$ mm et $\blacksquare R = 1.8$ mm.

Bien que nous observions des rebonds sous la forme d'un anneau sur les cônes, en un temps comparable à celui mesuré sur une texture ponctuelle, les détails de l'impact sont différents. Ici, le démouillage du liquide peut commencer bien avant l'étalement maximal. L'instant auquel se produit la nucléation est également plus difficile à analyser, la pointe étant une singularité et non plus un objet ponctuel. Comparer quantitativement les temps de contact sur les cônes et les macrotextures ponctuelles demanderait de modéliser les détails de la dynamique de ces deux rebond. Un modèle global, comme le modèle de blob, ne nous permet pas de prédire la variation de τ avec V.

3.2.3 Dynamique à temps court

Nous nous intéressons à la dynamique initiale lors de l'impact sur un cône. Comme lors de l'impact sur un substrat plan, nous prédisons le rayon de contact initial par un raisonnement géométrique. A un instant t, très proche du contact initial, le liquide n'est affecté par le solide que sur une distance $\delta = Vt$. Nous représentons cette situation dans la figure 3.11a. A temps court, la géométrie de la goutte est conservée et le volume perdu $\omega = \pi/3s^3 \sin(\alpha)^2 \cos(\alpha)$ est négligeable. Nous appliquons le théorème d'Al-Kashi dans le triangle formé par les lignes pointillées. Nous obtenons une équation du second degré pour $s: s^2 + 2(R - \delta) \cos(\alpha) - 2R\delta = 0$. Cette équation a pour solutions : $s = 1/2(2(R - \delta) \cos(\alpha)(\pm \sqrt{1 + 2\delta/(R \cos(\alpha)^2)} - 1))$. Au premier ordre ($\delta \ll R$), nous trouvons une seule solution positive de s :

$$s \simeq \frac{\delta}{\cos(\alpha)} \simeq \frac{Vt}{\cos(\alpha)}.$$



FIGURE 3.11 : a Schéma d'une goutte de rayon R à un instant t très proche du contact initial avec un cône de demi-angle au sommet α . Le liquide a parcouru une distance $\delta = Vt$ après le contact et s'est étalé sur une distance s. Nous prédisons par un raisonnement géométrique que $s \approx Vt/\cos(\alpha)$ quand $t \ll R/V\tan(\alpha)^{-2/3}$. b Etalement du liquide s divisé par $V/\cos(\alpha)$ en fonction de t. Nous faisons varier la vitesse d'impact entre 0.8 et 1.3 m/s, le rayon des gouttes $(R = 1.0 \text{ mm } \blacktriangle, R = 1.3 \text{ mm } \bullet \text{ et } R = 1.8 \text{ mm } \blacklozenge)$ et l'angle α . La ligne pointillée représente la prédiction géométrique valable pour l'étalement initial soit $t \ll R/V \tan(\alpha)^{-2/3}$.

Cette approximation est valide quand $\delta \ll R$ mais aussi quand $\omega \ll R^3$. Cette dernière condition peut se réécrire sous la forme $t \ll R/V \tan(\alpha)^{-2/3}$.

Nous vérifions cette prédiction en traçant dans la figure 3.11b $s \cos(\alpha)/V$ en fonction de t en échelle logarithmique en faisant varier à la fois α , R et V. Les données se regroupent autour la droite pointillée de pente 1 à temps court en bon accord avec notre prédiction. Nous attribuons notamment les variations à temps très court ($\approx 0.1 \text{ ms}$) à la difficulté de déterminer l'instant initial. Plus α prend des valeurs élevées, plus la durée de validité de la dynamique initiale est faible ce qui est en accord qualitatif avec la condition $t \ll R/V \tan(\alpha)^{-2/3}$.

La dynamique initiale lors de l'impact sur un cône est très différente de celle observée sur un plan : (i) le rayon de contact évolue comme t et non plus comme $t^{1/2}$ (ii) le rayon de contact ne dépend pas de R.

3.2.4 Etalement maximal

Nous étudions aussi l'étalement maximal atteint par le liquide sur le cône. Nous considérons que la notion d'étalement maximal existe si l'on peut définir une abscisse curviligne s_{max} que la périphérie du liquide n'excède pas tout au long de l'impact. Nous mesurons l'étalement maximal s_{max} quand $\alpha \ge 45^{\circ}$ c'est à dire quand s_{max} existe pour tout Vdans la gamme de vitesses étudiée. La figure 3.12a présente l'étalement maximal normalisé s_{max}/R en fonction du nombre de Weber pour des angles au sommet variés entre 45° et 75°. Cette représentation permet de rassembler les données correspondant à des impacts de gouttes de rayons différents (symboles) mais pas sur des cônes d'angle différents (couleur). s_{max} diminue quand α augmente, plus le substrat se rapproche d'un plan moins



FIGURE 3.12 : a Etalement maximal normalisé s_{max}/R en fonction du nombre de We sur des cônes de demi-angle au sommet varié entre 45° et 75°. Les données semblent suivre une loi de puissance intermédiaire entre les lois d'exposant 0.25 ou 0.5 usuelles matérialisées par les lignes pointillées. b Rayon maximal d'étalement normalisé $s_{max} \sin(\alpha)/R$ projeté sur l'axe horizontal en fonction du nombre de We. Les données se rassemblent sur une seule droite de pente 0.37 ± 0.02 représentée par la ligne pointillée. Les symboles représentent le rayon des gouttes : $R = 1.0 \text{ mm} \blacktriangle$, $R = 1.3 \text{ mm} \bullet$ et $R = 1.8 \text{ mm} \blacklozenge$.

la goutte s'étale. Ce comportement est opposé à celui observé lors de l'impact sur un plan incliné. L'étalement n'est pas uniquement le résultat du mouvement orthogonal au plan mais également du mouvement parallèle. Le liquide ne glisse pas parallèlement à la paroi, il est redirigé par la pointe du cône mais de façon moins brutale que lors de l'impact sur un plan horizontal. Si nous reprenons l'argument de Clanet et al. [39], une redirection moins brutale, soit une décélération plus faible, entrainerait un étalement moins prononcé. Cependant la géométrie du substrat permet au liquide de s'étaler sans être redirigé, en continuant sa chute. Les échanges entre énergie cinétique initiale et énergie de surface sont également modifiés par la géométrie. Le liquide peut se rétracter depuis la pointe du cône avant son étalement maximal et ainsi gagner de l'énergie de surface alors même qu'il s'étale. L'interaction entre ces deux mécanismes d'étalement nous permet d'observer dans la figure 3.12a une loi de puissance originale donc l'exposant est intermédiaire entre 1/4 (l'exposant dérivé par une approche de type force) et 1/2 (l'exposant tiré de la conservation de l'énergie). Les variations correspondant à ces deux lois de puissance sont indiquées par les lignes pointillées. Une façon originale de rassembler ces expériences est de considérer le rayon maximal d'étalement défini comme $s_{max} \sin(\alpha)$ qui correspond à la projection horizontale de s_{max} . Les valeurs mesurées sur les différents cônes se rassemblent sur une droite maîtresse (figure 3.12b) qui correspond à une loi de puissance d'exposant $0.37\pm0.02.$

3.2.5 Fragmentation

L'aspect le plus fascinant des impacts sur les cônes est certainement la fragmentation des tores liquides après leur décollage. Il est rare d'observer des anneaux liquides du fait de leur nature éphémère [72, 73, 74]. Deux phénomènes contribuent à rendre ces objets instables : (i) Le tore n'étant pas une surface minimale, le liquide cherche à adopter une



FIGURE 3.13 : Vue de dessus de l'impact d'une goutte (R = 1.3 mm, V = 1.3 m/s) sur un cône non-mouillant de demi-angle au sommet $\alpha = 50^{\circ}$. Le liquide décolle sous la forme d'un tore qui s'agrandit et se fragmente par instabilité de Rayleigh-Plateau. Au cours de l'évolution du tore, le liquide reste dans le plan focal ce qui indique un mouvement uniquement radial. Les lignes rouges pointillées soulignent la périphérie de la goutte.

forme sphérique pour minimiser son énergie de surface et (ii) l'anneau est un filament de liquide qui peut se fragmenter par un mécanisme de type Rayleigh-Plateau. Ici, l'inertie liée à l'impact nous permet d'obtenir une dynamique différente. La figure 3.13 montre une vue de dessus de l'impact d'une goutte de rayon R = 1.3 mm à V = 1.3 m/s sur un cône d'angle au sommet $\alpha = 50^{\circ}$. L'utilisation d'un cône avec un angle de l'ordre de 45° donne au liquide un mouvement uniquement radial ce qui permet : (i) de visualiser les mouvements du liquide car il reste dans le plan focal de la caméra (ii) d'observer une dynamique originale de croissance et de fragmentation du tore (t = 5 ms jusqu'à t = 14.8 ms). Ce caractère éphémère, une dizaine de millisecondes s'écoulent de la formation du tore à sa fragmentation, rend l'étude de la fragmentation difficile au même titre que la difficulté d'obtenir un tore dans le plan focal de la caméra.

3.2.6 Conclusion et perspectives

Nous avons mis en évidence les issues possibles de l'impact d'une goutte d'eau sur un cône superhydrophobe en fonction de son angle au sommet, du rayon et de la vitesse des gouttes. Nous avons décrit la dynamique initiale du contact qui est fortement modifiée par rapport à l'impact sur un substrat plan. Nous avons également observé le rebond du liquide sous la forme d'un anneau, comme lors de l'impact sur les textures ponctuelles dont cette expérience est inspirée.

Parmi les phénomènes observés, la fragmentation d'anneaux liquides ayant une dynamique radiale nous semble particulièrement prometteuse. Nous proposons en annexe A une nouvelle expérience, basée sur l'article de Pairam *et al.* [72], ayant pour but l'étude de la fragmentation de tores en expansion.

3.3 Impact sur une sphère

Nous considèrons maintenant l'impact d'une goutte d'eau distillée (densité $\rho = 1000$ kg/m³ et tension de surface $\gamma = 72$ mN/m) sur une sphère métallique de rayon R' que nous faisons varier entre 1 et 4 mm (figure 3.14a). Nous rendons les sphères superhydrophobes par application d'un revêtement de Glaco (Soft 99). Après évaporation du solvant, le solide est recouvert nanobilles hydrophobes qui lui confèrent la rugosité et la chimie hydrophobe nécessaires à l'obtention de la superhydrophobie. Nous choisissons d'utiliser un revêtement de Glaco plutôt que d'Ultra Ever Dry car ce dernier présente parfois des rugosités de grande taille, formées d'agrégats de nanobilles, qui affectent l'issue des impacts. Pour pouvoir manipuler les billes sans détériorer leur fragile revêtement, nous les collons à un tube capillaire. Ce dispositif permet à la fois de fixer les billes lors de l'impact et de ne pas perturber l'étalement du liquide sur une grande partie de la surface. Nous formons des gouttes de rayon R (R = 1.0...1.8 mm) à partir d'aiguilles calibrées dont nous ajustons la hauteur pour faire varier la vitesse d'impact V entre 0.2 et 1.4 m/s. La vitesse d'impact maximale est limitée l'un ou l'autre des facteurs suivants : (1) l'apparition du phénomène de splash et (2) le contact du liquide avec le tube capillaire servant à manipuler les billes. Nous nous efforçons de réaliser des impacts centrés en ajustant la position de l'aiguille dans le plan horizontal à l'aide de deux vis micrométriques. Nous enregistrons des vues de côté de chaque impact à l'aide d'un caméra rapide fonctionnant à 10000 im/s.



FIGURE 3.14 : **a** Une goutte d'eau de rayon R (R = 1.0...1.8 mm) impacte à la vitesse V une sphère non-mouillante de rayon R' varié entre 1 et 4 mm. Nous définissons s, le rayon de contact entre la goutte et la sphère. **b** Séquence d'images de l'impact d'une goutte d'eau (R = 1.3 mm) sur une sphère (R' = 1.5 mm) à la vitesse V = 0.74 m/s. Le liquide s'étale en épousant la surface du solide et ce même après avoir dépassé l'équateur (t = 7.6 ms). Nous mesurons le temps de contact τ , ici égal à 17.8 ms. Ce temps est 30% supérieur à celui mesuré sur un substrat plan de même hydrophobie.

La figure 3.14b montre l'impact d'une goutte (R = 1.3 mm) sur une sphère de rayon R' = 1.5 mm à la vitesse V = 0.74 m/s. Le liquide s'étale de manière isotrope en épousant la courbure du substrat et ce même après avoir dépassé l'équateur (t = 7.6 ms). Durant la phase d'étalement le liquide possède un mouvement à la fois radial et vertical. Comme lors



FIGURE 3.15 : Variation du rayon de contact s(t) au cours de l'impact d'une goutte (R = 1.3 mm, V = 0.74 m/s) sur un substrat sphérique de rayon R' = 1.5 mm. La goutte s'étale le long de la sphère jusqu'à atteindre son abscisse curviligne maximale s_{max} à un temps τ_s . Le liquide se rétracte ensuite parallèlement au substrat jusqu'à l'instant $t = \tau_j$ puis décolle sous une forme allongée.

de l'impact sur une surface plane, un bourrelet est créé à la périphérie de la goutte (t = 2.2 ms). La forme de la goutte étalée se modifie nettement après avoir atteint l'équateur. A ce moment la délimitation avec entre le bourrelet et le centre de la goutte devient plus floue (t = 7.6 ms). Après avoir atteint son empreinte maximale s_{max} , le liquide se rétracte parallèlement à la surface avant de décoller sous une forme allongée. Le mouvement du centre de masse du liquide possède une composante verticale tout au long du rebond. Ici le temps de contact est $\tau = 17.8$ ms, soit un temps supérieur de 30% à celui observé sur un substrat plan de même hydrophobie, τ_0 .

Nous mesurons au cours de l'impact l'abscisse curviligne du contact entre la goutte et le solide s(t) dont nous rapportons la variation à la figure 3.15 pour l'impact présenté à la figure 3.14b. La goutte s'étale le long de la sphère jusqu'à atteindre son abscisse curviligne maximale s_{max} à un temps τ_s . Le liquide se rétracte ensuite parallèlement au substrat jusqu'à l'instant $t = \tau_j$ puis décolle sous une forme allongée. Les durées relatives des phases d'étalement, de rétraction et de décollage sont notablement différentes de ce que nous avons observé sur un substrat plan. Pour l'impact présenté, l'étalement dure 7.6 ms soit 43% du temps de contact ou 53% de τ_0 : une durée supérieure à ce que l'on observe sur un substrat plan. La durée de la rétraction, ici 5.4 ms est également légèrement supérieure à celle mesurée sur un plan et inférieure à la durée de l'étalement. Le changement le plus remarquable est la réduction de la durée du décollage : ici cette phase représente 25% du temps de contact alors qu'elle est responsable de la moitié du temps de rebond sur un plan.

3.3.1 Temps caractéristiques

Nous caractérisons temporellement les impacts sur les sphères en mesurant de manière systématique le temps de contact ainsi que les temps intermédiaires du rebond en fonction de la vitesse d'impact pour différentes tailles de goutte et de substrat.
Temps de contact

La figure 3.16a présente les valeurs du temps de rebond τ en fonction de la vitesse d'impact V pour des gouttes de rayon R = 1.3 mm et des substrats de rayon 1.0, 1.5, 2.5 et 4.0 mm. Le comportement de τ dépend fortement du rayon R' de la sphère. Pour les deux sphères de plus grand rayon, τ est similaire à τ_0 , le temps de rebond sur un substrat plan représenté par la ligne noire pointillée. Pour les deux sphères de rayon comparable à celui de la goutte (R' = 1.0 et 1.5 mm), le temps de contact dépend fortement de la vitesse d'impact. Au-delà d'une vitesse critique qui semble augmenter avec le rayon des sphères, τ croit avec V. Cette vitesse critique est proche de la vitesse nécessaire pour que le liquide franchisse l'équateur de la sphère que nous avons représenté par les lignes pointillées verticales. Nous observons des temps de contact jusqu'à 55% plus élevés que sur des surfaces planes de même mouillage. Pour des vitesses plus faibles, le temps de contact est proche de τ_0 . Nous observons une augmentation du temps de rebond pour des vitesses inférieures à 0.3 m/s; un phénomène mesuré et expliqué par Chevy *et al.* [29] sur les substrats plans.

Nous faisons également varier le rayon des gouttes impactantes. Nous présentons figure 3.16b les variations du temps de contact adimensionné τ/τ_0 en fonction de la vitesse d'impact V. Pour tous les rayons de goutte testés (symboles), τ prend des valeurs similaires à τ_0 quand le liquide ne dépasse pas l'équateur de la sphère. Ce résultat souligne la préservation de l'échelle de temps inertio-capillaire du rebond lors de l'impact sur une surface courbe. L'augmentation du temps de contact avec V est d'autant plus rapide que le rapport R/R' est grand.



FIGURE 3.16 : **a** Temps de rebond τ mesuré en fonction de la vitesse V pour l'impact de gouttes d'eau (R = 1.3 mm) sur des sphères de rayon R' varié entre 1.0 et 4.0 mm. Quand le liquide dépasse l'équateur τ augmente et peut atteindre des valeurs supérieures de 55% à τ_0 . Quand le liquide ne dépasse pas l'équateur, τ est similaire à τ_0 représenté par la ligne noire pointillée. **b** Temps de contact τ normalisé par τ_0 en fonction de V lors de l'impact de gouttes de différentes tailles (symboles : $R = 1.0 \text{ mm} \Box$, $R = 1.3 \text{ mm} \circ$ et $R = 1.8 \text{ mm} \bigtriangleup$) sur des sphères de différents rayons (couleurs).

Temps d'étalement et de formation du jet

Pour mieux comprendre le déroulement d'un rebond, nous caractérisons dans le temps les étapes intermédiaires d'étalement, de rétraction et de décollage à travers la mesure des temps d'étalement τ_s et de formation du jet τ_j en fonction de la vitesse d'impact. Nous avons remarqué que la courbe s(t) (figure 3.15) est notablement différente de celle obtenue sur un substrat plan de même hydrophobie (voir chapitre 1) : la variations de s semble plus symétrique. Ce constat est confirmé par la mesure du temps d'étalement τ_s lors de l'impact de gouttes de rayon R = 1.3 mm sur des sphères dont nous faisons varier le rayon R' (figure 3.17a). τ_s est toujours supérieur à sa valeur sur un substrat plan matérialisée par la ligne noire pointillée. Si l'on exclut le cas extrême d'une goutte plus grosse que son substrat (R' = 1 mm, points verts), τ_s semble relativement constant avec V et n'est pas drastiquement affecté par le passage de l'équateur (points bleus). Plus le rayon du substrat croît, plus le temps d'étalement diminue et tend vers sa valeur sur un plan, $\tau_s = \tau_0/4$.

La figure 3.17b montre les variations de τ_j avec V pour des gouttes (R = 1.3 mm) rebondissant sur des sphères de rayon R'. Les mesures sont moins complètes que pour le temps d'étalement car à faible vitesse d'impact nous ne constatons pas la formation d'un jet ce qui ne nous empêche de déterminer τ_j de manière satisfaisante. τ_j prend des valeurs toujours supérieures à celle mesurée sur une surface plane indiquée par la ligne pointillée. Le temps de formation du jet ne dépend que faiblement de la vitesse d'impact lorsque l'équateur n'est pas atteint (points noirs et rouges). Si cette limite est dépassée, τ_j est une fonction croissante de V (points bleus). L'augmentation de la durée de la phase de rétraction avec V semble être directement proportionnelle avec l'augmentation du temps de rebond dans le régime où τ dépend de V.



FIGURE 3.17 : **a** Temps d'étalement τ_s mesuré en fonction V pour l'impact de gouttes de rayon R = 1.3 mm sur de sphères de différents rayons R' (couleurs). τ_s prend toujours des valeurs supérieures à celle mesurée sur une surface plane de même hydrophobie (ligne noire pointillée). **b** Temps de formation du jet τ_j en fonction de V lors de l'impact de gouttes (R = 1.3 mm) sur des sphères de rayon R'. τ_j prend toujours des valeurs supérieures à celle mesurée sur une surface plane de même hydrophobie (ligne noire pointillée) et dépend fortement de la vitesse d'impact quand le liquide dépasse l'équateur du substrat.

CHAPITRE 3. IMPACT SUR SUBSTRATS NON PLANS

Les phases d'étalement et de rétraction sont plus longues que lors de l'impact sur un solide plan. Pourtant, le temps de rebond τ est similaire à τ_0 lorsque le liquide n'atteint pas l'équateur. La durée de l'étape de décollage est donc réduite. Cette durée est en fait diminuée même quand τ est plus élevé que τ_0 . Nous interprétons ce phénomène qualitativement. Nous avons remarqué que plus le rayon des sphères augmente, plus τ_s et τ_j diminuent c'est à dire plus la durée de décollage est proche de sa valeur sur un plan. Plus R' est faible, plus le mouvement de rétraction est vertical et plus la durée de décollage est courte. Lors de l'impact sur un solide plan, la phase de décollage transforme un mouvement purement horizontal en un mouvement vertical alors que sur les sphères le liquide possède déjà un mouvement vertical au cours de la rétraction ce qui semble permettre de réduire le temps nécessaire à quitter le substrat.

3.3.2 Dynamique initiale

Nous nous attelons maintenant à décrire l'empreinte du liquide sur le substrat. La dynamique initiale de l'étalement du liquide peut être prédite par un raisonnement géométrique. Nous nous plaçons à un instant t très proche du contact initial entre une goutte de rayon R chutant à la vitesse V et une sphère de rayon R' (figure 3.18a). Nous supposons que jusqu'à cet instant le centre de masse de la goutte se déplace à la vitesse V ; il a alors parcouru une distance $\delta + \delta' = Vt$. Nous ne prenons pas en compte les changements de forme du liquide : le volume $\omega \sim a^2(\delta + \delta')$ est négligé. Nous définissons la longueur a, le rayon du plus grand méridien avec lequel le liquide est en contact. Par double analogie avec l'impact sur un plan nous obtenons : $a \sim \sqrt{R\delta} \sim \sqrt{R'\delta'}$. Nous en déduisons une relation entre δ et δ' que nous pouvons réinjecter dans la formule du contact de Hertz [75] : $a \sim (RR'(\delta + \delta')/(R + R'))^{1/2}$. Initialement l'angle α' est très petit ; dans cette approximation nous pouvons écrire $s \sim a$. Nous avons alors déterminé l'abscisse curviligne s en fonction de V et de t :

$$s \sim \left(\frac{Vt}{1/R + 1/R'}\right)^{1/2}.$$

Cette équation n'est valable qu'à temps court, c'est à dire quand $\omega \ll 1$ soit quand $t \ll RR'/((R+R')V)$. Nous retrouvons quand $R' \to \infty$, le même résultat que celui obtenu lors de l'impact sur un plan.

Nous testons cette prédiction en représentant la quantité $s^2/V(1/R+1/R')$ en fonction du temps lors d'impacts à vitesse fixée $V = 0.69 \pm 0.02$ m/s pour des gouttes et des sphères dont nous faisons varier la taille (figure 3.18b) et lors d'impacts où nous faisons varier la vitesse en gardant une taille de sphère et de goutte constante (figure 3.18c). Dans les deux cas, les données se rassemblent sur une droite de pente unité représentée par la ligne noire pointillée ce qui confirme la validité de notre raisonnement géométrique. Nous mesurons un préfacteur de 2, inférieur de 30 % à celui mesuré pour une surface plane.



FIGURE 3.18 : a Schéma du contact initial entre une goutte de rayon R et une sphère de rayon R'. A un instant t après le contact, le liquide s'est étalé sur une distance s. Un raisonnement géométrique prédit l'évolution initiale de l'abscisse curviligne $s \sim (Vt/(1/R + 1/R'))^{1/2}$. b Prédiction $s^2/V(1/R + 1/R')$ tracée en fonction du temps lors d'impacts à vitesse constante $V = 0.69 \pm 0.02$ m/s pour des gouttes et des sphères dont on fait varier la taille (couleurs). La ligne pointillée possède une pente 1 et un préfacteur 2. c Même graphique lors d'impacts où la vitesse est variée (couleurs) pour deux couples de taille de goutte et de substrat (symboles : $\circ R = 1.3$ mm, R' = 1.5 mm et $\Box R = 1.8$ mm, R' = 2.5 mm).

3.3.3 Etalement maximal

Nous mesurons aussi l'abscisse curviligne maximale s_{max} atteinte par le liquide au cours de l'impact. La figure 3.19a présente l'étalement maximal adimensionné s_{max}/R tracé en fonction du nombre de Weber pour des impacts (R = 1.3 mm) sur des substrats de différents rayons R'. Les données se rassemblent partiellement sur une unique courbe représentée par la ligne noire pointillée sauf pour les deux sphères de rayon le plus faible où nous observons une déviation de cette tendance. A partir d'un nombre de weber critique, proche du nombre de weber maximal atteint sur ces deux sphères, l'étalement est anormalement élevé (points verts et bleus). Le nombre de Weber critique associé à cette augmentation coïncide avec celui nécessaire pour obtenir un étalement supérieur à l'équateur représenté par les lignes verticales pointillées.

La figure 3.19b représente l'étalement maximal normalisé s_{max}/R en fonction du nombre de Weber lors d'impacts de gouttes de plusieurs rayons (symboles) sur des sphères de différents rayons (couleurs). Les données se rassemblent sur une seule courbe (ligne noire pointillée, guide pour l'œil) en dehors du régime d'étalement anormal quel que soit le rayon de la goutte impactante. Ce choix de représentation permet de capturer l'effet de



FIGURE 3.19 : **a** Etalement maximal normalisé s_{max}/R en fonction du nombre de Weber. Les données associées à l'impact de gouttes (R = 1.3 mm) sur des sphères dont nous faisons varier le rayon se rassemblent sur une droite maîtresse mise en évidence par la ligne pointillée qui est un guide pour l'œil. Au-delà d'un nombre de Weber critique (lignes pointillées verticales), le liquide dépasse l'équateur ; l'étalement maximal augmente alors brutalement. **b** Etalement maximal adimensionné s_{max}/R en fonction du nombre de Weber lors de l'impact de gouttes de rayon R (symboles : $R = 1.0 \text{ mm} \Box$, $R = 1.3 \text{ mm} \circ$ et $R = 1.8 \text{ mm} \bigtriangleup$) sur des substrats de rayon R' (couleurs). Ce choix d'axe permet de rassembler les étalements maximaux pour des gouttes et des substrats de différents rayons.

la taille des gouttes sur l'étalement maximal.

3.3.4 Coefficient de restitution

Au cours du rebond sur une sphère, le mouvement du liquide possède en permanence une composante verticale. Ce mouvement a un effet fort sur la dynamique du rebond au moment du décollage : la durée de la phase de décollage est réduite comparée au cas de l'impact sur un plan. Nous réalisons ici une expérience préliminaire visant à déterminer si ce mouvement vertical influence l'élasticité du rebond. Nous mesurons le coefficient de restitution ε en fonction de la vitesse d'impact pour des gouttes (R = 1.0 mm) tombant sur des sphères de rayon R' = 1.5 mm (figure 3.20). Pour des vitesses inférieures à 0.6 m/s, ε a un comportement qualitativement similaire à celui rapporté lors de l'impact sur un plan. Le coefficient de restitution croit jusqu'à atteindre un maximum légèrement inférieur à 1 avant de diminuer. Au cours de cette diminution, nous observons un saut du coefficient de restitution pour $V \simeq 0.65$ m/s qui augmente brutalement avant de décroître à nouveau. Cet évènement n'est pas lié au passage de l'équateur qui intervient pour une vitesses de l'ordre de 0.9 m/s. L'élasticité du rebond est augmentée lors de cet évènement, un fait que nous associons qualitativement à la présence d'un mouvement vertical avant la phase de décollage. Au cours de cette dernière, il n'y pas transformation d'un mouvement uniquement horizontal en un mouvement vertical.

3.3.5 Conclusion et perspectives

Nous avons décrit les impacts observés sur des sphères superhydrophobes dont nous avons fait varier le rayon. Le mécanisme du rebond est notablement modifiée par rapport à



FIGURE 3.20 : Coefficient de restitution ε mesuré en fonction de la vitesse d'impact V pour des gouttes de rayon R = 1.3 mm sur une sphère de rayon R' = 1.5 mm. Nous observons un saut du coefficient de restitution pour $V \simeq 0.65$ m/s qui augmente brutalement avant de décroître à nouveau.

l'impact sur un plan : l'importance relative des durées des phases d'étalement, de rétraction et de décollage sont modifiées. Nous observons des effets forts sur le temps de contact et l'étalement maximal lorsque le liquide dépasse l'équateur. Notre étude est principalement descriptive. Nous pensons que la compréhension du rôle joué par le mouvement vertical présent tout au long de l'impact est l'aspect qu'il est essentiel de capturer.

Chapitre 4

Impact sur substrats déformables

Retour à la table des matières

Sommaire

| 4.1 | Impact et déformation | | |
|-----|-----------------------------|---------------------------------------|----|
| 4.2 | Rebond sur un trampoline | | |
| | 4.2.1 | Expérience | 81 |
| | 4.2.2 | Temps du rebond | 84 |
| | 4.2.3 | Déflexion de la membrane | 85 |
| | 4.2.4 | Modélisation | 85 |
| | 4.2.5 | Conclusion et autres régimes d'impact | 89 |
| 4.3 | 3 Splash sur bains visqueux | | |
| | 4.3.1 | Expérience | 91 |
| | 4.3.2 | Seuil de fragmentation | 92 |
| | 4.3.3 | Effet de la profondeur | 93 |
| | 4.3.4 | Dynamique à temps court | 94 |
| | 4.3.5 | Conclusion et perspectives | 95 |

L'étude du rebond sur les trampolines a été menée de concert avec Martin Coux avec qui j'ai partagé deux années de thèse. Quelques unes des expériences ont été effectuées par Vincent Cantelli lors de son projet de troisième année de l'Ecole polytechnique. Les expériences de splash sur bains visqueux ont été en partie réalisées par Michel Bouchard pendant son projet de troisième année de l'Ecole polytechnique.

4.1 Impact et déformation

Jusqu'ici nous nous sommes intéressés à l'impact d'un liquide sur un solide dans plusieurs configurations en modifiant les propriétés du liquide ou la géométrie du substrat. Le choix du mot solide pour décrire les matériaux que nous employons n'est pas innocent : au cours de nos expériences, c'est le liquide qui se déforme en laissant le solide comme insensible à l'impact. Cette situation est somme toute naturelle si l'on pense à nos expériences



FIGURE 4.1 : **a** Image en microscopie à rayon X de la crête de mouillage obtenue en déposant une goutte d'eau sur un gel silicone (module d'Young ≈ 3 kPa). La déformation du gel équilibre la composante verticale de la tension de surface du liquide. La barre d'échelle représente une distance de 5 µm. Extrait de [83]. **b** Encapsulation d'une goutte d'eau au cours de son évaporation par un film de PDMS. Extrait de [78]. **c** Impact de gouttes d'ethanol (R = 0.88 mm et V = 2.61 m/s) sur des substrats plans de différentes rigidités. Les instantanés représentent le liquide 350 µs après l'impact. Les gels silicones ont une épaisseur de 10 mm sauf le gel fin qui a une épaisseur de 3 µm. L'épaisseur du gel mince inhibe sa déformation ce qui a pour conséquence la fragmentation du liquide. Adapté de [82].

comme à des modèles de l'impact d'une goutte de pluie sur une vitre. Pourtant gouttes et solides déformables peuvent interagir de nombreuses façons originales qui mêlent les contributions capillaires et élastiques. Les effets élastocapillaires peuvent entrainer la déformation d'un solide mou au niveau de la ligne de contact [76, 77] : Park et al. ont observé par microscopie à rayon X la déformation du solide équilibrant la composante verticale de la tension de surface du liquide (figure 4.1a). Ils peuvent également mener à la flexion de structures élancées [78, 79] : la figure 4.1b présente l'encapsulation d'une goutte d'eau par une membrane déformable hydrophile. Au cours de l'évaporation la tension de surface tire la membrane, la courbant de plus en plus. Les solides mous ont également un rôle à jouer dans des situations plus dynamiques. La déformation des substrats peut engendrer un phénomène d'auto-propulsion [80] ou retarder l'apparition du phénomène de splash [81, 82]. Howland et al. [82] ont montré que la vitesse seuil de splash augmente lorsqu'on fait impacter des gouttes d'éthanol sur des solides de plus en plus mous. L'augmentation du seuil est liée à la déformation du substrat comme le révèlent les instantanés de deux impacts sur des matériaux de même module d'Young mais d'épaisseur différente présentés dans la figure 4.1c.

Après avoir étudié des impacts sur des supports rigides dont nous avons fait varier la géométrie, nous nous intéressons à des substrats déformables dont la géométrie varie de manière autodéterminée pendant l'impact. Nous explorons d'abord l'interaction entre élasticité et rebond puis nous étudions l'effet des déformations sur le splash en réalisant des impacts sur un liquide visqueux.

4.2 Rebond sur un trampoline

Flexibilité et superhydrophobie sont souvent associées dans la nature : de nombreuses feuilles ou ailes d'insectes sont à la fois déformables et non-mouillantes. Plus récemment ces deux proriétés ont été combinées en laboratoire à l'aide de membranes flexibles 1D pour obtenir des substrats aux propriétés anti-pluie [53] ou anti-glace renforcées [84]. Weisensee *et al.* [85] ont ainsi rapporté que lors de l'impact de gouttes d'eau sur des membranes 1D superhydrophobes, le temps de contact peut être réduit d'un facteur de l'ordre de 2; une réduction semblable à celle obtenue lors de l'impact sur des macrotextures (chapitre 1). La réduction observée a lieu a haute vitesse d'impact, dans un régime difficile à explorer à cause du splash. Nous décidons d'étudier ici de manière systématique la capacité de membranes flexibles 2D circulaires à repousser des liquides.

4.2.1 Expérience

Nous choisissons d'utiliser comme matériau déformable des membranes de polydimethysiloxane (PDMS) d'épaisseur $h = 20 \ \mu m$ (Silex). Ces membranes sont emprisonnées entre deux anneaux de plexiglas et déposées sur un cadre circulaire de rayon a (a = 7.5, 10, 17.5, 25 mm) inférieur au rayon des anneaux. Nous mettons en tension les membranes à l'aide d'une masse m (figure 4.2). Pour que la tension soit effectivement transmise à la partie suspendue de la membrane, nous nous assurons du glissement de la membrane sur le cadre en recouvrant ce dernier de talc. Nous réalisons des impacts non pas de gouttes d'eau mais de billes liquides [7] obtenues en recouvrant des gouttes d'eau distillée (densité $\rho = 1000 \text{ kg/m}^3$ et tension de surface $\gamma = 72 \text{ mN/m}$) par des spores de lycopode (diamètre $\sim 30 \ \mu m$) silanizés en phase liquide (fluoro-decyl-thrichlorosilane). L'utilisation de billes liquides nous permet de nous placer dans une situation complète de non-mouillage - il y a contact solide/solide entre les spores et n'importe quel substrat. De plus les billes liquides sont un bon modèle de goutte non-mouillantes, elles ont une tension de surface $\gamma \simeq 57 \pm 8$ mN/m légèrement plus faible que celle de l'eau [7, 86] et peuvent résister à des impacts réalisés à vitesse modérée. Pour augmenter la capacité des billes liquides à résister aux impacts, nous rendons les membranes superhydrophobes en pulvérisant une solution de nanobilles hydrophobes dispersées dans l'acétone (Ultra Ever Dry, Ultratech International). Les billes liquides sont obtenues en faisant rouler des gouttes d'eau de rayon R (R = 1 mm ou R = 1.8 mm) formées à partir d'aiguilles calibrées dans une rainure couverte de grains de lycopode. Les billes se déplacent jusqu'à être complètement recouvertes et tombent sur le substrat depuis un trou pratiqué au bout de la rainure. La vitesse d'impact V est variée entre 0.5 et 1.6 m/s en changeant la hauteur de chute du liquide. Nous enregistrons à la fois des vues de côté et la déflexion du centre de la membrane δ au cours de l'impact à l'aide de deux caméras rapides fonctionnant à la cadence typique de 10000 im/s. La déflexion δ est obtenue en observant le déplacement d'une nappe laser projetée sur le dessous de la membrane en incidence rasante. Dans ce cas, le déplacement de la membrane est directement proportionnel à celui de la ligne lumineuse que l'on mesure sur chaque image avec une précision sub-pixellaire (voir annexe C.3 de la thèse d'Antonin Marchand [87]).

Nous réalisons d'abord des impacts de billes liquides sur un matériau superhydrophobe rigide pour vérifier qu'elles peuvent bien être considérées comme un modèle de goutte nonmouillante. La figure 4.3a présente une séquence d'images d'un tel impact (R = 1.8 mm, V = 0.75 m/s). Le liquide commence par s'étaler jusqu'à atteindre son extension maximale puis il se rétracte avant de décoller sous une forme allongée. Visuellement le rebond d'une bille liquide est semblable à celui d'une goutte d'eau. Nous mesurons un temps de rebond de $\tau = 22.5$ ms, un temps semblable à celui observé lors de l'impact d'une goutte d'eau de même rayon sur le même substrat. Pour avoir une comparaison plus quantitative, nous rapportons dans la figure 4.3b le temps de contact τ de gouttes d'eau (cercles) et de billes liquides (points) en fonction de la vitesse d'impact V. Pour des vitesses supérieures à 0.5m/s, τ prend les mêmes valeurs pour les billes liquides et les gouttes et ne dépend pas de V. Nous mesurons la valeur plateau $\tau_0 = 22.7 \pm 0.8$ ms pour les billes liquides. En dessous de 0.5 m/s, le temps de contact des billes liquides augmente d'une façon similaire à ce qui a été rapporté pour les gouttes d'eau à des vitesses inférieures à 0.3 m/s. Nous obtenons des temps de contact très similaires pour les gouttes et les billes liquides malgré une tension de surface 20% plus faible pour ces dernières et des densités similaires. L'absence totale d'adhésion pour les billes liquide explique ce constat surprenant : le préfacteur de la loi d'échelle inertio-capillaire diminue dans une situation totale de non-mouillage. On peut trouver un récapitulatif des préfacteurs mesurés pour de nombreux matériaux dans le matériel supplémentaire de [28].

Après avoir vérifié que les billes liquides sont un bon modèle de gouttes non-mouillantes, nous réalisons des impacts sur une membrane flexible. Le rebond est très différent de celui observé sur un substrat rigide (figure 4.4a). La bille liquide déforme la membrane jusqu'à



FIGURE 4.2 : Une bille liquide de rayon R tombe à la vitesse V sur une membrane de PDMS superhydrophobe d'épaisseur $h = 20 \ \mu m$. La membrane est supportée par un cadre circulaire de rayon a et mise en tension par une masse m. Nous enregistrons à la fois des vues de côté de l'impact et le déplacement vertical du centre de la membrane δ .



FIGURE 4.3 : **a** Vue de côté de l'impact d'une bille liquide (R = 1.8 mm, V = 0.75 m/s) sur un substrat superhydrophobe rigide. Le rebond est visuellement similaire à celui d'une goutte d'eau. Nous mesurons un temps de rebond τ égal à 22.5 ms. **b** Temps de contact τ de billes liquides (•) et de gouttes d'eau (•) de rayon R = 1.8 mm. Au-dessus de V = 0.5 m/s, le temps de contact des billes liquides et des gouttes d'eau est similaire et indépendant de V. Nous mesurons la valeur τ_0 de ce plateau pour les billes liquides, $\tau_0 = 22.7 \pm 0.8 \text{ ms}$.

devenir presque invisible en vue de côté (t = 3 ms). Quand le substrat revient vers sa position d'origine, nous observons le décollage du liquide sous une forme étalée comme s'il était éjecté par le mouvement du solide. Nous mesurons ici un temps de contact de $\tau = 7$ ms, soit approximativement un tiers du temps de contact sur une surface rigide. La goutte se rétracte en l'air après son décollage (t = 13 ms). Nous traçons, dans la figure 4.4b, la déflexion δ du centre de la membrane au cours de l'impact. La membrane s'enfonce d'abord jusqu'à atteindre sa déflexion maximale δ_{max} après un temps que nous dénotons τ_d . Ensuite elle remonte, dépasse l'horizontale et éjecte la goutte au sommet de sa trajectoire après un temps τ . Après le décollage du liquide, nous enregistrons des oscillations libres de la membrane qui nous permettent de mesurer sa période fondamentale, ici $\tau_m = 3.45 \pm 0.10$ ms. La durée de l'oscillation liée à l'impact est intermédiaire entre la durée des oscillations libres de la membrane, τ_m , et la durée d'une oscillation de la goutte que l'on peut assimiler à τ_0 et elle est affectée par ces deux quantités. Nous faisons alors varier indépendamment τ_m et τ_0 pour comprendre leur influence respective sur le temps de contact.



FIGURE 4.4 : **a** Vue de côté de l'impact d'une bille liquide (R = 1.8 mm, V = 1.0 m/s) sur une membrane flexible (a = 10 mm, m = 12.23 g). Le liquide est repoussé par le substrat alors qu'il est encore étalé et décolle après 7 ms. Le temps de rebond est réduit de 70 % par rapport à celui observé sur un matériau rigide. **b** Déflexion δ du centre de la membrane au cours de l'impact présenté en a. Nous extrayons de la courbe la valeur de déflexion maximale δ_{max} et le temps correspondant τ_d . Après le décollage de la bille, les oscillations libres de la membrane nous permettent de mesurer sa période fondamentale τ_m .

4.2.2 Temps du rebond

Nous varions dans un premier temps τ_m (ou la fréquence $f_m = 1/\tau_m$ qui lui est associé) en modifiant la géométrie et/ou la tension des membranes à travers *a* et *m*. Nous présentons en annexe B un modèle qui permet de prédire l'évolution de f_m lorsque *a* et *m* varient. Nous montrons dans la figure 4.5a les variations de τ avec la vitesse V lors de l'impact de billes liquides de rayon R = 1.8 mm sur des membranes de différentes fréquences f_m comprises entre 60 et 290 Hz. Pour une valeur fixée de f_m , le temps de contact est approximativement constant lorsque nous varions V. τ augmente légèrement quand $V \leq 0.5$ m/s, d'une façon analogue à ce que l'on a observé pour l'impact des billes liquides sur une surface rigide. Le temps de rebond τ sur une membrane est toujours réduit par rapport à τ_0 représenté dans la figure 4.5a par la ligne pointillée. Plus f_m augmente, plus τ diminue; la réduction de τ ne semble pas directement proportionnelle à f_m . Ce constat met en évidence l'importance des propriétés dynamiques du substrat sur le rebond et notamment sur son échelle de temps.

Nous faisons varier τ_0 en jouant sur le rayon R des billes liquides. Nous mesurons le temps de rebond pour des billes de rayon 1 et 1.8 mm sur des membranes de fréquence 210 et 440 Hz (figure 4.5b). τ est toujours réduit par rapport à τ_0 . Les billes de plus faible rayon (triangles) sont repoussées plus vite que les billes de rayon plus élevé (points); le même résultat est attendu lors de l'impact sur des surfaces rigides : la loi d'échelle inertio-capillaire prévoit une variation de τ comme $R^{3/2}$. Pour les deux fréquences présentées ici, la variation de R d'un facteur 1.8 entraine une augmentation du temps de contact d'un facteur 1.3±0.1 alors que le comportement inertio-capillaire prédit une augmentation d'un facteur 2.4. Le temps de rebond change plus lentement avec R que lors de l'impact sur une surface rigide.



FIGURE 4.5 : **a** Temps de contact τ de billes liquides (R = 1.8 mm) lors de l'impact sur des membranes flexibles de fréquence f_m en fonction de la vitesse V. La ligne pointillée noire représente τ_0 . τ est toujours réduit par rapport à τ_0 et sa valeur diminue quand f_m augmente. **b** τ en fonction de V pour l'impact de billes liquides de rayon R = 1 mm (triangles) ou R = 1.8 mm (points). Les billes de plus faible rayon sont repoussées plus rapidement.

4.2.3 Déflexion de la membrane

La déformation de la membrane est nécessaire à l'observation d'un temps de contact réduit : le liquide est repoussé par le mouvement du solide au sommet de sa trajectoire. Notre expérience nous permet de mesurer l'amplitude de la déflexion maximale δ_{max} pour chaque impact (figure 4.6). δ_{max} varie linéairement avec V et prend des valeurs millimétriques. Quand R est fixé (points), nous ne voyons pas apparaître de relation claire entre f_m et δ_{max} . Réciproquement pour f_m fixé ($f_m = 290$ Hz, points et triangles verts), δ_{max} augmente avec R ce que nous interprétons comme une conséquence logique de l'augmentation de la masse de liquide.



FIGURE 4.6 : **a** Déflexion maximale δ_{max} en fonction de V. Les droites pointillées sont des ajustements linéaires pour chaque couple membrane/bille liquide. **b** Temps de déflexion τ_d en fonction de V. τ_d suit les mêmes variations que τ .

Nous nous intéressons également au temps nécessaire pour que la membrane atteigne sa déflexion maximale. La figure 4.6 montre les variations de τ_d avec V pour des membranes de différentes fréquences f_m et des gouttes de différents rayon R. τ_d et τ ont un comportement similaire : τ_d dépend faiblement de la vitesse d'impact et il décroit lorsque f_m augmente. τ_d est atteint plus tôt lors de l'impact de gouttes de plus faible rayon pour une même membrane (points et triangles verts).

4.2.4 Modélisation

Nous nous attelons maintenant à comprendre comment l'interaction entre un liquide et un matériau déformable engendre le mécanisme de rebond nouveau que nous observons. Notre analyse est valable uniquement quand $\tau_m < \tau_0$: le cas où l'on attend une réduction du temps de contact. Le temps de rebond ainsi que la déflexion maximale sont influencés à la fois par les variations des caractéristiques de la bille liquide et de la membrane. Pour tenir compte de ces deux aspects, nous modélisons ce système couplé solide/liquide par deux oscillateurs (figure 4.7a). Nous assimilons la bille liquide à un ressort de masse m_d et de raideur k_d . Cet objet a pour fréquence d'oscillation $f_d = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k_d}{m_d}}$. Lord Rayleigh [27] a prédit la fréquence des oscillations libres d'une goutte qui s'écrit $f_d = \sqrt{\frac{8\gamma}{3\pi m_d}}$. Ce



FIGURE 4.7 : **a** Nous modélisons la bille liquide et la membrane comme deux systèmes masse-ressort de fréquences respectives f_d et f_m . **b** Lorsque le liquide et le solide sont en contact, nous supposons que les deux oscillateurs sont en série. Nous appelons z la position du centre de la membrane.

résultat nous permet d'obtenir la raideur de la bille liquide, $k_d = \frac{32\pi}{3}\gamma$. La membrane peut également être modélisée en première approximation par un système masse-ressort de raideur k et de masse m_m . Un tel oscillateur a pour fréquence propre $f = \sqrt{\frac{k}{m_m}}$. La mesure de f à partir des oscillations libres de la membrane nous donne accès à sa raideur k. Nous supposons que lorsque la goutte et la membrane sont en contact, les deux oscillateurs sont en série (figure 4.7b). La position z du centre de la membrane obéit alors à l'équation différentielle suivante :

$$\frac{d^4z}{dt^4} + \frac{k_d}{m_m} \left(1 + \frac{m_m}{m_d} + \frac{k}{k_d} \right) \frac{d^2z}{dt^2} + \frac{kk_d}{m_d m_m} z = 0.$$
(4.1)

Cette équation possède deux limites. (1) Dans le cas d'un substrat rigide $(k \to \infty)$, l'équation devient : $\ddot{z} + 4\pi^2 f_d^2 z = 0$. Le temps de contact est proportionnel à la période de l'oscillateur $1/f_d$, nous retrouvons la loi d'échelle inertio-capillaire. (2) L'impact d'une bille rigide sur un substrat déformable $(k_d \to \infty)$ correspond à $\ddot{z} + 4\pi^2 f_b^2 z = 0$ où $f_b = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{m_d + m_m}}$. La fréquence f_b correspond à la fréquence d'oscillation d'une membrane de raideur k et de masse $m_d + m_m$. Pour valider ce cas limite, nous étudions l'impact de billes de polypropylène ($R_b = 1 \text{ mm}$ et $R_b = 1.75 \text{ mm}$, $\rho_b = 900 \text{ kg/m}^3$) de rayon et masses semblables à celle des billes liquides. Nous mesurons le temps de contact τ des billes alors que nous faisons varier V. Nous représentons dans la figure 4.8 le temps de rebond réduit τf_b en fonction de V pour l'impact de billes de différents rayons R_b sur des membranes de différents f_m . Les données se rassemblent sur une unique courbe ce qui confirme que la période de l'oscillateur $1/f_b$ permet de prédire le temps de contact des billes sur la membrane flexible. Le temps de contact ne dépend pas de la vitesse d'impact et nous obtenons $\tau \sim 0.75 f_b$. La réduction du temps de contact est expliquée par un effet de masse ajoutée : lors du rebond nous observons l'oscillation d'une membrane de raideur k et de masse $m_d + m_m$.

Nous pouvons alors nous demander si cet argument de masse ajoutée est suffisant pour expliquer la réduction du temps de contact observée lors de l'impact de billes liquides. La



FIGURE 4.8 : **a** Temps de contact adimensionné τf_b pour l'impact de billes de polypropylène sur une membrane flexible à la vitesse V. τ ne dépend pas de V et nous mesurons $\tau \sim 0.75 f_b$. La réduction du temps de contact est expliquée par un effet de masse ajoutée : lors du rebond la membrane se comporte comme un oscillateur de raideur k et de masse $m_d + m_m$. **b** Temps de contact normalisé τf_b lors de l'impact de billes liquides sur une membrane circulaire en fonction de V. Les données ne se regroupent pas de manière satisfaisante, un effet de masse ajoutée ne permet pas d'expliquer la réduction du temps de contact. La légende est présentée figure 4.9.

figure 4.8 présente le temps de contact normalisé τf_b en fonction de la vitesse d'impact V lors de l'impact de billes liquides de différents rayons sur des membranes dont nous faisons varier la fréquence fondamentale. Les données ne se regroupent pas de manière satisfaisante ce qui suggère que l'effet de masse ajouté ne permet pas d'expliquer complètement la réduction de τ et qu'il faut aussi prendre en compte le caractère déformable des billes liquides.

Pour comprendre la réduction du temps de contact observée, il nous faut prendre en compte à la fois les raideurs et les masses de la goutte et de la membrane. Nous revenons à l'équation 4.1 où ces deux ingrédients sont présents. Cette équation nous permet de définir deux fréquences naturelles : $f_* = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{k_d}{m_m} \left(1 + \frac{m_m}{m_d} + \frac{k}{k_d} \right) \right)^{1/2}$ et $f = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{kk_d}{m_d m_m} \right)^{1/4}$. Nous pouvons montrer que $f_* > f$. Si nous supposons que cette inégalité est vérifiée, nous obtenons : $\frac{k_d}{m_m} \left(1 + \frac{m_m}{m_d} + \frac{k}{k_d} \right)^2 > \frac{k}{m_d}$. Nous pouvons réécrire ce résultat en définissant les quotients $\alpha = m_m/m_d$ et $\beta = k/k_d$, soit : $(1 + \alpha + \beta)^2 > \alpha\beta$. Cette inégalité est donc vérifiée pour tout α et β positifs. L'inégalité $f_* > f$ est donc vraie quelque soient les paramètres physiques ce qui suggère que la dynamique est contrôlée par 1/f, l'échelle de temps la plus longue. Nous normalisons alors le temps de contact τ par la fréquence f. La figure 4.9 présente le produit τf en fonction de V. Les données se rassemblent sur une courbe maîtresse pour tous les couples (f_m, R) que nous avons testés. Si nous négligeons l'augmentation du temps de rebond pour des vitesses inférieures à 0.5 m/s, nous observons un plateau qui correspond à $\tau \sim 0.75 f$.

Nous remarquons que la fréquence f est la moyenne géométrique des fréquences du substrat et de la bille liquide : $f = \sqrt{f_m f_d}$. Ce constat souligne que l'échelle de temps du mécanisme de rebond est fixée par l'interaction entre liquide et solide. f varie comme



FIGURE 4.9 : Temps de contact τ normalisé par la fréquence $f = \sqrt{f_m f_d}$ extraite de l'équation 4.1 en fonction de V. Les données se rassemblent sur une unique courbe ce qui indique que nous avons identifié l'échelle de temps, 1/f, associée au rebond. Cette fréquence est la moyenne géométrique de f_m et f_d ce qui souligne que le mécanisme nait de l'interaction entre liquide et solide.

 $R^{-3/4}$, un comportement notablement différent de la variation en $R^{-3/2}$ lors de l'impact sur solide rigide. Nous comprenons alors l'évolution lente de τ avec R observée dans la figure 4.5b.

Identifier la fréquence f nous permet de prédire l'amplitude de la déflexion maximale δ_{max} . Nous écrivons la conservation de la quantité de mouvement avant l'impact et lors de la première oscillation de la membrane. Initialement, la membrane est immobile et la goutte de masse m_d se déplace à la vitesse V; lors du contact, la goutte et la membrane oscillent à la fréquence f. Nous obtenons en loi d'échelle $m_d V \sim (m_m + m_d) \delta_{max} f$. Nous testons cette prédiction en traçant $\delta_{max} f_b (1 + \frac{m_m}{m_b})$ (figure 4.10a) et $\delta_{max} f (1 + \frac{m_m}{m_d})$ (figure 4.10b) en fonction de V. Dans le cas des billes rigides et liquides, les données se rassemblent sur des droites de pentes respectives 0.4 ± 0.1 et 0.33 ± 0.03 . Nous observons le comportement linéaire dérivé de la conservation de la quantité de mouvement. Les pentes inférieures à 1 suggèrent que la quantité de mouvement initiale n'est pas totalement convertie en oscillations de la membrane. La quantité de mouvement manquante peut participer à l'étirement de la membrane, être dissipée dans l'air ou dans les mouvements internes du liquide. De manière surprenante, les déflexions maximales semblent avoir un comportement plus linéaire dans le cas, plus complexe, de l'impact des billes liquides. Cette différence peut en partie être expliquée par l'imprécision du centrage lors de nos expériences, un paramètre critique lors de l'impact d'une bille solide qui ne s'étale pas. Une seconde explication est également liée au caractère ponctuel de la bille : l'excitation transmise à la membrane est plus proche d'un dirac que lors de l'impact d'un objet déformable. Nous excitons alors plus facilement des modes propres plus élevés de la membrane ce qui pourrait modifier le transfert d'énergie.



FIGURE 4.10 : a Déflexion maximale δ_{max} de la membrane en fonction de la vitesse d'impact V lors de l'impact de billes solides. Les données sont rassemblées en multipliant δ_{max} par $f_b(1 + \frac{m_m}{m_b})$ comme suggéré par la conservation de la quantité de mouvement. b Même graphique pour l'impact de billes liquides. Cette fois δ_{max} est multiplié par $f(1 + \frac{m_m}{m_d})$. Nous observons en a et b la relation linéaire attendue. Les droites pointillées sont des ajustements de pentes respectives 0.4 ± 0.1 et 0.33 ± 0.03 .

4.2.5 Conclusion et autres régimes d'impact

L'étude de l'impact sur un substrat déformable que nous avons menée s'est focalisée sur la compréhension du phénomène de rebond et de l'échelle de temps qui lui est associée. Nous avons montré que le temps de contact est réduit, jusqu'à 70% par rapport au temps mesuré sur un substrat rigide et que le mécanisme de rebond nait de l'interaction entre le solide déformable et le liquide. La connaissance de cette interaction nous permet d'ajuster les paramètres du solide et/ou du liquide pour choisir le temps de rebond.

Au sein même de ce régime d'impact, de nombreux points restent à éclaircir. Notre configuration expérimentale ne nous a pas permis d'étudier l'instant exact du décollage de la bille liquide quand elle est éjectée par le retour élastique de la membrane. Le détail des échanges de quantité de mouvement entre la bille liquide et la membrane reste à caractériser ; le bilan de quantité de mouvement qui nous permet de prédire la déflexion maximale montre qu'une grande partie de l'énergie initiale ne se transforme pas en oscillations de la membrane. Nous pourrions par exemple mener une étude énergétique du rebond en mesurant les variations du coefficient de restitution en fonction des paramètres de la membrane et du liquide. L'expérience suivante nous permet d'illustrer la richesse de cette problématique : nous faisons tomber une bille liquide de viscosité 1 Pa.s sur une surface rigide et une membrane. Cette bille de glycerol ne rebondit pas sur un substrat rigide (voir chapitre 6), cependant elle est repoussée par la membrane (figure 4.11a) et ce avec un coefficient de restitution bien supérieur à celui d'un goutte d'eau dans les mêmes conditions.

Un autre régime d'impact est également accessible lors de nos expériences. Si nous ne cherchons pas à réduire le temps de contact, nous pouvons étudier des membranes telles que $\tau_m > \tau_0$. Nous avons réalisé des expériences en nous plaçant dans ces conditions en augmentant la taille des membranes. Le mécanisme de rebond que nous avons observé dans



FIGURE 4.11 : **a** Vue de côté de l'impact d'un bille liquide (R = 1.8 mm) de viscosité de 1 Pa.s sur une membrane flexible. Le liquide est repoussé par le substrat et possède un rebond plus élastique qu'une goutte d'eau dans les mêmes conditions d'impact. Au contraire, la chute d'un tel liquide sur un plan superhydrophobe n'engendre pas de rebond. **b** Déflexion $\delta(t)$ lors de de l'impact d'une bille liquide (R = 1.8 mm) sur une membrane vérifiant la condition $\tau_m > \tau_0$. On remarque la présence d'un second pic de déflexion au moment où le liquide appuie sur la membrane pour décoller. Dans cette figure la déflexion est comptée positivement.

ces expériences préliminaires est qualitativement et quantitativement similaire à celui observé sur un substrat rigide. L'étude du signal $\delta(t)$ au cours d'un tel impact fait cependant apparaître une particularité invisible lors de l'impact sur un substrat rigide : un second pic de déflexion est créé quand la goutte prend appui sur le substrat pour décoller (figure 4.11b). La présence de ce pic montre qu'il serait pertinent de s'intéresser à la force exercée par une goutte d'eau lors d'un impact non pas seulement initialement [88, 89] mais aussi plus tard, au moment de son décollage.

4.3 Splash sur bains visqueux

Nous étendons notre étude des effets de la flexibilité du substrat lors d'un impact au phénomène de splash. Beaucoup d'efforts ont été fournis pour obtenir un critère permettant de déterminer si un liquide se fragmente lors d'un impact (voir la revue de Josserand etal. [90]). Il a été montré que la vitesse critique de splash dépend à la fois des propriétés physico-chimiques du substrat, des propriétés du liquide mais aussi, plus étonnamment, des propriétés de l'atmosphère qui entoure la goutte. A ces nombreux facteurs influençant la fragmentation d'un liquide lors de l'impact, on peut ajouter la déformabilité du substrat : le splash apparait pour des vitesses plus élevées sur des matériaux mous [81, 82]. Cette augmentation serait causée par la déformation élastique du substrats à une échelle de temps comparable à celle du splash, soit la centaine de microsecondes. Cette dynamique très rapide rend l'étude de l'impact sur un solide mou délicate : les matériaux que l'on utilise s'éloignent, pour des sollicitations aussi brèves, du comportement élastique qu'on leur associe généralement. De plus, il est difficile de connaitre la rhéologie de solides mous aux échelles de temps associées au splash. Nous choisissons de nous placer dans une situation où la rhéologie du substrat joue à notre avantage. Un splash similaire à celui observé sur un solide a été observé par Kittel et al. [91] dans le cas de l'impact sur un mince film liquide. Nous nous proposons ici d'étendre cette idée à l'impact d'une goutte sur un bain d'un liquide visqueux non-miscible. Le liquide visqueux joue le rôle de "solide déformable" à temps court : il est viscoélastique. En faisant varier la viscosité du bain, on change le temps de transition t^* entre un comportement visqueux $(t > t^*)$ et un comportement élastique $(t < t^*)$. Nous avons pour objectif de nous placer dans une situation où, à l'échelle du splash, le matériau sur lequel nous réalisons l'impact possède un comportement élastique.

4.3.1 Expérience

L'expérience est schématiquement représentée sur la figure 4.12a. Nous faisons impacter une goutte d'éthanol ($\rho = 789 \text{ kg/m}^3$, $\gamma = 22 \text{ mN/m}$ et R = 0.86 mm) formée à l'aide d'une aiguille calibrée sur un bain d'huile silicone dont nous faisons varier la viscosité η entre 0.1 et 500 Pa.s. Le bain a ici une profondeur h = 15 mm, suffisante pour être considérée comme infinie dans cette expérience. L'éthanol et l'huile silicone ne sont pas miscibles et le bain est toujours suffisamment visqueux de sorte que nous ne nous intéressons qu'à la fragmentation du liquide qui impacte. Nous varions la vitesse d'impact V entre 2 et 4 m/s en ajustant la hauteur de chute des gouttes. Nous isolons la goutte en chute libre des perturbations aérodynamiques qui peuvent modifier son point d'impact à l'aide d'un tube vertical. Une caméra rapide enregistre des vues de côté des impacts à une cadence de 20000 im/s. Nous nous assurons enfin de l'absence d'interface intermédiaire en faisant déborder le bain d'huile silicone.

La figure 4.12b présente deux impacts sur des bains de viscosité 0.1 et 100 Pa.s à des vitesses de 3.55 et 2.9 m/s (séquence d'images supérieure et inférieure, respectivement).



FIGURE 4.12 : a Schéma de l'impact d'une goutte d'éthanol (rayon R, vitesse V) sur un bain d'huile silicone de viscosité η et de profondeur h. Nous varions V entre 2 et 4 m/s et η entre 0.1 et 500 Pa.s. b Vues de côté de l'impact d'une goutte d'éthanol (R = 0.86 mm) sur des bains de viscosité 0.1 et 100 Pa.s (séquences d'images supérieure et inférieure) aux vitesses de 3.55 et 2.9 m/s, respectivement. Dans les deux cas, la vitesse d'impact est juste supérieure à la vitesse critique de splash et on observe la fragmentation du liquide. Pour $\eta = 100$ Pa.s, la déformation du bain n'est pas perceptible sur une vue de côté.

Dans les deux cas, nous nous sommes placés légèrement au-delà de la vitesse critique de splash et nous observons la fragmentation de la goutte. Peu de temps après le contact, un feuillet de liquide est éjecté radialement et semble décoller du substrat (t = 0.15 ms). Pour le liquide de plus faible viscosité (0.1 Pa.s), la déformation du bain vient interagir avec le feuillet éjecté, provoquant sa rupture (t = 0.30 ms, haut). Sur le bain plus visqueux (100 Pa.s), l'huile ne semble pas se déformer, le feuillet liquide continue son mouvement radial ascendant et des corrugations apparaissent(t = 0.30 ms, bas). Le feuillet se fragmente alors qu'il retombe sur le substrat (t = 0.45 ms, bas) ce qui indique que l'on est proche de la vitesse critique. Ces deux situations semblent relever de deux scénarii de fragmentation distincts : l'un influencé par une forte et rapide déformation du bain et l'autre, pouvant mettre en jeu des déformations imperceptibles sur nos images, présentant un mécanisme de fragmentation qualitativement similaire à celui décrit sur des surfaces rigides. La vitesse critique associée au premier scénario est plus élevée que celle associée au second. Nous avons l'intuition que moins le liquide est visqueux, plus il semble déformable et plus le seuil de splash est élevé [81, 82].

4.3.2 Seuil de fragmentation

La figure 4.13 nous permet d'identifier la vitesse d'impact critique de fragmentation du liquide en fonction de la viscosité η du bain. Quelle que soit la viscosité du bain entre 0.1 et 500 Pa.s, il existe une vitesse critique au-delà de laquelle le liquide se fragmente. Cette vitesse est toujours supérieure à la vitesse de splash obtenue sur un matériau rigide lisse et mouillant (ici, une lame de verre) représentée par la ligne pointillée grise. Nous distinguons deux comportement. (i) Quand $\eta < 10$ Pa.s, l'huile silicone se déforme fortement dès les premiers instants après le contact et la vitesse critique augmente quand la viscosité diminue. (ii) Pour $\eta \geq 10$ Pa.s, le mécanisme de splash est qualitativement semblable à



FIGURE 4.13 : Diagramme de phase de l'impact d'une goutte d'éthanol (R = 0.86 mm) sur un bain d'huile silicone de viscosité η . Pour chaque viscosité η , il existe une vitesse critique à partir de laquelle le splash apparaît. Les symboles rouges (respectivement bleus) indiquent la présence ou l'absence de splash pour chaque impact réalisé. La ligne pointillée grise montre la vitesse critique de splash sur une lame de verre.

celui observé lors d'un impact sur un substrat rigide. Le bain ne semble pas être déformé et la vitesse critique de fragmentation ne dépend pas de la viscosité du bain. Le nombre de Weber ($We = \rho RV^2/\gamma$) critique de fragmentation correspondant à ce plateau est semblable à celui observé par Howland *et al.* [82] sur des solides mous de module de Young allant de 10⁴ à 10⁵ Pa.

4.3.3 Effet de la profondeur

Pour comprendre l'influence de la déformation dans les deux régimes que nous avons identifiés, nous réalisons des impacts sur des huiles silicones de viscosité 1 et 10 Pa.s en faisant varier la profondeur h entre 100 μ m et 15 mm. Les profondeurs inférieures à la longueur capillaire $\kappa^{-1} = 1.6$ mm sont obtenues par mouillage forcé de lames de verre que nous retirons d'un bain d'huile silicone à vitesse contrôlée. L'épaisseur du liquide est déterminée à l'aide de la loi de Landau-Levich-Derjaguin [92, 93]. Les figures 4.14a et 4.14b montrent l'évolution de la vitesse critique de fragmentation du liquide avec h pour des huiles silicones de viscosité de 1 et 10 Pa.s respectivement. La vitesse seuil de splash diminue avec la profondeur ce qui illustre l'importance de la déformation du liquide dans l'augmentation du seuil : en réduisant h, on tend à inhiber la déformation de l'interface. Ce résultat n'est pas surprenant pour une viscosité de 1 Pa.s où la déformation était visible sur le bain profond. En revanche, cette expérience pour $\eta = 10$ Pa.s, suggère l'existence d'une déformation de l'huile, invisible sur les vues de côté. La profondeur finie se fait sentir à partir de h = 1.6 mm pour le liquide le moins visqueux alors que au-dessus de 100 μ m nous ne voyons plus d'influence quand $\eta = 10$ Pa.s, ce qui confirme que les amplitudes des déformations sont très différentes. Pour les deux viscosités testées, la vitesse critique de fragmentation sur un film de 100 μ m est semblable au seuil pour un solide rigide.

La déformation de l'interface liquide semble être à l'origine de l'augmentation de la vitesse critique de fragmentation dans les deux régimes que nous avons identifiés. Nous



FIGURE 4.14 : **a** Domaine d'existence du splash lors de l'impact d'une goutte d'éthanol (R = 0.86 mm) à la vitesse V sur un bain d'huile silicone de viscosité 1 Pa.s et de profondeur h variée entre 100 µm et 15 mm. **b** Même diagramme de phase pour une viscosité de 10 Pa.s. La profondeur de liquide affecte la vitesse critique de fragmentation ce qui indique le rôle des déformations même lorsqu'elles ne sont pas perceptibles en vue de côté. Pour les films les plus minces ($h = 100 \ \mu m$), nous retrouvons la vitesse critique obtenue sur un substrat rigide matérialisée par la ligne pointillée.

ne cherchons toutefois pas à expliquer cette augmentation dans le cas des huiles les moins visqueuses où le mécanisme de splash est notablement modifié par rapport à celui sur un solide rigide. Nous nous concentrons sur les situations où les déformations sont faibles et où le liquide semble se comporter comme un solide mou, c'est à dire quand $\eta \geq 10$ Pa.s. Cette distinction entre les deux mécanismes est confirmée par la valeur des temps de relaxation des huiles données par leur fabricant : pour $\eta = 1$ Pa.s, nous avons $t^* \approx 200 \ \mu s$, soit une échelle de temps comparable à celle de la fragmentation alors que pour $\eta = 10$ Pa.s, nous avons $t^* \approx 2$ ms. Nous considérons alors que la réponse des huiles silicones de 10 Pa.s est élastique à l'échelle de temps du splash. Nous pouvons alors déterminer en loi d'échelle le module de cisaillement correspondant à ces viscosités. La contrainte σ dans un matériau viscoélastique possède deux comportements asymptotiques : (1) un comportement visqueux à temps long, $\sigma = \eta \dot{\gamma}$ où $\dot{\gamma}$ est le taux de cisaillement; (2) un comportement élastique à temps court, $\sigma = G'\dot{\gamma}t$ où G' est le module de cisaillement. Ces deux comportements asymptotiques étant équivalents pour $t = t^*$, nous en déduisons une loi d'échelle pour le module de cisaillement $G' \sim \eta/t^*$. Nous obtenons alors l'ordre de grandeur du module de Young associé aux huiles silicones de viscosité 10, 100 et 500 Pa.s. soit $E \sim 10^4$ Pa. Ce résultat est cohérent avec le fait que la vitesse seuil de fragmentation que nous mesurons correspond à celle observée par Howland et al. [82] sur des solides mous de même module élastique.

4.3.4 Dynamique à temps court

Nous nous penchons maintenant sur la dynamique initiale du feuillet liquide pour déterminer si elle est influencée par la déformation. Nous mesurons la position radiale du point de rebroussement a(t) et la position du feuillet d'éjection b(t) (voir insert sur la figure 4.15) lors d'impacts (R = 0.86 mm, V = 2.9 m/s) sur des bains profonds de viscosité comprise entre 1 et 500 Pa.s ainsi que sur un matériau rigide. La figure 4.15a



FIGURE 4.15 : Mesure de la position radiale du point de rebroussement a(t) (**a**) et de la position du feuillet d'éjection b(t) (**b**) à temps court lors de l'impact de gouttes (R = 0.86 mm, V = 2.9m/s) sur des bains de viscosité variée entre 1 et 500 Pa.s. L'évolution de a(t) ne dépend pas de η et est en accord avec la prédiction géométrique représentée par la ligne pointillée. La position du feuillet d'éjection est également similaire à ce que nous observons sur un solide rigide sauf pour la plus faible viscosité testée où les déformations du bains deviennent apparentes.

montre l'évolution de *a* pendant les 200 µs qui suivent l'impact. Quel que soit le substrat, la dynamique est la même et est en accord avec la prédiction géométrique $a = \sqrt{3VRt}$ représentée par la ligne noire pointillée. L'évolution de *b* fait l'objet de la figure 4.15b. L'éjection du feuillet est semblable pour le solide et pour les viscosités $\eta \ge 10$ Pa.s. Nous mesurons une vitesse d'éjection réduite uniquement pour $\eta = 1$ Pa.s, dans le régime ou le liquide ne se comporte pas de manière purement élastique. Ces résultats contrastent avec ceux de [82] qui observent une réduction de la vitesse d'éjection sur un solide élastique mou. Malgré une augmentation similaire de la vitesse critique de fragmentation, les mécanismes à l'origine de cet effet semblent différents sur un solide mou et sur un liquide. Nos résultats peuvent être mis en regard de ceux obtenus par Liu *et al.* [94] qui montrent que le splash peut être supprimé en agissant uniquement au niveau du feuillet liquide, une fois que son éjection a eu lieu.

4.3.5 Conclusion et perspectives

Nous avons observé le splash de gouttes lors de leur impact sur un bain d'un liquide visqueux non-miscible et avons quantifié l'augmentation, jusqu'à un facteur 2, de la vitesse seuil d'apparition du splash en fonction de la viscosité du bain. Nous avons montré que l'augmentation de la vitesse seuil est liée à la déformation du liquide en réalisant des impact sur des films minces. Nous nous sommes concentrés sur le régime où la déformation du bain est faible à temps court et où nous pouvons considérer que le liquide visqueux a un comportement élastique. La mesure de la dynamique initiale de la goutte dans ce régime contraste avec les résultats rapportés dans la littérature pour des matériaux mous.

Ces résultats étonnants demandent de s'intéresser au mouvement du substrat à l'échelle des premières centaines de microsecondes après le contact. Nous proposons ici deux expériences complémentaires visant à caractériser les déformations du substrat ainsi que leur rôle. Une première approche consiste à mesurer la déformation de l'interface sous la goutte au cours de l'impact par une technique d'interférométrie, en se demandant si la déformation est localisée au niveau du point d'impact ou si elle est également présente au niveau du feuillet d'éjection. Il serait également intéressant de comparer les déformations obtenues sur un gel à celles obtenues sur un liquide visqueux. Une seconde expérience viserait à séparer le rôle de la déformation au point d'impact d'une éventuelle déformation au niveau du feuillet d'éjection, dans l'esprit du travail de Liu *et al.* [94]. L'expérience consiste à réaliser des impacts sur un bain dont la profondeur présente une marche : le point d'impact se situe alors au-dessus d'une faible épaisseur de liquide qui empêche la déformation, alors que le feuillet de liquide se déplace au-dessus du bain profond, ce qui permet la déformation.

Chapitre 5

Surfaces actives

Retour à la table des matières

Sommaire

| 5.1 | Gouttes frappées 99 | | |
|-----|----------------------------------|--|--|
| | 5.1.1 | Expérience | |
| | 5.1.2 | Etalement maximal $\ldots \ldots 102$ | |
| | 5.1.3 | Décollage | |
| | 5.1.4 | Dynamique du film mince | |
| | 5.1.5 | Dynamique du bourrelet | |
| | 5.1.6 | Contrôle des formes transitoires | |
| | 5.1.7 | Sculptures liquides éphémères | |
| 5.2 | Impact sur une surface activable | | |
| 5.3 | Conclusion | | |

Les gouttes frappées ont été étudiées en collaboration avec Lucie Domino et Martin Coux et doivent beaucoup aux conseils d'Antonin Eddi. Les expériences d'impacts sur une surface activable ont été rendues possibles et réalisées par Vinh Nguyen au Japon. Elles font suite à nos conversations parisiennes de l'été 2017.

La compréhension des impacts sur des substrats déformables nous a permis de découvrir un nouveau levier ayant une influence sur l'issue d'une collision. La flexibilité des matériaux permet, au-delà de changer leur géométrie au cours de l'impact, d'apporter un nouveau temps caractéristique qu'il faut prendre en compte pour déterminer le comportement observé lors d'un impact. Nous avons fait varier l'échelle de temps associée au substrat en changeant ses propriétés. Cette approche présente des limites : il est difficile de découpler le temps caractéristique du substrat et l'amplitude de ses déformations. Nous nous affranchissons de cette difficulté, dans ce chapitre, en utilisant des surfaces rigides auxquelles nous imposons un mouvement contrôlé de notre choix.

On trouve dans la littérature de nombreux exemples de l'interaction entre un subtrat mobile et une goutte, en effet mettre en mouvement un substrat de manière périodique



FIGURE 5.1 : a Variation de la forme d'une goutte sessile pour différentes amplitudes et fréquences d'excitation (haut : 9Hz, mode harmonique, milieu : 9 Hz, mode subharmonique et bas : 6 Hz, mode subharmonique). Les images sont séparées d'une demi-période d'excitation. Extrait de [95]. b Hauteur maximale atteinte par des gouttes de différents rayons soumises à une même impulsion. Les trois gouttes atteignent des hauteurs différentes toujours supérieures à celle d'un solide soumis au même mouvement (ligne noire pointillée). Adapté de [100].

est un bon moyen de manipuler des liquides. Noblin et al. [95] ont ainsi montré que des flaques déposées sur une surface vibrée verticalement prennent des formes assymétriques dont nous présentons des exemples dans la figure 5.1a. Les vibrations du substrat peuvent aussi entraîner la propulsion du liquide : Brunet et al. [96] ont observé que des gouttes reposant sur un subtrat incliné en vibration peuvent remonter une pente contre l'action de la gravité. Combiner vibrations verticales et superhydrophobie peut aussi créer un phénomène d'auto-propulsion, une goutte se déplace spontanément sur une surface hydrophobe présentant un gradient de texture [97], ou permettre la transition de l'état Wenzel à l'état Cassie [98]. Des effets intéressants sont également obtenus en soumettant le liquide à un mouvement impulsionnel : une goutte d'eau peut se détacher d'un matériau hydrophobe [99] ou être propulsée bien plus efficacement qu'un solide soumis au même mouvement [100]. La figure 5.1b montre la hauteur maximale atteinte par des gouttes de différents rayons soumises à une même impulsion. Les trois gouttes atteignent des hauteurs différentes toujours supérieures à celle d'un solide soumis au même mouvement (ligne noire pointillée) : un signe de la participation du liquide à la propulsion. Les exemples de l'interaction entre une goutte et un solide en mouvement lors d'un impact sont plus rares : Lee et al. [101] ont montré qu'un mouvement non-monotone du substrat favorise le rebond sur un solide hydrophobe et Weisensee et al. [102] ont étudié l'importance de la phase au moment de l'impact sur un substrat oscillant de manière périodique.

Nous étudions d'abord le cas d'une goutte déposée sur un substrat superhydrophobe et ensuite soumise à un mouvement impulsionnel puis nous présentons brièvement le cas d'un impact sur une surface non-mouillante que nous activons au moment du contact entre liquide et solide.

5.1 Gouttes frappées

5.1.1 Expérience

Nous nous intéressons à l'effet d'un mouvement impulsionnel sur une goutte d'eau distillée (densité $\rho = 1000 \text{ kg/m}^3$, tension de surface $\gamma = 72 \text{ mN/m}$) initialement au repos sur une plaque superhydrophobe. La plaque est rendue non-mouillante par application en spray d'une solution commerciale de nanobilles hydrophobes dispersées dans de l'acétone (Ultra Ever Dry). Après évaporation du solvant, le métal est recouvert de plusieurs couches de nanobilles hydrophobes responsables de la rugosité et de la chimie de surface qui confèrent des propriétés de non-mouillage au substrat. Une goutte d'eau de rayon R_0 , varié entre 1 et 1.8 mm, est formée à partir d'une aiguille calibrée et déposée sur le substrat que l'on a pris soin de rendre horizontal pour que la goutte puisse y demeurer. Le mouvement est transmis à la plaque par un pot vibrant (Bruel & Kjaer 4808) contrôlé par l'intermédiaire d'un amplificateur de courant et d'un générateur de signaux. Nous enregistrons des vues de côté de chaque expérience à l'aide d'une caméra rapide fonctionnant typiquement à 10000 im/s. Ces vues de côté nous permettent à la fois de visualiser les déformations du liquide et de déterminer le mouvement vertical de la plaque, z(t), avec une précision sub-pixellaire (voir annexe C.3 de la thèse d'Antonin Marchand [87]). L'amplitude maximale des mouvements générés par notre expérience est de l'ordre de quelques millimètres et est atteinte en quelques millisecondes. Nous accédons donc à des vitesses de l'ordre du m/s et des accélérations de l'ordre de 100 fois la gravité. Nous appelons U la vitesse maximale du substrat atteinte à un temps τ . Le mouvement n'est pas symétrique, la plaque revient plus lentement à sa position initiale.



FIGURE 5.2 : Vue de côté d'une goutte ($R_0 = 1.8 \text{ mm}$) initialement au repos soumise au mouvement impulsionnel z(t) ($U = 1.9 \text{ m/s}, \tau = 5.6 \pm 0.2 \text{ ms}$) représenté sous la séquence d'image. Le liquide est déformé au cours du mouvement et adopte transitoirement une forme de cavité conique tronquée. Les lettres (A-H) indiquent l'instant correspondant à chaque instantané.

La figure 5.2 associe le déplacement z(t) de la plaque à la séquence d'image correspondante. Une goutte $(R_0 = 1.8 \text{ mm})$ est soumise à une impulsion atteignant une vitesse U = 1.9 m/s au temps $\tau = 5.6 \pm 0.2 \text{ ms}$. Ce déplacement entraı̂ne un remodelage complet du liquide qui adopte transitoirement des formes surprenantes. Dans un premier temps le liquide s'écrase (A-B-C), il est soumis à l'accélération du substrat. La forme de la goutte étalée rappelle celle observée lors d'un impact : un mince film liquide est entouré d'un bourrelet périphérique où se concentre le liquide. A l'instant $\tau_d = 7.2$ ms, la périphérie de la goutte se détache du substrat alors que le centre reste en contact avec le substrat (D). La goutte atteint ensuite son rayon maximal, noté R_{max} . L'évolution du bourrelet périphérique qui s'est détaché de la plaque est indépendant des mouvements du substrat : son rayon peut continuer à croître avant de se rétracter tout en poursuivant une trajectoire ascendante. Le liquide en contact avec le substrat démouille immédiatement après le décollage du bourrelet périphérique. Les dynamiques verticale et horizontale du bourrelet et du film mince, qui forment un unique volume liquide, interagissent pour créer une cavité ayant la forme d'un cône tronqué (E). Le démouillage du film mince entraine l'effondrement de la cavité (F) et la création d'un jet vertical (G). Finalement, le liquide se détache du substrat sous une forme allongée (H).



FIGURE 5.3 : a Vue de côté d'une goutte ($R_0 = 1.8 \text{ mm}$) soumise à un mouvement dont le temps caractéristique τ est de l'ordre celui de la goutte τ_0 . Le liquide s'étale puis se rétracte avant de décoller sous une forme allongée. b Goutte de rayon $R_0 = 1.8 \text{ mm}$ à laquelle on impose un mouvement tel que $\tau \ll \tau_0$. Le liquide ne forme pas de cavité malgré un début de décollage de sa périphérie. Les séquences d'images en a et b sont réminiscentes de l'impact sur une surface superhydrophobe.

5.1. GOUTTES FRAPPÉES

Bien que le liquide quitte le substrat pour tous les mouvements que nous avons imposé, nous n'observons pas toujours la formation de cavités coniques. La figure 5.3 présente deux séquences d'images correspondant aux deux cas limite d'impulsions transmises à la plaque. Si nous imposons un mouvement lent (figure 5.3a), c'est à dire un mouvement dont le temps caractéristique τ est de l'ordre du temps caractéristique de la goutte τ_0 , ici $\tau_0 \approx 23$ ms, alors le liquide s'étale, atteint son rayon maximal puis se rétracte avant de décoller. La périphérie de la goutte ne quitte pas le substrat de manière prématurée : nous n'observons pas la formation de cavités. Nous sommes alors dans le régime d'impulsion responsable de la superpropulsion observée par [100]. Un mouvement extrêmement bref tel que $\tau \ll \tau_0$ (figure 5.3b) ne nous permet pas non plus de générer des cavités même si nous observons un début de décollage de la périphérie de la goutte (t = 4.3 ms). L'accélération maximale du pot vibrant ne permet pas d'atteindre des déplacements suffisants pour transmettre un mouvement vertical au liquide en des temps aussi courts. Nous observons que le déplacement doit être de l'ordre de $2R_0$ pour former des cavités. Dans les deux cas, la goutte quitte la surface après un temps de l'ordre de τ_0 . Les déformations du liquide, bien que créées par le mouvement impulsionnel, ont lieu à une échelle de temps qui est celle de la goutte, comme lors d'un impact.

Dans la suite de ce chapitre, nous décrivons l'évolution des déformations du liquide lorsque nous formons une cavité. Pour ce faire nous définissons (insert dans la figure 5.4b) et nous mesurons lors de chaque expérience le rayon du bourrelet, R(t), la hauteur du bourrelet dans le référentiel du laboratoire, h(t), et le rayon de contact du liquide avec la plaque, r(t). La figure 5.4a présente l'évolution de R(t) et r(t) pour une goutte de rayon $R_0 = 1.8$ mm et un mouvement impulsionnel ayant pour vitesse maximale U = 1.45 m/s atteinte au temps $\tau = 4.0 \pm 0.2$ ms. Dès l'initiation du mouvement, le liquide s'étale, ce qui se traduit par une augmentation de r jusqu'à atteindre $r = R = R_0$, r et R prennent ensuite des valeurs presque identiques. Au moment du décollage de la périphérie de la goutte à l'instant $t = \tau_d$, r et R se séparent brusquement. Le rayon du bourrelet continue d'augmenter jusqu'à sa valeur maximale que nous nommons R_{max} puis diminue avec une accélération constante notée \hat{R} . Nous mesurons cette accélération à l'aide d'un ajustement sur les données expérimentales (représenté par la ligne rouge pointillée, figure 5.4a), ici $\ddot{R} = 72 \pm 2$ m/s². Le rayon de contact diminue également après $t = \tau_d$ mais avec un comportement notablement différent. r décroit à une vitesse constante que nous appellons \dot{r} . Nous measurons ici $|\dot{r}| \simeq 0.8$ m/s.

Nous étudions également la dynamique verticale du bourrelet depuis son décollage $(t = \tau_d)$ jusqu'à l'effondrement de la cavité, moment à partir duquel il devient difficile de déterminer la position du centre de masse. La figure 5.4b représente les trajectoires verticales du bourrelet pour une goutte ($R_0 = 1.8 \text{ mm}$) et du centre de masse d'une bille de polypropylène de rayon 1.75 mm et de densité spécifique 0.95 auxquelles nous imposons une impulsion (U = 1.7 m/s et $\tau = 4.9 \text{ ms}$). Nous définissons l'origine de telle sorte que



FIGURE 5.4 : a Rayon du bourrelet R(t) et rayon de contact r(t) d'une goutte ($R_0 = 1.8 \text{ mm}$) soumise à une impulsion de vitesse maximale U = 1.45 m/s atteinte après $\tau = 4.0 \pm 0.2 \text{ ms}$. R et r se séparent après le décollage du tore ($t = \tau_d$). Le rayon du bourrelet croit jusqu'à atteindre son maximum R_{max} avant de diminuer avec une accélération constante $\ddot{R} = 72 \pm 2 \text{ m/s}^2$ (mesurée par un ajustement représenté par la ligne pointillée rouge) alors que r décroit linéairement à vitesse $\dot{r} \simeq 0.8 \text{ m/s}$. b Comparaison des trajectoires verticales d'une bille de polypropylène (rayon 1.75 mm et densité spécifique 0.95) et du bourrelet d'une goutte ($R_0 = 1.8 \text{ mm}$) soumises à une impulsion (U = 1.7 m/s et $\tau = 4.9 \text{ ms}$). Le liquide et le solide décollent à la même vitesse \dot{h} à l'instant $t = \tau_d$. Le liquide décélère après quelques millisecondes de vol, $\ddot{h} = 97 \pm 6 \text{ m/s}^2$ (mesurée par un ajustement représenté par la ligne pointillée verte), alors que le solide s'élève encore à vitesse constante. (insert) Schéma d'une cavité et définition de ses dimensions caractéristiques : R, r et h.

 $h(\tau_d) = 0$. Le liquide et le solide quittent la surface avec la même vitesse h. Après quelques millisecondes de vol, les trajectoires du bourrelet et de la bille diffèrent notablement. La bille semble s'élever à vitesse constante pendant notre observation alors que le liquide décélère nettement. Nous caractérisons cette trajectoire un réalisant un ajustement de la forme $h(t) = \dot{h} - \ddot{h}t^2/2$ représenté par la ligne verte pointillée. Nous obtenons $\dot{h} = 1.8 \pm 0.1$ m/s et $\ddot{h} = 97 \pm 6$ m/s². La valeur de \dot{h} est très proche de U. Les dynamiques horizontale et verticale du tore ainsi que celle du film liquide contribuent à créer les cavités de forme conique que nous observons. Dans la suite de ce chapitre, nous modélisons l'évolution du bourrelet et du film mince pour comprendre l'origine des formes que nous observons.

5.1.2 Etalement maximal

Le rayon maximal R_{max} adopté par la périphérie de la goutte au cours de son étalement caractérise l'empreinte du liquide lors d'une impulsion. Au-delà de cette caractérisation, notre expérience permet d'apporter un éclairage nouveau sur le rayon maximal atteint par une goutte lors d'un impact. Les lois d'échelles usuelles permettant de prédire le rayon maximal d'étalement lors d'un impact équilibrent l'énergie cinétique disponible avant le contact avec l'énergie de surface du liquide étalé $(R_{max}/R_0 \sim We^{1/2}$ où $We = \rho RV^2/\gamma)$ ou avec l'énergie dissipée par viscosité $(R_{max}/R_0 \sim Re^{1/5}$ où $Re = \rho RV/\eta)$. Cette approche conduit toujours à utiliser des nombres adimensionnés construits sur la vitesse d'impact. Clanet *et al.* [39] ont proposé une approche différente qui consiste à imaginer que la goutte s'étale sous l'effet d'une gravité augmentée correspondant à la décélération du liquide au contact du substrat. Cette décélération peut être construite à partir de la vitesse d'im-



FIGURE 5.5 : Etalement normalisé $(R_{max}/R_0 - 1)Re^{-1/5}$ représenté en fonction du paramètre d'impact $WeRe^{-2/5}$ construit sur la vitesse maximale atteinte par la plaque U. Les données enregistrées pour des impulsions de vitesse entre 0.4 et 1 m/s et des gouttes de différent rayons se rassemblent sur une courbe maîtresse. La ligne pointillée est une interpolation entre les lois d'échelle en $We^{1/2}$ et $Re^{1/5}$. Le coefficient d'interpolation est le même que dans la figure 3.3 (A = 3).

pact, elle s'écrit : V^2/R . Nous pouvons alors exprimer l'étalement normalisé à l'aide du nombre de Weber usuel mais avec une loi d'échelle originale : $R_{max}/R_0 \sim We^{1/4}$. Clanet *et al.* ont vérifié la validité de cet argument par des expériences d'impact sur des surfaces superhydrophobes et en soumettant des gouttes initialement au repos à un mouvement à accélération constante.

Notre expérience permet de tester cet argument en accélération à l'aide d'un mouvement impulsionnel dont les caractéristiques sont plus proches de celles d'un impact. Nous pouvons en effet définir une vitesse maximale U au cours de l'impulsion qui serait l'analogue de la vitesse d'impact mais également avoir accès à l'accélération instantanée \ddot{z} . Si nous appelons G la gravité responsable de l'étalement du liquide, la loi d'échelle proposée par [39] s'écrit : $R_{max}/R_0 \sim (\rho R_0^2 G/\gamma)^{1/4}$. Nous avons tracé l'étalement normalisé en fonction de cette loi d'échelle pour deux choix de G: l'utilisation de l'accélération maximale \ddot{z}_{max} ou de l'accélération moyenne $\overline{\ddot{z}}$ (définie comme $\overline{\ddot{z}} = U/\tau$) comme gravité augmentée ne permet pas de décrire pas les variations expérimentales de R_{max} de manière satisfaisante. En revanche, si nous déterminons G à partir de la vitesse maximale atteinte par le substrat, U, l'étalement est prédit par la loi d'échelle de [39] comme lors des impacts. Cependant le lien avec l'accélération subie par la goutte n'est pas clarifié par notre expérience. Nous choisissons d'interpréter la valeur de l'étalement maximal par une interpolation entre les comportement visqueux et inertiel comme introduit aux chapitres 1 et 3. La figure 5.5 montre l'étalement normalisé $(R_{max}/R_0-1)Re^{-1/5}$ en fonction du paramètre d'impact $WeRe^{-2/5}$ où les nombres adimensionnés sont construits sur la vitesse maximale atteinte par le substrat, U. Nos données se rassemblent sur une courbe maîtresse quand on varie la vitesse U et le rayon R des gouttes. La ligne pointillée correspond à l'ajustement que nous avons présenté aux chapitres 1 et reprend le même paramètre ajustable (A = 3)qu'au chapitre 3.

Ce résultat suggère que la vitesse maximale du substrat joue un rôle analogue à la vitesse d'impact en ce qui concerne l'étalement maximal du liquide. Cette analogie est surprenante car les vitesses d'impacts et du substrat sont atteintes à des moments très différents au cours de l'étalement du liquide : initialement lors d'un impact et proche de l'empreinte maximale pour les gouttes frappées.

5.1.3 Décollage

La création d'une cavité suite à un mouvement impulsionnel est due au décollage de la périphérie de la goutte alors que le liquide repose sur le substrat sous une forme étalée. L'étude de la trajectoire verticale du bourrelet (figure 5.4b) nous donne un indice quant à l'origine de ce décollage. Le liquide s'élève au-dessus du substrat avec une trajectoire initialement semblable à celle d'un objet rigide. Nous pouvons alors penser que le liquide, comme le solide, décolle de la plaque par un mécanisme inertiel : c'est à dire à la vitesse U quand l'accélération est égale à -q où q est l'accélération de la gravité. Nous mesurons de manière systématique le temps de décollage τ_d et la vitesse de décollage \dot{h} pour confirmer que nous observons bien un tel comportement. La figure 5.6a montre la variation de τ_d avec le temps auquel la vitesse maximale du substrat est atteinte, τ . Quand $t = \tau$, l'accélération du substrat est nulle et non égale -q. Cependant, au vu des accélérations maximales atteintes (de l'ordre de 100g), nous considèrons que τ est une approximation acceptable de l'instant auquel l'accélération est -g. Nous observons une relation de proportionnalité entre τ_d et τ et ce pour des gouttes de rayon $R_0 = 1.0$ mm et 1.8 mm ainsi que pour des billes solides. L'ajustement, matérialisé par la ligne pointillée, possède une pente 1.25 ce qui montre que le décollage se fait après $t = \tau$ soit après que le substrat ait décéléré.

Le scénario inertiel est également confirmé par la mesure de la vitesse de décollage hen fonction de la vitesse maximale U (figure 5.6b). \dot{h} varie linéairement avec U et cette



FIGURE 5.6 : **a** Temps de décollage τ_d mesuré en fonction de τ pour des gouttes de rayon $R_0 = 1.0$ mm et 1.8 mm (points verts et noirs) ainsi que pour des billes solides (carrés rouges). On observe une relation de proportionnalité entre τ_d et τ avec un coefficient 1.25 (ligne pointillée). **b** Vitesse de décollage du bourrelet \dot{h} en fonction de la vitesse maximale de la plaque U. La ligne pointillée a une pente 1.

relation de proportionnalité, mise en évidence par la droite pointillée de pente 1, ne dépend pas de la taille des gouttes. Les gouttes décollent avec une vitesse égale à celle du substrat.

5.1.4 Dynamique du film mince

La totalité du liquide ne quitte pas le substrat à la manière d'un solide. Dès le décollage du bourrelet à l'instant $t = \tau_d$, le film mince présent au centre de la goutte se rétracte avec une vitesse constante (figure 5.4a) : un comportement caractéristique du démouillage inertiel que l'on observe également lors d'un rebond (voir chapitre 1). Nous modélisons cette variation à vitesse constante par un mécanisme de type Taylor-Culick [42, 43]. Le film mince, d'épaisseur ε , se rétracte sous l'action de la tension de surface à laquelle s'oppose l'inertie du liquide collecté dans le reste de la goutte (le bourrelet et le film en vol). Cet équilibre nous permet de prédire l'épaisseur du film mince à partir de la mesure de la vitesse de rétraction : $\varepsilon = 2\gamma/\rho \dot{r}^2$. Nous mesurons \dot{r} pour des gouttes de rayon $R_0 = 1.0$ mm et 1.8 mm soumises à différents mouvement impulsionnels. La vitesse de rétraction du film liquide se situe entre 0.45 et 1.15 m/s ce qui correspond à des épaisseurs de l'ordre de la dizaine à la centaine de micromètres. Nos mesures confirment que le démouillage a lieu dans le régime inertiel : le nombre de Reynolds associé à cet écoulement de vitesse typique 1 m/s et de taille caractéristique ε est de l'ordre de 100. L'ordre de grandeur de ε est en accord avec les épaisseurs mesurées lors d'impact de gouttes sur des substrats hydrophobes et superhydrophobes [35, 37].

Nous pouvons être plus quantitatif en écrivant la conservation du volume, $R_{max}^2 \varepsilon \sim R_0^3$, qui permet d'exprimer la vitesse de rétraction non plus en fonction de l'épaisseur, à laquelle nous n'avons pas accès, mais en fonction des rayons maximal et initial de la goutte : $\dot{r} = R_{max}\sqrt{2\gamma/(\rho R_0^3)}$. La figure 5.7 donne les valeurs de la vitesse de démouillage en fonction du rayon maximal atteint par la goutte. Pour les deux rayons R_0 ($R_0 = 1.0$ mm points verts, $R_0 = 1.8$ mm, points noirs), nous observons un comportement relativement linéaire souligné par les lignes pointillées dont les pentes sont prédites par la conservation du volume. La dispersion des données est liée à la mesure de la vitesse de rétraction qui dépend fortement des bornes choisies pour l'ajustement linéaire effectué sur r(t).

Connaître l'épaisseur du film central nous permet d'estimer la répartition du liquide dans les cavités. Dans l'expérience présentée à la figure 5.4, une goutte de rayon $R_0 = 1.8$ mm s'étale jusqu'à ce que son rayon de contact atteigne ≈ 4 mm. L'épaisseur du film liquide déduite de la mesure de la vitesse de rétraction est $\varepsilon \simeq 200$ µm. Le volume du film est de 10 µL soit 40% du volume total de la goutte. Cette estimation confirme la concentration du liquide à la périphérie de la goutte remarquée dans les images de la figure 5.2.



FIGURE 5.7 : Vitesse de rétraction \dot{r} du film mince en fonction du rayon maximal d'étalement R_{max} lors de mouvements impulsionnels pour des gouttes de rayon initial $R_0 = 1.0$ mm (points verts) et $R_0 = 1.8$ mm (points noirs). Les droites pointillées ont des pentes 0.157 et 0.379 et correspondent à la prédiction $\dot{r} = R_{max}\sqrt{2\gamma/(\rho R_0^3)}$ dérivée dans le texte.

5.1.5 Dynamique du bourrelet

Nous modélisons également l'évolution du bourrelet depuis son décollage jusqu'à l'effondrement de la cavité. Les mesures de R(t) et h(t) (figure 5.4) indiquent que le tore s'élève tout en se contractant. Nous déterminons les dynamiques horizontale et verticale en réalisant un bilan des forces s'exerçant sur le tore, dont nous notons M la masse.

Hauteur

Nous avons remarqué que le liquide s'élève bien plus lentement qu'une bille soumise à la même impulsion, nous réalisons l'inventaire des forces susceptibles de freiner le mouvement balistique du tore. Nous recensons quatre forces agissant dans la direction verticale : (i) la gravité, $F_g = Mg$, qui vaut de l'ordre de 100 μ N, (ii) la trainée aérodynamique, F_a , (iii) la force de succion, F_s , créée par l'air entraîné sous le liquide au moment du décollage du bourrelet et (iv) la force exercée par le film liquide qui connecte le bourrelet au substrat, F_{γ} . Pour estimer l'ordre de grandeur de la force aérodynamique s'exerçant sur le bourrelet, Nous évaluons d'abord le nombre de Reynolds $Re = \rho_g R_{max} h/\eta_g$ associé à cet écoulement. Pour une vitesse de l'ordre du m/s et un rayon de quelques millimètres, le nombre de Reynolds est de l'ordre de 1000 : nous nous trouvons dans le régime inertiel. Nous pouvons alors écrire $F_a \approx \rho_a R_{max}^2 \dot{h}^2$. La trainée est de l'ordre de quelques μ N. Il est plus difficile d'évaluer la force de succion, nous choisissons de la négliger dans notre analyse car l'angle que forme la cavité ne favorise pas la création d'un film de lubrification entre le liquide et le substrat. La force exercée sur le tore par le film liquide le reliant au substrat est maximale quand le bourrelet atteint son extension limite. Nous écrivons $F_{\gamma} \approx 4\pi R\gamma$, une force de l'ordre de 1 mN.

La traction exercée par le film est supérieure d'un ordre de grandeur aux autres forces s'exerçant sur le bourrelet. La seconde loi de Newton dans la direction verticale s'écrit : $d^2(Mh)/dt^2 \simeq -F_{\gamma}$. Le tore représentant environ 60% de la masse initiale de liquide, nous



FIGURE 5.8 : **a** et **b** Accélérations mesurées lors de la montée, \ddot{h} , et la fermeture, \ddot{R} , du tore en fonction de l'accélération prédite par un bilan de force $\frac{\gamma R_{max}}{\rho R_0^3}$. Les dynamiques horizontale et verticale sont prédites par le modèle comme le souligne l'ajustement par les lignes pointillées de pente 2.1. (insert) Vue de trois-quart de cavité générée par le mouvement présentée dans la figure 5.2 au moment de son extension maximale qui permet d'identifier le rapport d'aspect du tore. Ici, on mesure $R_{max}/a_{max} \simeq 7$.

considèrons M comme une constante entre le décollage et l'effondrement de la cavité. En loi d'échelle nous obtenons alors $\ddot{h} \sim \gamma R_{max}/(\rho R_0^3)$ si nous négligons à la fois la variation de rayon du tore ainsi que la projection sur la direction verticale de la force capillaire. Dans cette expression nous évaluons la force capillaire au début du mouvement quand Rest proche de R_{max} , c'est à dire quand la force est maximale.

Diamètre

Nous réalisons également un bilan de force dans la direction horizontale pour comprendre le mécanisme de rétraction du tore. Deux forces peuvent être à l'origine de ce mouvement : la projection horizontale de la force de traction exercée par le film liquide F_{γ} et la différence de pression de Laplace entre l'intérieur et l'extérieur du tore. La force liée à cette différence de pression s'écrit $F_p \sim 2\gamma R_0^3/(R_{max}a_{max})$ où a_{max} est le petit diamètre du tore quand celui-ci atteint son extension maximale [74]. Nous éliminons R_0 de la formule précédente en utilisant la conservation du volume, nous trouvons alors que le rapport F_{γ}/F_p se comporte comme le rapport R_{max}/a_{max} au premier ordre. Nous évaluons une valeur typique de ce rapport dans le cas de l'impulsion présentée dans la figure 5.2. L'insert de la figure 5.8b montre une vue de trois-quart de la cavité au moment de son extension maximale lors de ce mouvement ; nous mesurons $R_{max}/a_{max} \simeq 7$. Nous en concluons que la force exercée par le film est la force dominante.

Nous écrivons alors l'équation de la dynamique dans la direction horizontale : $\ddot{R} \sim \gamma R_{max}/(\rho R_0^3)$ avec les mêmes approximations qu'au paragraphe précédent. Nous vérifions que nous avons correctement identifié les forces en jeu en représentant les accélérations \ddot{h} et \ddot{R} obtenues par des ajustements sur h(t) et R(t) en fonction de l'accélération prédite $\frac{\gamma R_{max}}{\rho R_0^3}$ (figure 5.8a et figure 5.8b respectivement). Nous trouvons une relation linéaire
CHAPITRE 5. SURFACES ACTIVES

entre l'accélération mesurée et prédite dans les deux directions pour des gouttes de quatre rayons différents et des impulsions variées. Les lignes pointillées ont toutes deux une pente 2.1; un préfacteur satisfaisant compte tenu des nombreuses approximations réalisées. Les barres d'erreur élevées pour les mesures de \ddot{h} traduisent la forte variation de l'accélération mesurée avec les points de départ et de fin de l'ajustement.

5.1.6 Contrôle des formes transitoires

La forme des cavités est déterminée par l'interaction entre les dynamiques du bourrelet et du film mince qui reste au contact du substrat. Notre compréhension de ces dynamiques nous permet d'identifier des moyens de modifier la silhouette des cavités. Changer l'impulsion que nous imposons ne permet pas de modifier de manière drastique la forme adoptée par le liquide car le mouvement du substrat influence à la fois l'évolution du bourrelet et du film mince. Au contraire, la dynamique du liquide restant au contact du solide peut être modifiée de manière indépendante : la vitesse de rétraction du film mince dépend de l'angle de reculée de l'eau sur le substrat [45, 44]. Nous visualisons les cavités engendrées en imposant la même impulsion (U = 1.9 m/s et $\tau = 5.9 \pm 0.2 \text{ ms}$) à des gouttes de rayon $R_0 = 1.8 \text{ mm}$ déposées sur des matériaux présentant des angles de reculée différents. Nous comparons les silhouettes obtenues, au même instant t après le décollage, sur un matériau silanisé (trichloroperfluorooctylsilane) d'angle de reculée $\theta_r = 80 \pm 5^{\circ}$ (figure 5.9a), sur une surface superhydrophobe à piliers d'angle de reculée $\theta_r = 145 \pm 5^{\circ}$ (figure 5.9b) et sur le substrat traité par application d'Ultra Ever Dry d'angle de reculée $\theta_r = 159 \pm 2^{\circ}$ (figure 5.9c). Sur ces trois matériaux, l'étalement du liquide est semblable. Plus l'angle de reculée augmente (de gauche à droite), plus la vitesse de démouillage augmente : la forme des cavités passe continûment d'une forme cylindrique à une forme conique. Nous remarquons aussi que plus les parois de la cavité sont verticales, moins le bourrelet s'élève haut et plus son rayon est grand. Cette observation s'explique par la projection verticale et horizontale de la force de traction exercée par le film et confirme que nous avons identifié la force contrôlant la dynamique du tore.

Au-delà de la compréhension des formes adoptées par le liquide, la création de cavités intrigue. On peut se demander pourquoi une partie du liquide reste au contact du substrat quand on est dans une situation aussi proche du non-mouillage. Pour mettre en évidence le rôle de l'adhésion, nous réalisons deux expériences où l'adhésion est nulle. Dans un premier temps, nous remplaçons la goutte par une bille liquide [7] obtenue en couvrant la surface du liquide de grains silanisés. Le contact liquide/solide est alors totalement supprimé et remplacé par un contact solide/solide entre le substrat et les particules présentes à la surface de la goutte. La seconde expérience consiste à porter notre substrat à la température de 300 °C puis à y déposer une goutte d'un mélange eau-éthanol. Le liquide est alors en caléfaction : il est séparé du solide par un film de sa propre vapeur qui s'écoule radialement. Lorsque nous soumettons ces deux gouttes à un mouvement impulsionnel, elles s'étalent puis décollent dans leur totalité presque immédiatement. Les figures 5.9d



FIGURE 5.9 : **a**, **b** et **c** Vues de côté au même instant après le décollage des cavités obtenues en soumettant une goutte ($R_0 = 1.8 \text{ mm}$) à un même mouvement impulsionnel (U = 1.9 m/set $\tau = 5.9 \pm 0.2 \text{ ms}$) sur 3 substrats caractérisés par des angles de reculées de $\theta_r = 80 \pm 5^{\circ}$, $\theta_r = 145 \pm 5^{\circ}$ et $\theta_r = 159 \pm 2^{\circ}$ (de gauche à droite). Quand l'angle de reculée augmente, la forme de la cavité passe continument d'un cylindre à un cône. **d** Instantané d'une bille liquide quelques instants après son décollage. Il n'y a plus de contact entre le liquide et la surface mais le centre de la goutte est courbé vers le substrat. **e** Vue de côté d'une goutte initialement en caléfaction quelques instants après son décollage. Le liquide décolle sous la forme d'un disque.

et e montrent les gouttes après quelques millisecondes de vol. Dans les deux cas il n'y a pas de contact entre liquide et solide; la suppression de l'adhésion permet le décollage de tout le liquide d'un seul tenant à la manière d'un solide. La bille liquide adopte une forme courbée (figure 5.9c). Nous supposons que cette forme est la conséquence de la force de succion générée par le film de lubrification qui se crée quand la goutte commence à s'élever. En effet, la présence de grains dispersés dans l'air permet, par un heureux hasard, de visualiser l'écoulement de l'air. Le déplacement des grains depuis la périphérie vers le centre de la goutte étalée confirme la présence d'une dépression et donc d'une succion. Cette forme courbée n'est pas présente dans le cas d'une goutte en caléfaction. Nous avançons deux hypothèses pour expliquer cette différence : le film de vapeur a une épaisseur de l'ordre de 100 µm qui réduit la lubrification par rapport à une bille liquide et l'écoulement de la vapeur vers l'extérieur s'oppose à l'écoulement de lubrification qui se déplace dans la direction opposée. Constater l'effet de la succion dans le cas d'une bille liquide n'est pas contradictoire avec notre hypothèse consistant à négliger ce même phénomène sur une surface superhydrophobe. En effet, le film liquide qui reste en contact avec la surface empêche la création d'un film de lubrification au centre de la goutte.

5.1.7 Sculptures liquides éphémères

Cette expérience, de par son attrait scénographique, a été l'occasion d'une collaboration artistique avec Benoît Pype qui réalise un doctorat art et science dans notre équipe. Son approche, qui contraste avec notre recherche habituelle de simplicité, a permis de faire émerger des formes nouvelles à travers l'utilisation de substrats et de liquides complexes. La figure 5.10 présente une sculpture liquide éphémère. Cet instantané illustre la richesse des formes que l'on peut créer grâce à un mouvement impulsif et un liquide complexe, ici

CHAPITRE 5. SURFACES ACTIVES



FIGURE 5.10 : Sculpture éphémère créée en soumettant trois gouttes de peinture blanche à un mouvement impulsif. Ce cliché fait partie de la série *ballets furtifs* de Benoît Pype.

de la peinture blanche.

5.2 Impact sur une surface activable

Nous étudions également l'impact d'une goutte d'eau distillée (densité $\rho = 1000 \text{ kg/m}^3$, tension de surface $\gamma = 72 \text{ mN/m}$) sur un substrat dont nous pouvons contrôler le mouvement. Nous présentons ici un aperçu qualitatif des phénomènes observés dans l'optique de montrer comment la compréhension acquise par l'étude des gouttes frappées se transfère à l'étude du rebond. L'enjeu de ce projet est d'être capable de déclencher le mouvement à un moment choisi au cours de l'impact. Pour ce faire, le contact de la goutte avec le substrat est détecté à l'aide d'un capteur de force basé sur la technologie MEMS [103] dont le signal est utilisé comme déclencheur (figure 5.11). Un mouvement impulsionnel est transmis au substrat par l'intermédiaire d'un pot vibrant contrôlé par un amplificateur de courant et un générateur de signaux. Nous réalisons des impacts sur deux types de matériaux superhydrophobes. Dans un premier temps, nous utilisons des substrats rendus non-mouillants par application de Glaco (Soft 99) puis dans un second temps des matériaux présentant un double niveau de texturation. Le premier niveau est constitué d'un réseau carré de piliers ou de pyramides micrométriques. Le second niveau est ajouté à postériori par un traitement au Glaco (Soft 99) qui crée une rugosité nanométrique. Ces deux matériaux



FIGURE 5.11 : Schéma de principe de l'impact sur un substrat activable. Nous faisons tomber une goutte d'eau (Rayon R, Vitesse V) sur une surface non-mouillante. Le contact est détecté par un capteur de force de type MEMS implanté sur la surface qui déclenche le mouvement du substrat contrôlé par un pot vibrant.

possèdent les angles de contact élevés caractéristiques de la superhydrophobie; les matériaux à double texture se distinguent par une adhésion réduite. La vitesse d'impact V est variée entre 0.3 et 2 m/s en ajustant la hauteur des aiguilles calibrées à partir desquelles sont produites des gouttes de rayon R varié entre 0.6 à 1.4 mm. Nous enregistrons des vues de côté de chaque impact avec une caméra rapide fonctionnant à 10000 im/s. Ces vues de côté nous permettent de déterminer mouvement vertical de la plaque, z(t). Nous générons des mouvements d'amplitude millimétrique et de temps caractéristique de l'ordre de quelques millisecondes.

La figure 5.12a présente une séquence d'images de l'impact d'une goutte (R = 1.15 mm, V = 1.0 m/s) sur un substrat à un niveau de rugosité auquel nous imposons un mouvement d'amplitude maximale ~ 1 mm atteinte après ~ 3 ms dès que le liquide entre en contact avec la surface. La goutte s'étale et prend une forme aplatie. Ensuite la périphérie du liquide décolle pendant que le centre reste lié au substrat, ce qui entraîne la formation d'une cavité conique dont la forme rappelle les gouttes frappées. Le liquide quitte totalement le substrat après 5.4 ms, un temps de rebond réduit de moitié par rapport à celui mesuré sur le même substrat immobile. L'impact d'une goutte de même rayon sur un substrat présentant un double niveau de rugosité fait l'objet de la figure 5.12b. Nous imposons une impulsion d'amplitude similaire mais de temps caractéristique légèrement plus faible que précédemment. Le liquide s'étale de façon similaire mais décolle sous une forme aplatie. Le temps de contact est de 2.5 ms, un temps très faible comparé au temps de rebond sur le même substrat immobile $\tau_0 = 11.2$ ms.

Les formes adoptées par le liquide au cours du rebond rappellent celles des gouttes frappées. Nous obtenons, ici, une seconde confirmation dur rôle joué par l'adhésion entre le liquide et la surface dans la formation des cavités. A la lumière de l'étude précédente, nous proposons une interprétation des temps de rebond obtenus dont la validation quantitative est un travail en cours. Si l'on suppose que le mécanisme de décollage inertiel est conservé lors de l'impact, le temps de décollage de la périphérie de la goutte, sur un sub-



FIGURE 5.12 : a Vue de côté de l'impact d'une goutte (R = 1.15 mm, V = 1.0 m/s) sur une surface superhydrophobe à laquelle nous imposons un mouvement impulsionnel dès le début du contact. Nous observons la formation de cavités coniques et le décollage du liquide après 5.4 ms un temps réduit de 50% par rapport au temps de contact usuel. b Vue de côté de l'impact d'une goutte (R = 1.15 mm, V = 0.4 m/s) sur une surface superhydrophobe à deux niveaux de rugosité. Nous imposons un mouvement impulsionnel quand le liquide entre en contact avec le substrat. La goutte décolle sous une forme aplatie après 2.5 ms, un temps 80% plus court que le temps de rebond sur la même surface maintenue immobile.

strat au Glaco, ou de la goutte toute entière, sur un substrat à deux niveaux de rugosité, est contrôlé par le temps auquel la goutte subit une accélération nulle. Ainsi, le temps de rebond est directement déterminé par le mouvement que nous imposons au substrat quand l'adhésion est négligeable ou bien dépend à la fois du mouvement imposé au substrat et du temps nécessaire au démouillage du liquide restant au contact de la surface après le décollage de la périphérie.

L'intérêt du mécanisme proposé est double : nous pouvons contrôler le temps de rebond en jouant sur les caractéristiques de l'impulsion et nous pouvons obtenir des temps de contact très faibles, jusqu'à une réduction de 80% par rapport au temps usuel.

5.3 Conclusion

L'étude des surfaces actives nous a permis de mettre en évidence de nouvelles formes liquides auxquelles nous avons donné vie en mêlant non-mouillage et mouvement impulsionnel. Nous observons la formation, l'évolution et l'effondrement de cavités coniques. La description et la compréhension de ces formes a débouché sur un constat étonnant : la faible adhésion des matériaux superhydrophobes est suffisante pour empêcher le décollage complet du liquide à la manière d'un solide. Ce constat, ainsi que la difficulté à rendre des membranes souples superhydrophobes, permet de comprendre notre utilisation de billes liquides lors des expériences du chapitre 4. L'absence d'adhésion nous a permis d'obtenir des mesures répétables du temps de contact en inhibant la formation de cavités. L'étude des gouttes frappées nous a également fourni un moyen original de tester la loi d'échelle prédisant l'étalement maximal d'une goutte lors d'un impact par un bilan de force.

5.3. CONCLUSION

Nous avons ensuite mêlé impulsion et impact dans une expérience rappelant le trampoline à goutte présenté au chapitre 4. Cette expérience est avant tout un défi expérimental : il faut synchroniser le mouvement du substrat avec l'impact ce que nous avons fait à l'aide d'un capteur de force de type MEMS. Une fois cet obstacle franchi, nous avons mis en évidence des temps de contact extrêmement brefs et contrôlables à travers le choix de l'impulsion. Cette étude est complémentaire du travail réalisé sur les membranes flexibles car elle nous permet de nous intéresser aux caractéristiques (amplitude minimale par exemple) de l'impulsion nécessaires à réfléchir un liquide.

Chapitre 6

Rebond et viscosité

Retour à la table des matières

Sommaire

| 6.1 | Expérience | | |
|-----|--|--|--|
| | 6.1.1 Coefficient de restitution | | |
| | $6.1.2 \text{Temps de contact} \dots \dots$ | | |
| 6.2 | Etalement | | |
| 6.3 | Rétraction | | |
| 6.4 | Analyse Energétique | | |
| 6.5 | Conclusion et perspectives | | |

L'étude du rebond de gouttes visqueuses a été commencée par Aditya Jha au cours de son stage de Master et se poursuit maintenant avec le début de sa thèse dans l'équipe.

Nous avons vu au chapitre 1 que l'étalement et la rétraction d'une goutte lors de son impact sur un solide sont influencés par la viscosité du liquide [35, 30, 36, 41]. Cette influence peut s'exprimer à travers le nombre de Reynolds qui compare effets inertiels et visqueux ou à travers le nombre d'Ohnesorge qui compare les effets capillaires et visqueux. Ces études sont menées dans des situations où le liquide se dépose sur le substrat. Les exemples de rebond de gouttes visqueuses sont rares dans la littérature; ils sont obtenus dans des situations où le liquide et le solide ne rentrent pas en contact. De Ruiter *et al.* [18] ont montré que des liquides faiblement visqueux ($\eta \sim 10$ mPa.s) peuvent rebondir sur un solide à faible vitesse d'impact (We < 4) quand un film de lubrification empêche le contact entre le liquide et le solide. Couder *et al.* [19] et Gauthier *et al.* [104] ont fait rebondir des gouttes visqueuses sur un film d'air en imposant un mouvement à la surface ce qui permet de rendre plus robuste le phénomène observé par [18].

Nous nous intéressons ici à l'impact de gouttes visqueuses de tension de surface élevée sur une surface superhydrophobe. Nous nous interrogons sur l'existence d'une viscosité limite au-delà de laquelle le rebond est supprimé et plus généralement sur l'influence de la viscosité sur les transferts d'énergie au cours du rebond. Nous étudions aussi les changements possibles du mécanisme de rebond que nous avons décrit au chapitre 1, notamment nous caractérisons l'effet de la viscosité sur l'empreinte maximale et la rétraction du liquide.

6.1 Expérience

Nous réalisons des impacts de gouttes formées à partir de mélanges eau-glycérol dont nous pouvons faire varier la viscosité entre 1 et 1200 mPa.s. La densité du liquide, ρ , varie entre celle de l'eau (1000 kg/m³) et celle du glycerol (1260 kg/m³ à 20°C) et sa tension de surface, γ , est comprise entre 63 mN/m, la tension de surface du glycerol, et 72 mN/m, la tension interfaciale de l'eau. Le substrat est rendu superhydrophobe par application d'un traitement en spray (Ultra Ever Dry). Après évaporation du solvant, la surface est recouverte de billes nanométriques hydrophobes qui lui confèrent la chimie de surface et la rugosité nécessaire à l'obtention de la superhydrophobie. Des gouttes de rayon R = 0.95mm sont obtenues à partir d'une aiguille calibrée. La vitesse d'impact, V, est variée entre 0.1 et 2.5 m/s en ajustant la hauteur de chute du liquide. Nous enregistrons des vues de côté à la cadence de 10000 im/s.



FIGURE 6.1 : a Vue de côté de l'impact d'une goutte (R = 0.95 mm, V = 0.71 m/s) de viscosité $\eta = 20 \text{ mPa.s.}$ Le rebond est conservé ; le liquide rebondit après $\tau = 9.5 \text{ ms}$, un temps comparable à celui observé lors de l'impact d'une goutte d'eau $\tau_0 = 9.36 \pm 0.1 \text{ ms}$. Nous mesurons lors de chaque impact le rayon de contact r(t). b Temps de contact τ en fonction de V lors de l'impact d'une goutte (R = 0.95 mm) de viscosité $\eta = 20 \text{ mPa.s.}$ Pour des vitesse supérieures à 1 m/s, nous observons une augmentation du temps de contact, τ , avec V au-delà de la valeur τ_0 (ligne pointillée). c Coefficient de restitution ε en fonction de la vitesse d'impact pour des gouttes (R = 0.95 mm) de viscosité $\eta = 20 \text{ mPa.s.}$ L'élasticité maximale du rebond, qu'on appelle ε^* , est réduite par rapport à celle d'une goutte d'eau. Nous notons V^* la vitesse à laquelle $\varepsilon = \varepsilon^*$.

6.1. EXPÉRIENCE

La figure 6.1a montre une séquence d'images de l'impact d'une goutte de viscosité $\eta = 20$ mPa.s à une vitesse V = 0.71 m/s. Malgré une viscosité 20 fois supérieure à celle de l'eau, le liquide rebondit. L'impact de la goutte visqueuse semble qualitativement similaire à celui d'une goutte d'eau. Le liquide s'étale jusqu'à atteindre son extension maximale R_{max} puis il se rétracte et décolle, à la vitesse V', sous une forme verticale allongée au temps $\tau = 9.5$ ms comparable à celui observé lors de l'impact d'une goutte d'eau sur une surface de même mouillage, τ_0 . Nous remarquons l'absence des ondes capillaires (t = 1.6 ms) qui donnent une forme pyramidale à la surface des gouttes d'eau au début de l'impact [26]. On peut penser que la viscosité amortit ces ondes et empêche leur propagation.

Le rebond étant préservé, nous pouvons mesurer le temps de contact τ d'un liquide visqueux en fonction de la vitesse d'impact V. Nous présentons dans la figure 6.1b les variations du temps de rebond τ d'une goutte visqueuse ($\eta = 20$ mPa.s) en fonction de V. Pour V < 1 m/s, τ possède un comportement similaire à celui d'une goutte d'eau : il augmente à faible vitesse d'impact (V < 0.3 m/s) puis observe un plateau à la valeur τ_0 , correspondant au temps obtenu pour une goutte d'eau, représentée par la ligne pointillée noire. A des vitesses supérieures, nous observons une augmentation inhabituelle de τ avec V. Le temps de rebond prend une valeur 20% supérieure à τ_0 quand V = 2 m/s.

Nous mesurons également le coefficient de restitution $\varepsilon = V'/V$ en fonction de la vitesse d'impact. La détermination directe de la vitesse V' à travers la mesure de la position du centre de masse du liquide est délicate quand le liquide présente de grandes déformations au moment du décollage. Dans cette étude, nous déterminons V' à partir du temps tauquel la goutte atteint le sommet de sa trajectoire ; nous avons alors V' = gt. ε augmente à faible vitesse jusqu'à atteindre son maximum $\varepsilon^* = 0.6$ à la vitesse $V^* = 0.2$ m/s (figure 6.1c). Quand $V > V^*$, nous observons une décroissance du coefficient de restitution avec la vitesse d'impact. Ce comportement est analogue à celui rapporté par Richard *et al.* [15]. L'utilisation d'une goutte 20 fois plus visqueuse que l'eau entraine une diminution de 35% de l'élasticité du rebond. Le coefficient de restitution mesure l'énergie perdue par le liquide au cours du rebond, nous attendons bien une diminution de ε lorsque l'on augmente la viscosité du liquide.

6.1.1 Coefficient de restitution

Nous étudions de manière systématique les variations de la courbe $\varepsilon(V)$ en augmentant progressivement la viscosité η des mélanges eau-glycérol utilisés. Le premier résultat de cette expérience est l'obtention de la viscosité limite au-delà de laquelle les gouttes (R = 0.95 mm) ne rebondissent plus. Nous observons que le liquide ne quitte plus le substrat quand $\eta \ge 200 \text{ mPa.s.}$ Nous présentons les variations du coefficient de restitution en fonction de la vitesse d'impact pour des viscosités variées entre 1 et 150 mPa.s à la figure 6.2a. Plus la viscosité augmente, plus l'élasticité maximale du rebond diminue. Ainsi pour



FIGURE 6.2 : a Coefficient de restitution ε mesuré en fonction de V pour des gouttes (R = 0.95 mm) de viscosité comprises entre 1 et 150 mPa.s. Quand η augmente, $\varepsilon(V)$ présente une évolution similaire mais dont l'amplitude est réduite. b Coefficient de restitution normalisé $\varepsilon/\varepsilon^*$ en fonction de V. Les courbes obtenues pour des viscosités variées entre 1 et 150 mPa.s se superposent (même légende).

une goutte d'eau, nous obtenons $\varepsilon^* \approx 0.9$ alors que pour un mélange eau-glycérol 150 fois plus visqueux nous mesurons $\varepsilon^* \approx 0.2$. La viscosité ne change pas le comportement de $\varepsilon(V)$. Quand η augmente, la courbe reste la même; seule son amplitude est réduite. Les courbes présentées dans la figure 6.2a se rassemblent lorsque nous représentons le coefficient de restitution normalisé par son élasticité maximale, $\varepsilon/\varepsilon^*$, en fonction de V (figure 6.2b).

Nous pouvons alors caractériser l'effet de la viscosité du liquide sur l'énergie dissipée au cours du rebond à travers la mesure de l'amplitude maximale ε^* pour différents mélanges eau-glycérol. Nous représentons dans la figure 6.3a l'évolution de ε^* en fonction de η . L'énergie disponible après le rebond diminue avec des viscosités croissantes. La variation de ε^* avec η semble complexe. Nous confirmons que seule l'amplitude du coefficient de restitution est affectée par l'augmentation de la viscosité en reportant les valeurs de V^*



FIGURE 6.3 : a Elasticité maximale du rebond ε^* mesurée en fonction de la viscosité du liquide η . Quand $\eta > 150$ mPa.s, des gouttes de rayon R = 0.95 mm cessent de rebondir. b Variation de la vitesse V^* en fonction de η . L'élasticité maximale du rebond est atteinte à une vitesse V^* de l'ordre de 0.2 m/s qui ne dépend pas de la viscosité du liquide.

pour toutes les viscosités η testées (figure 6.3b). V^* ne dépend pas de η : nous trouvons $V^* \simeq 0.2$ m/s.

6.1.2 Temps de contact

Pour $\eta < 200$ mPa.s, le liquide rebondit. Nous pouvons mesurer, dans ce régime, le temps de contact τ en fonction de la vitesse pour des liquides dont nous faisons varier la viscosité. La figure 6.4a présente le temps de contact de gouttes (R = 0.95 mm) dont la viscosité varie entre 1 et 150 mPa.s en fonction de la vitesse d'impact V. Nous distinguons deux régimes d'évolution du temps de rebond τ . A vitesse d'impact élevée (V > 1 m/s), τ croit avec V et ce d'autant plus que la viscosité du liquide est élevée. Nous observons des temps de rebond jusqu'à deux fois supérieurs au temps contact constant τ_0 d'une goutte d'eau sur la même surface. Au contraire pour des vitesses V plus faibles, les gouttes d'eau et les gouttes visqueuses ont le même temps de rebond. τ croit à faible vitesse d'impact (V < 0.3 m/s) puis rejoint un plateau dont la valeur est $\tau_0 = 9.36 \pm 0.1$ ms pour une goutte d'eau. L'indépendance des valeurs de τ par rapport à la viscosité du liquide impactant dans ce régime est illustrée par le rassemblement des données sur les figures 6.4a et 6.4b qui présente un zoom à faible V.

Nous n'essayons pas d'expliquer la croissance du temps de contact observée à haute vitesse d'impact. Dans ce régime, nos images révèlent une augmentation inhabituelle de l'adhésion entre les gouttes visqueuses et le substrat ce qui a un effet notable sur le temps de rebond. Nous sommes incapables de distinguer entre un effet lié à la viscosité et un effet, que nous souhaitons éviter, de mouillage.



FIGURE 6.4 : **a** Temps de contact τ en fonction de la vitesse d'impact V lors de l'impact de gouttes (R = 0.95 mm) d'un mélange eau-glycerol dont la viscosité varie entre 1 et 150 mPa.s. Le temps de contact croit avec la vitesse d'impact au-delà de $V \approx 1 \text{ m/s}$ et ce d'autant plus que η est élevé. **b** Même tracé focalisé sur les vitesses d'impact inférieures à 0.4 m/s. Le temps de contact est indépendant de la viscosité du liquide impactant (même légende).

6.2 Etalement

Nous mesurons l'étalement maximal atteint lors du rebond de gouttes (R = 0.95 mm) formées à partir de mélanges eau-glycérol dont la viscosité varie entre 1 et 150 mPa.s. Pour une vitesse d'impact fixée, plus le liquide est visqueux moins il s'étale. Nous interprétons cette empreinte maximale comme résultant d'un équilibre entre inertie, capillarité et dissipation visqueuse. Nous interpolons un comportement moyen entre les lois d'échelles équilibrant inertie et capillarité ($R_{max}/R \sim We^{1/2}$) et équilibrant inertie et dissipation visqueuse ($R_{max}/R \sim Re^{1/5}$) comme proposé par [36] et présenté au chapitre 1. Nous modifions cette loi pour la rendre valide pour de faibles déformations (We < 10) du liquide en introduisant le rapport ($R_{max} - R$)/R qui prescrit un rayon d'étalement minimal R_0 pour un impact à vitesse quasi-nulle. La figure 6.5 montre l'étalement visqueux normalisé ($R_{max}/R - 1$) $Re^{-1/5}$ en fonction du paramètre d'impact $P = WeRe^{-2/5}$. Les données se rassemblent sur une courbe maîtresse mise en valeur par la ligne pointillée qui représente l'ajustement entre les deux loi d'échelles asymptotiques sous la forme proposée par [40] : ($R_{max}/R - 1$) $Re^{-1/5} = P^{1/2}/(A + P^{1/2})$. A est un paramètre ajustable dont la valeur est ici A = 2.44.



FIGURE 6.5 : Etalement visqueux normalisé $(R_{max}/R - 1)Re^{-1/5}$ en fonction de $WeRe^{-2/5}$ lors de l'impact de gouttes (R = 0.95 mm) dont on fait varier la viscosité entre 1 et 150 mPa.s. la ligne pointillée qui ajuste les données est une interpolation entre les lois d'échelles en $We^{1/2}$ et $Re^{1/5}$. Le paramètre ajustable A vaut ici, A = 2.44.

6.3 Rétraction

Nous évaluons aussi les conséquences de l'augmentation de viscosité sur la vitesse de rétraction du liquide. Nous déduisons de l'évolution temporelle du rayon de contact r(t), mesurée lors de chaque impact, la vitesse de rétraction, \dot{r} , du liquide définie comme la valeur absolue de la pente maximale observée lors de la phase de rétraction (figure 6.6a, $V = 1.74 \text{ m/s}, \eta = 60 \text{ mPa.s}$). Nous n'observons pas le rassemblement des courbes r/R_{max} en fonction du temps pour différentes vitesses d'impact mis en évidence par Bartolo *et al.* [41] sur des substrats hydrophobes. Cette différence s'explique par 2 constatations : (i) le temps auquel l'étalement maximal est atteint semble dépendre faiblement de la vitesse



FIGURE 6.6 : **a** Evolution temporelle du rayon de contact r(t) lors de l'impact d'un goutte de viscosité $\eta = 60$ mPa.s à la vitesse V = 1.74 m/s. Nous mesurons la vitesse de rétraction \dot{r} durant la phase où le liquide démouille à vitesse constante. **b** Taux de rétraction \dot{r}/R_{max} représenté en fonction du nombre de Weber lors de l'impact de gouttes dont la viscosité varie entre 1 et 1200 mPa.s. Quand η est fixé, le taux de rétraction ne dépend pas de la vitesse d'impact.

d'impact et (ii) la phase de décollage, qui n'existe pas sur les surfaces hydrophobes, possède un comportement distinct (voir chapitre 1). Malgré ces différences, le taux de rétraction \dot{r}/R_{max} ne dépend pas de la vitesse d'impact ce que nous mettons en évidence dans la figure 6.6b où nous représentons pour chaque viscosité testée le taux de rétraction en fonction du nombre de Weber.

Le taux de rétraction semble dépendre faiblement de la viscosité : il est de l'ordre de 100 pour des viscosités variées entre 1 et 100 mPa.s. Nous observons un taux de rétraction notablement réduit uniquement pour des gouttes de glycérol pur (points jaunes, figure 6.6b). Ces observations contrastent avec l'influence plus marquée de la viscosité rapportée sur des substrats hydrophobes [41]. Nous étudions la dépendance en viscosité du taux de rétraction en présentant sa valeur normalisée par le temps inertio-capillaire en fonction du nombre d'Ohnesorge dans la figure 6.7. Pour des viscosités comprises entre 1 et 100 mPa.s (*Oh* compris entre 0.0039 et 0.4), le taux de rétraction normalisé est de l'ordre de 1 ce qui indique que l'on se trouve dans le régime de démouillage inertiel indépendant de la viscosité du liquide (chapitre 1). Seules les gouttes de glycérol ont un taux de rétraction normalisé différent, de l'ordre de 0.5. Cependant cette diminution de la vitesse de rétraction liée à la viscosité du liquide est bien plus faible que celle observée par Bartolo *et al.* sur des matériaux hydrophobes. Nous n'observons pas la transition d'une régime inertiel à un régime visqueux quand Oh = 0.05 (ligne verticale pointillée).

Nous expliquons ce changement par la différence de mouillage entre les substrats étudiés. La dissipation mise en avant dans le régime visqueux est une dissipation de coin, proche de la ligne de contact. Cette dissipation est d'autant plus faible que l'angle de contact dynamique est petit (elle varie en $1/\theta$); elle joue donc un rôle moindre lorsque l'on considère une surface non-mouillante. L'angle de reculée sur nos surfaces est $\theta_r \simeq 160^{\circ}$ alors qu'il est de $\theta_r \simeq 80^{\circ}$ sur les substrats hydrophobes de Bartolo *et al.*. Nous atten-



FIGURE 6.7 : Taux de rétraction \dot{r}/R_{max} normalisé par le temps inertio-capillaire représenté en fonction du nombre d'Ohnesorge. La ligne verticale pointillée indique la transition entre les régimes inertiels et visqueux rapportée par [41].

dons donc une domination des effets inertiels sur les effets visqueux dans une plus grande gamme de viscosité : la transition entre les deux régimes a lieu à un nombre d'Ohnesorge plus élevé.

6.4 Analyse Energétique

Nos mesures du coefficient de restitution montrent une perte d'élasticité du rebond sur une surface surperhydrophobe quand la viscosité η du liquide augmente. Le coefficient de restitution est une mesure globale qui nous indique l'énergie perdue par le liquide au cours d'un impact mais n'explique par les échanges d'énergie au cours du rebond et ne nous donne pas d'informations sur les sources de dissipation. Pour mieux comprendre les transferts d'énergie au cours du rebond, nous mettons en œuvre une méthode d'analyse d'image nous permettant d'avoir accès, à chaque instant, à l'énergie du centre de masse de la goutte mais aussi à son énergie de surface et cinétique interne. Nous déduisons de la forme de la surface de la goutte à chaque instant, dans la limite des faibles déformations $(We \ll 1)$, l'écoulement à l'intérieur de la goutte à travers un modèle proposé par [105]. Nous pouvons alors quantifier les pertes visqueuses liées à l'écoulement dans la goutte. Cette méthode est inspirée du travail expérimental de de Ruiter et al. [18, 106]. Nous présentons les détails de la mise en œuvre de cette technique d'analyse d'image dans l'annexe C. Notre objectif est d'utiliser cette méthode pour quantifier les échanges d'énergie et pour tenter de comprendre la diminution de l'élasticité maximale du rebond, ε^* , avec l'augmentation de la viscosité du liquide impactant. Nous analysons le rebond de gouttes de rayon R = 0.95 mm à la vitesse V = 0.2 m/s, proche de V^* , correspondant à de faibles déformations du liquide. Nous présentons uniquement des résultats pour l'impact de gouttes d'eau; l'application de cette méthode d'analyse au rebond de gouttes visqueuses est un travail en cours dont nous discutons dans l'annexe C.

Nous appliquons notre méthode d'analyse énergétique au rebond d'une goutte d'eau. Nous présentons dans la figure 6.8a l'énergie associée au centre de masse de la goutte.



FIGURE 6.8 : Analyse de énergétique du rebond d'un goutte d'eau de rayon R = 0.95 mm à la vitesse d'impact $V \simeq 0.2$ m/s. a Energie du centre de masse au cours du rebond, l'énergie totale est décomposée en un terme d'énergie potentielle U_{cm} et un terme d'énergie cinétique K_{cm} . Lors de la phase de contact, l'énergie du centre de masse est faible par rapport à l'énergie initiale ce qui traduit un transfert vers l'énergie interne du liquide. b Variations de l'énergie de surface U_{int} et de l'énergie cinétique interne K_{int} au cours de l'impact. Lors de la phase de contact la goutte se déforme ce qui entraine un excès d'énergie de surface ainsi qu'un écoulement interne. L'énergie interne varie plus faiblement lors des phases de vol.

Lors de sa chute la goutte convertit son énergie potentielle U_{cm} en énergie cinétique K_{cm} . Cet échange se fait à énergie totale constante : l'énergie du centre de masse, E_{cm} , est à ce moment une bonne mesure de l'énergie de la goutte qui est de l'ordre de 100 nJ. Ce transfert d'énergie cesse au moment du contact avec le substrat (t = 0 ms), le mouvement du liquide vers le bas est arrêté et pendant le contact l'énergie cinétique K_{cm} s'annule. A cet instant, E_{cm} est uniquement potentielle et représente environ 30% de l'énergie initiale. Lorsque le liquide décolle, l'énergie du centre de masse est à nouveau composée d'énergie cinétique et potentielle. La perte d'énergie au cours de rebond est de l'ordre de 20 nJ ce qui correspond à un coefficient de restitution de 0.89 cohérent avec les mesures effectuées précédemment.

Lors de la phase de contact, l'énergie totale du centre de masse constitue de l'ordre de 30% de l'énergie initiale de la goutte. Cette perte d'énergie non physique cache un transfert d'énergie vers les composantes potentielles et cinétiques de l'énergie interne de la goutte. Au cours du contact, le liquide se déforme ce qui entraîne un excès d'énergie de surface, U_{int} (ligne bleue pointillée figure 6.8b) et la génération de mouvements du liquide soit d'énergie cinétique interne, K_{int} (ligne rouge figure 6.8b). L'excès d'énergie de surface représente jusqu'à 60% de l'énergie initialement disponible quand la déformation du liquide est maximale. Les variations de l'énergie cinétique interne constituent jusqu'à 20% de l'énergie totale et présentent deux pics caractéristiques lors du contact répartis de part et d'autre du moment où le liquide est étalé à son maximum qui coïncide avec l'absence de mouvements internes. Nous remarquons de faibles variations de l'énergie interne, E_{int} , lors des phases de vol qui correspondent aux oscillations du liquide.

Connaître l'énergie cinétique liée aux mouvements dans la goutte nous permet de cal-



FIGURE 6.9 : a Energie dissipée par viscosité au cours du rebond ($R = 0.95 \text{ mm}, V \simeq 0.2 \text{ m/s}$). La majorité de la dissipation se produit lors de la phase de contact. Dans le cas d'une goutte d'eau, l'énergie dissipée ne représente que 2% de l'énergie initiale. b Energies totale (ligne noire), du centre de masse (ligne rouge pointillée) et interne (ligne bleue pointillée) au cours du rebond ($R = 0.95 \text{ mm}, V \simeq 0.2 \text{ m/s}$). La prise en compte de l'énergie interne permet d'expliquer la diminution de l'énergie du centre de masse lors du contact. L'énergie totale n'est pas constante et une perte de l'ordre de 15% de l'énergie initiale après le rebond demeure inexpliquée.

culer la dissipation par viscosité au cours de l'impact. La figure 6.9a présente l'évolution temporelle de l'énergie dissipée E_{visc} . La dissipation a lieu à la fois lors des phases de vol et lors du contact. Dans le cas d'un rebond isolé, la majeure partie des pertes visqueuses se produit lors de la phase de contact. Les pertes lors de la phase de vol doivent néanmoins être prises en compte lorsque l'on considère une série de rebonds où le vol représente la majeure partie de la durée étudiée comme noté par [15]. Ici l'énergie dissipée par viscosité ne représente que de l'ordre de 2% de l'énergie initialement disponible. Ce résultat est attendu : l'eau est un liquide peu visqueux (ici, $Oh = 0.0039 \ll 1$) et la durée du rebond, de l'ordre de 10 ms, est suffisamment courte pour limiter la dissipation.

Nous pouvons maintenant réaliser un bilan d'énergie à chaque instant. Nous représentons dans la figure 6.9b l'évolution temporelle de l'énergie du centre de masse E_{cm} (ligne rouge pointillée), de l'énergie interne E_{int} (ligne bleue pointillée) et de l'énergie totale $E_{cm} + E_{int} + E_{visc}$ (ligne noire). La prise en compte de l'énergie interne, à travers la mesure de la surface du liquide et le calcul de l'énergie cinétique, permet d'expliquer en grande partie la diminution de l'énergie du centre de masse lors du contact. Au cours du rebond, l'énergie totale n'est pas constante ce qui indique que notre analyse ne capture pas complètement les échanges d'énergie. Après le rebond une perte de l'ordre de 15% de l'énergie initiale demeure inexpliquée. Une première cause de cet écart peut être trouvée dans les hypothèses permettant d'estimer l'énergie cinétique interne. Ce calcul est réalisé dans l'approximation des faibles déformations, une approximation discutable lors du contact. La différence conséquente relevée suggère néanmoins que nous avons négligé certaines sources de dissipation. Deux candidats peuvent rendre compte de cet écart : (i) la dissipation visqueuse causée par la présence de la ligne de contact entre le liquide et le substrat et (ii) l'écoulement d'air dans le film de lubrification présent sous la goutte et la dissipation qui y est associée.



FIGURE 6.10 : Bilan d'énergie normalisé par l'énergie initiale lors de l'impact d'une goutte d'eau $(R = 0.95 \text{ mm}, V \simeq 0.2 \text{ m/s})$ sur une pastille de silicium. L'évolution de l'énergie totale au cours du rebond est quantitativement similaire à celle observée lors de l'impact sur un substrat superhydrophobe; de l'ordre de 15% de l'énergie initiale n'est pas comptabilisé.

Pour déterminer l'influence de la dissipation visqueuse au niveau de la ligne de contact nous avons décidé de reproduire l'expérience de rebond sur un film d'air. Nous nous plaçons dans les mêmes conditions expérimentales que pour l'impact présenté ci-dessus (R = 0.95mm, $V \simeq 0.2$ m/s) mais nous remplaçons le substrat superhydrophobe par une pastille de silicium que nous nettoyons avec attention pour éviter la présence de poussières. Nous observons un rebond qualitativement semblable à celui rapporté sur un substrat superhydrophobe mais le liquide n'entre jamais en contact avec la surface. Nous réalisons un bilan d'énergie sur ce rebond où la dissipation au niveau de la ligne de contact est inexistante. La figure 6.10 présente l'évolution des énergies totale, interne et du centre de masse lors de l'impact. L'évolution de l'énergie totale au cours du rebond est quantitativement similaire à celle observée lors de l'impact sur un substrat superhydrophobe. Nous retrouvons une perte inexpliquée d'environ 15% de l'énergie initiale. La dissipation visqueuse associée à la présence de la ligne de contact semble négligeable. De Ruiter et al. [18, 106] ont expliqué cet écart par la dissipation dans le film de lubrification. Ils ont montré, à l'aide de mesures de l'épaisseur du film d'air, que la dissipation dans celui-ci est du même ordre de grandeur que l'énergie manquante. Nos expériences suggèrent donc que les pertes par viscosité dans le film de lubrification sont semblables lors de l'impact sur une surface superhydrophobe et ne sont donc que peu affectées par la présence de la rugosité.

6.5 Conclusion et perspectives

Nous avons mis en évidence l'étonnante capacité de rebond de gouttes de viscosité jusqu'à 200 fois plus élevée que celle de l'eau sur un substrat superhydrophobe. Nous avons caractérisé expérimentalement la perte d'élasticité des chocs associée à l'augmentation de la viscosité. Nous avons également comparé plusieurs caractéristiques du rebond : le temps de contact, la valeur de l'étalement maximal et la vitesse de rétraction de différents mélanges eau-glycérol en fonction de leur viscosité.

CHAPITRE 6. REBOND ET VISCOSITÉ

L'objet principal de notre étude consiste à comprendre les transferts et la dissipation d'énergie au cours d'un rebond dans le but d'analyser la perte d'élasticité maximale des chocs par amortissement visqueux. Nous avons mis en place, et exploité pour les gouttes peu visqueuses, une technique d'analyse d'image permettant de réaliser un bilan d'énergie à chaque instant lors d'un rebond à faible vitesse d'impact. Nous en avons déduit que les pertes d'énergies par viscosité en volume et au niveau de la ligne de contact sont négligeables lors du rebond de gouttes d'eau. Nous avons étendu le champ d'application de cette méthode à l'analyse de l'impact de gouttes visqueuses dans le but d'analyser les transferts d'énergie et plus particulièrement la part croissante de l'énergie dissipée par viscosité au cours du contact. Une discussion traitant de la mise en œuvre de cette méthode se trouve en annexe C. Nous travaillons maintenant à réaliser des bilans d'énergie convaincants lors de l'impact de gouttes visqueuses.

Conclusion

Nous avons étudié, au cours de cette thèse, plusieurs variations sur le thème du rebond d'une goutte d'eau sur une surface non-mouillante. Nous avons engendré des rebonds *spéciaux* que nous avons caractérisés expérimentalement. Notre analyse de ces rebonds s'est concentrée sur la mise en évidence des paramètres et des phénomènes physiques contrôlant leur extension spatiale et temporelle, deux quantités qu'il est important de comprendre tant d'un point de vue fondamental qu'appliqué.

Nous nous sommes d'abord intéressés à l'effet d'une modification locale de la géométrie du substrat, à une échelle intermédiaire entre celle des microtextures et celle de la goutte, sur le rebond. Nous avons montré qu'une macrotexture ponctuelle, très simple, crée un mécanisme de rebond en anneau qui entraine une réduction du temps de contact d'un facteur 2. Nous avons interprété la réduction du temps de rebond par un raisonnement géométrique sur la figure d'impact. Le mécanisme de rebond en anneau résiste à la fois à un changement de la géométrie de la texture et à l'excentrement. Dans un second temps, nous avons cherché à comprendre comment associer plusieurs textures ponctuelles pour créer des surfaces à l'hydrophobie renforcée. Nous avons testé plusieurs motifs modèles et interprété géométriquement les temps de rebond obtenus.

Nous avons poursuivi l'étude des effets de la géométrie du substrat sur le rebond en la modifiant à l'échelle de la goutte. Nous avons réalisé des expériences d'impact sur des plans inclinés, des cônes et des sphères en situation de non-mouillage. Les résultats obtenus lors d'impacts sur un plan incliné montrent que les déformations du liquide sont contrôlées par la composante normale au substrat de la vitesse d'impact. Cette expérience ne fait pas apparaître un nouveau mécanisme de rebond mais est un bon moyen d'accéder facilement à des vitesses normales d'impact faibles. L'étude de l'impact sur les cônes et les sphères est principalement descriptive. Nous avons répertorié les issues possibles de l'impact sur un cône en fonction de son angle au sommet et de la taille et la vitesse des gouttes. Nous avons observé la formation puis la fragmentation d'anneaux liquides lors de l'impact. L'étude de la déstabilisation de ces tores, qui ont une dynamique d'expansion, par instabilité de Rayleigh-Plateau nous semble être intéressante. Nous présentons en annexe A une expérience conçue dans ce but. Les rebonds sur les sphères présentent une dynamique modifiée. Nous avons mis en évidence des effets forts sur le temps de contact et sur l'éta-

CONCLUSION

lement maximal quand le liquide dépasse l'équateur. La goutte conserve un mouvement vertical tout au long du rebond. La présence de ce mouvement vertical affecte la durée de la phase de décollage et l'élasticité du rebond, un effet devant être étudié plus en détails.

Nous avons également effectué des impacts sur des matériaux pouvant être déformés par la goutte. Ces expériences mêlent des effets géométriques, le substrat se déforme, et des effets dynamiques. Nous nous sommes intéressés à deux situations très différentes. D'abord, nous avons étudié l'impact de billes liquides sur des membranes élastiques. Nous avons mis en évidence un régime de rebond présentant des temps de contact réduits jusqu'à 70% par rapport à un substrat rigide. La réduction dépend à la fois de l'échelle de temps de la bille et de la membrane ce qui nous permet d'ajuster le temps de rebond. L'interaction entre une goutte et une membrane flexible ne se limite pas au régime de rebond rapide : la caractérisation de l'élasticité des rebonds en fonction de la viscosité des gouttes ou l'utilisation des membranes comme capteurs de force sont des pistes à explorer. Dans un second temps, nous avons observé le splash de gouttes lors de leur impact sur un bain de liquide visqueux non miscible. Nous avons tiré avantage du caractère viscoélastique du bain en étudiant des situations dans lesquelles le liquide possède un comportement élastique à l'échelle de temps du splash. Nous avons observé une augmentation de la vitesse seuil de splash et l'avons liée à la déformation du liquide. Des expériences permettant de quantifier et de localiser la déformation du bain, nous semblent nécessaire pour comprendre l'augmentation du seuil de splash.

Nous avons aussi utilisé des substrats rigides dont nous pouvons contrôler le déplacement. Dans un premier temps, nous avons soumis une goutte initialement au repos à un mouvement impulsionnel. Cette expérience nous a permis de créer de surprenantes cavités coniques dont nous avons caractérisé et modélisé la dynamique. Au-delà des formes engendrées, cette étude nous permet de faire un constat étonnant : la faible adhésion des surfaces superhydrophobes est l'ingrédient nécessaire à l'obtention des cavités. Dans un second temps, nous avons réalisé des impacts sur une surface dont le mouvement peut-être déclenché au moment du contact entre le liquide et le solide à l'aide du signal provenant d'un capteur de force de type MEMS. Nous atteignons des temps de contact extrêmement réduits, de l'ordre de 20% de celui observé sur le même substrat sans mouvement. Cette expérience, dont nous avons présenté seulement des résultats qualitatifs, permet de déterminer l'amplitude des déplacements nécessaires pour faire décoller la goutte. Le contrôle de l'amplitude et de l'échelle de temps du déplacement nous permet d'obtenir des informations complémentaires à celles obtenues lors de l'impact sur une membrane flexible.

Enfin nous avons généré des rebonds spéciaux en modifiant le liquide et non le substrat. Nous avons étudié l'impact de gouttes visqueuses de tension de surface élevée sur un matériau superhydrophobe. Nous avons mis en évidence l'étonnante capacité de rebond de gouttes jusqu'à 200 fois plus visqueuses que l'eau. Nous avons caractérisé l'élasticité du rebond, le temps de contact, l'étalement maximal et la vitesse de rétraction en fonction de la viscosité du liquide. Nous cherchons à comprendre les transferts et la dissipation d'énergie au cours du rebond dans le but d'analyser la perte d'élasticité maximale des chocs avec la viscosité. Pour ce faire, nous travaillons à mettre en œuvre une méthode d'analyse d'images permettant de réaliser un bilan d'énergie au cours du rebond.

Annexe A

Instabilité de Rayleigh-Plateau en géométrie torique : rupture d'un anneau liquide en expansion

Il est rare d'observer des anneaux liquides du fait de leur nature éphémère. Deux phénomènes contribuent à rendre ces objets instables : (i) Le tore n'étant pas une surface minimale, le liquide cherche à adopter une forme sphérique pour minimiser son énergie de surface et (ii) l'anneau est un filament de liquide qui peut se fragmenter par un mécanisme de type Rayleigh-Plateau. On trouve dans la littérature plusieurs études discutant l'évolution d'un tore. Darbois Texier et al. [74] ont étudié l'effondrement d'anneaux d'oxygène liquide lors de leur transformation en sphère sans se fragmenter. Mc Graw et al. [73] se sont intéressés à la limite opposée où le liquide se fragmente en gouttelettes avant d'amorcer un mouvement de rétraction. Enfin Pairam et al. [72] ont étudié l'interaction entre ces deux dynamiques de déstabilisation. Ils observent une compétition entre la dynamique du mode le plus rapide de l'instabilité de Rayleigh-Plateau et la dynamique de rétraction du tore dont le périmètre doit correspondre à un nombre entier de la longueur d'onde du mode sélectionné. L'étude de l'impact d'une goutte d'eau sur un substrat conique non-mouillant (voir chapitre 3) nous a permis d'observer des anneaux ayant une évolution notablement différente. Nous génèrons des tores animés d'un mouvement d'expansion radiale et nous observons leur fragmentation. Cette expérience ne permet pas d'étudier de manière contrôlée l'évolution des tores et impose des contraintes fortes en termes de visualisation de par la brièveté des impacts.

Nous présentons ici une expérience préliminiraire visant à surmonter ces contraintes en produisant des tores animés d'un mouvement d'expansion contrôlable. Nous nous inspirons de la méthode de création de tores dans un liquide visqueux proposée par [72]. Nous injectons un liquide à l'aide d'un aiguille dans un bain en rotation contenant un second liquide visqueux non miscible (figure A.1). La friction exercée par le fluide externe entraîne le liquide à la sortie de l'aiguille pour former un filament courbé. Si la vitesse de rotation

ANNEXE A. INSTABILITÉ DE RAYLEIGH-PLATEAU EN GÉOMÉTRIE TORIQUE : RUPTURE D'UN ANNEAU LIQUIDE EN EXPANSION



FIGURE A.1 : Schéma du montage expérimental : le glycerol ($\rho_g = 1260 \text{ kg/m}^3$, $\eta_g = 1 \text{ Pa.s}$) composant le tore est injecté dans le bain visqueux ($\rho_o = 973 \text{ kg/m}^3$, $\eta_o = 60 \text{ Pa.s}$) par l'intermédiaire d'une aiguille connectée à un pousse-seringue. Le bain est monté sur un roulement à billes relié par une courroie à un moteur courant continu qui permet sa rotation. Une caméra placée sous le bain enregistre les mouvements du liquide.

est suffisante nous obtenons un tore dont le rapport d'aspect est contrôlé par la position de l'aiguille et le volume de fluide injecté. Si nous stoppons la rotation après avoir créé l'anneau liquide, nous réalisons l'expérience de Pairam et al. : les tores se déstabilisent tout en se rétractant. Au contraire, si nous maintenons la rotation du bain après avoir retiré l'aiguille à l'aide d'un micromanipulateur, un choix de liquide pertinent peut nous permettre d'observer des tores en expansion. En injectant un liquide plus dense que le bain, la force centrifuge tend à élargir l'anneau. C'est ce phénomène que nous choisissons d'exploiter en injectant du glycerol ($\rho_g = 1260 \text{ kg/m}^3$, $\eta_g = 1 \text{ Pa.s}$) dans un bain d'huile silicone ($\rho_o = 973 \text{ kg/m}^3$, $\eta_o = 60 \text{ Pa.s}$). Nous pouvons alors ajuster la vitesse de rotation du bain, ω , pour obtenir différentes dynamiques radiales de rétraction ou d'expansion du tore et ainsi explorer la compétition entre la dynamique radiale et la dynamique de fragmentation. Le choix des liquides a une autre conséquence : leur viscosité influence à la fois la dynamique d'ouverture ou de fermeture des tores et la longueur d'onde du mode le plus instable de l'instabilité de Rayleigh-Plateau [107]. Nous visualisons l'évolution des tores à l'aide d'une caméra fonctionnant à une cadence de 20 im/s placée sous notre dispositif ce qui permet de s'affranchir de la distortion optique crée par la courbure de l'interface supérieure du liquide en rotation.



FIGURE A.2 : Evolution temporelle d'un tore de grand rayon initial $R_0 \approx 8$ mm et de petit rayon initial $a_0 \approx 0.6$ mm lorsque nous imposons une rotation de fréquence 1.5 Hz. Le rayon du tore augmente et nous observons sa fragmentation en 6 sous-unités par instabilité de Rayleigh-Plateau. Le cercle pointillé rouge indique le périmètre initial du tore.

Nous présentons figure A.2 l'évolution temporelle d'un tore de grand rayon initial $R_0 \approx 8$ mm et de petit rayon initial $a_0 \approx 0.6$ mm lorsque nous imposons une rotation de fréquence 1.5 Hz. Nous observons l'augmentation du diamètre du tore, l'apparition de corrugations (t = 3.9 s) qui se développent avant la fragmentation du tore en 6 sousunités à la fin du processus. Cette expérience préliminaire prouve que la force centrifuge permet d'observer la dynamique originale que nous recherchons. Il reste à caractériser cette dynamique en fonction des paramètres du géométriques du tore et de la fréquence de rotation imposée. Après cette première étape, nous pourrons étudier l'interaction entre la dynamique radiale et la dynamique de l'instabilité de Rayleigh-Plateau.

Annexe B

Modélisation d'une membrane tendue

Nous modélisons les feuillets de PDMS comme des objets bidimensionnels ($a \sim \text{cm}$ et $h = 20 \ \text{\mum}$) élastiques ($E = 1 \ \text{Mpa}$, $\rho = 965 \ \text{kg/m}^3$). Les membranes sont déposées sur un cadre de rayon a et mises en tension par l'ajout d'une masse m aux anneaux de plexiglas qui maintiennent les bords du feuillet. Le tableau B.1 rassemble les caractéristiques de toutes les membranes utilisées lors de nos expériences. Nous supposons que les membranes sont inextensibles. La tension T appliquée au bord du cadre est alors $T = mg/(2\pi a)$. L'équation qui régit la fréquence fondamentale d'une telle membrane est :

$$f_m^{th} = \frac{\chi_{01}}{2\pi a} \sqrt{\frac{T}{\mu}}$$

où χ_{01} est le premier zéro de la fonction de Bessel de première espèce et μ la densité surfacique de la membrane.

Nous comparons dans la figure B.1 les fréquences mesurées lors des oscillations libres des membranes, f_m , après impact à la prédiction ci-dessus, f_m^{th} . Pour les plus faibles masses imposées (m = 3.41 et m = 4.68 g), l'accord entre mesures et prédictions est quantitatif.

| $a (\mathrm{mm})$ | $m~({ m g})$ | f_m (Hz) | f_m^{th} (Hz) |
|-------------------|--------------|------------|-----------------|
| 7.5 | 3.41 | 302 | 309 |
| 7.5 | 12.23 | 444 | 586 |
| 10 | 3.41 | 210 | 201 |
| 10 | 12.23 | 290 | 379 |
| 17.5 | 13.5 | 128 | 172 |
| 25 | 4.68 | 60 | 59 |
| 25 | 13.5 | 75 | 101 |
| 25 | 29.2 | 96.8 | 148 |

TABLE B.1 : Caractéristiques des 8 membranes utilisées lors de l'étude du rebond sur une surface déformable : rayon a, masse m, fréquences mesurées et prédites f_m et f_m^{th} , respectivement.



FIGURE B.1 : Fréquence d'oscillation de la membrane prédite f_m^{th} en fonction de la fréquence d'oscillation mesurée f_m . La ligne pointillée grise montre un accord quantitatif quand $m \leq 3.41$ g. la ligne pointilée gris clair a une pente 1.3. Même si nous surestimons la fréquence d'oscillation quand nous imposons une masse élevée (m > 3.41 g), une relation linéaire entre prédiction et mesure pour des masses proches est conservée.

Pour des masses plus élevées (m > 3.41 g), la prédiction est supérieure aux fréquences mesurées. Nous retrouvons toutefois une relation linéaire entre prédiction et mesure quand la masse est maintenue à peu près constante (ligne pointillée gris clair). Nous expliquons ce désaccord par 2 causes entrainant une réduction de la tension appliquée au bord du cadre : (i) la friction entre le bord du cadre et le PDMS qui n'est pas totalement éliminée par la présence de talc et (ii) l'allongement de la membrane sous l'effet de la tension imposée.

Annexe C

Détermination de l'énergie d'une goutte lors d'un impact

La mesure du coefficient de restitution nous permet de quantifier l'élasticité du rebond d'une goutte. Cette quantité globale nous indique la fraction de l'énergie cinétique initiale restituée à la goutte après l'impact mais ne nous donne aucune information sur la façon dont l'énergie est transférée et dissipée au cours de l'impact. Nous présentons ici une méthode d'analyse d'image permettant de déterminer, à partir des déformations de la goutte extraites des vues de côté d'un impact, l'énergie du centre de masse et l'énergie interne - potentielle et cinétique - du liquide. Cette méthode est semblable à celle utilisée par de Ruiter *et al.* [18, 106] et s'appuie sur les résultats théoriques obtenus par Molàček *et al.* [105]. Nous rappelons ici les principaux résultats nécessaires à l'implémentation de l'analyse.

C.1 Analyse d'image

Nous mesurons, à partir de vues de côté de l'impact, la forme des gouttes à chaque instant en exploitant la symétrie du liquide par rapport à l'axe vertical. La forme de la goutte peut alors être décrite à chaque instant par le contour $R(t, \theta)$ que nous obtenons en détectant du bord de la goutte (figure C.1). Nous décomposons le contour obtenu sur la base des polynômes de Legendre $P_n(x)$:

$$R(t,\theta) = R + \sum_{n=0}^{\infty} c_n(t) P_n(x)$$

où $x = \cos(\theta)$. Plus le nombre n de modes pris en compte est élevé, plus le contour est approximé de manière fidèle. Nous choisissons ici de manière empirique un compromis entre fidélité de la description du contour et rapidité de l'analyse en limitant à n = 10 le nombre de modes considéré. Les coefficients $c_n(t)$ sont déterminés en exploitant l'orthogonalité des



FIGURE C.1 : Vue de côté d'une goutte d'eau (R = 0.95 mm) au cours d'un impact sur une surface superhydrophobe et du contour (vert) recréé à partir de la décomposition de la forme de la surface en polynômes de Legendre.

polynômes de Legendre :

$$c_n(t) = \frac{2n+1}{2} \int_{-1}^1 (R(t,\theta) - R) P_n(x) dx.$$

Nous représentons dans la figure C.1 une vue de côté d'une goutte et du contour recréé à partir des polynômes de Legendre (trait vert) montrant la capacité de cette technique à capturer les formes déformées du liquide.

C.2 Bilan d'énergie

Nous quantifions à chaque instant l'énergie du liquide. Nous décomposons dans un premier temps cette énergie en deux parties : (i) l'énergie associée au centre de masse et (ii) l'énergie associée aux déformations de la goutte.

C.2.1 Energie du centre de masse

L'énergie associée au centre de masse est calculée en suivant sa position $y_{cm}(t)$ au cours d'un rebond. Nous réalisons ensuite un ajustement de la trajectoire du centre de masse ce qui nous permet de déterminer les dérivées temporelles de y_{cm} en nous affranchissant des erreurs liées à la dérivation d'un signal numérique. Nous écrivons alors l'énergie potentielle U_{cm} et l'énergie cinétique K_{cm} du centre de masse :

$$U_{cm} = \rho \Omega g y_{cm}$$
$$K_{cm} = \frac{1}{2} \rho \Omega \dot{y}_{cm}^2$$

où ρ est la densité du liquide, Ω le volume de la goutte et g l'accélération de la pesanteur.

C.2.2 Energie interne

L'énergie associée aux déformations de la goutte est déterminée à partir du contour obtenu par analyse d'image. Cette énergie fait intervenir un premier terme d'énergie de surface $U_{int} = \gamma A_{surf}$ où A_{surf} est l'aire instantanée de la surface de la goutte. L'énergie

potentielle s'écrit alors en prenant avantage de l'axisymétrie du problème :

$$U_{int} = 2\pi\gamma \int_0^{\pi} R(t,\theta)\sin(\theta)\sqrt{R^2 + (\partial_{\theta}R)^2} \mathrm{d}\theta.$$

Nous pouvons écrire l'excès d'énergie de surface dans l'approximation des faibles déformations ($We \ll 1$), ($\partial_{\theta} R$)²/ $R^2 \ll 1$, à l'aide de la décomposition de l'interface en polynômes de Legendre :

$$U_{int} = 2\pi\gamma \sum_{n=2}^{\infty} \frac{(n-1)(n+2)}{2n+1} c_n^2.$$

Nous utilisons plutôt dans notre analyse l'excès d'énergie calculé par intégration numérique du profil de la goutte. L'approximation des faibles déformations dans le calcul de l'énergie de surface conduit à surestimer l'aire de la goutte de l'ordre de 20% lors du contact. L'écart entre l'énergie de surface calculée directement et dans l'approximation des faibles déformations est un bon indicateur de la validité de cette approximation.

Le second terme d'énergie interne est lié à l'écoulement du liquide à l'intérieur de la goutte. Nous calculons cet écoulement en fonction de la forme adoptée par le liquide ce qui permet d'obtenir l'énergie interne sans visualiser les mouvements du fluide, une tache difficile.

Gouttes faiblement visqueuses : $Oh \ll 1$

Nous supposons que la viscosité du liquide est négligeable, nous pouvons alors décrire les mouvements du fluide par un écoulement potentiel. Cette approximation n'est valide que pour $Oh \ll 1$, une condition qui n'est pas toujours vérifiée pour les gouttes rebondissantes visqueuses. Dans le cas de liquides peu visqueux, le potentiel des vitesses ϕ vérifie l'équation de Laplace $\nabla^2 \phi = 0$. La solution de cette équation est donnée par :

$$\phi(r,\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} A_n r^n P_n(x)$$

où A_n est l'intensité associé au n-ième mode. Dans l'approximation des faibles déformations, nous trouvons une relation entre la vitesse radiale de l'écoulement à l'interface et la variation temporelle de la forme de la goutte soit une relation entre A_n et \dot{c}_n :

$$\dot{c}_n = nA_n R^{n-1}.$$

Nous déterminons la dérivée temporelle des coefficients $c_n(t)$ en appliquant un filtre de Savitzki-Golay d'ordre 2 à $c_n(t)$ sur une fenêtre de largeur 0.2 ms autour de chaque instant. Cette procédure permet un filtrage cohérent et répétable des variations temporelles de c_n et nous permet de calculer sa dérivée. Nous pouvons maintenant calculer l'énergie cinétique $K_{int} = \frac{1}{2}\rho \int_{\Omega} \nabla \phi \cdot \nabla \phi d\Omega$ en transformant l'intégrale de volume en une intégrale de surface

ANNEXE C. DÉTERMINATION DE L'ÉNERGIE D'UNE GOUTTE LORS D'UN IMPACT

par le théorème de Green-Ostrogradsky soit :

$$K_{int} = 2\pi\rho R^3 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n(2n+1)} \dot{c}_n^2.$$

Bien que nous considèrions un écoulement potentiel, nous calculons la dissipation associée à l'écoulement dans la limite $Oh \ll 1$. Nous écrivons le taux de dissipation en fonction du tenseur des taux de déformation **D**. Le taux de dissipation visqueuse est $\dot{E}_{visc} = \int_{\Omega} 2\eta \mathbf{D} : \mathbf{D} d\Omega$. Nous exprimons ce taux de dissipation en fonction de la forme de la goutte :

$$\dot{E}_{visc} = 8\pi\eta R \sum_{n=1}^{\infty} \frac{n-1}{n} \dot{c}_n^2.$$

Nous obtenons l'énergie dissipée lors de l'impact par intégration temporelle du taux de dissipation.

Gouttes de viscosité arbitraire

Si nous formons des gouttes à partir d'un liquide visqueux, nous ne pouvons plus modéliser les mouvements du liquide dans la goutte par un écoulement potentiel. Molàček *et al.* [105] ont formulé des équations valables pour tout nombre d'Ohnesorge, toujours dans la limite des faibles déformations. Nous les présentons ici sous une forme adaptée à la décomposition de l'interface que nous avons effectué. Dans ce régime les expressions de l'énergie cinétique, K_{int} et du taux de dissipation, \dot{E}_{visc} , sont :

$$K_{int} = 2\pi\rho R^3 \sum_{n=2}^{\infty} A_n (Oh\sqrt{n}) \frac{1}{n(2n+1)} \dot{c}_n^2$$
$$\dot{E}_{visc} = 8\pi\eta R \sum_{n=2}^{\infty} D_n (Oh\sqrt{n}) \frac{n}{2n+1} \dot{c}_n^2$$

où A_n et B_n sont deux coefficients que l'on doit déterminer. Ces coefficients sont choisis de telle sorte que les racines de l'équation :

$$A_n b^2 - 2am^2 D_n b + 1 = 0 (C.1)$$

où $a = Oh/\sqrt{n(n-1)(n+2)}$ soient les deux racines de partie réelles les plus faibles de l'équation :

$$b^{2} - 2a(n-1)\frac{2n+1-2n(n+2)W(b/a)}{1-2W(b/a)}b + 1 = 0$$
(C.2)

où $W(x) = J_{n+3/2}(\sqrt{x})/(\sqrt{x}J_{n+1/2}(\sqrt{x}))$. $J_k(x)$ représente la fonction de Bessel de première espèce d'ordre k. Nous déterminons numériquement les coefficients A_n et D_n . Nous calculons d'abord les racines de l'équation C.2 et en déduisons les valeurs de A_n et D_n à l'aide de l'équation C.1. L'équation C.1 ainsi que la procédure de recherche des coefficients A_n et D_n sont différentes de ce qui est présenté dans la référence [105]. Nous remercions Jan Molàček de nous avoir aidé à corriger les erreurs s'étant glissées dans son article ce qui nous a permis de mettre en oeuvre cette méthode d'analyse.

C.3 Résolution temporelle

Nous discutons, dans cette section, l'effet de la fréquence d'acquisition des vues de côté sur le calcul de l'énergie dissipée au cours du rebond. Une fréquence d'acquisition trop faible produit un effet de filtrage qui a pour conséquence une sous-estimation de la dissipation. Au contraire, une fréquence d'acquisition trop élevée peut transformer les erreurs liées à l'imprécision de la détection du contour en énergie dissipée additionnelle. Nous représentons dans la figure C.2 l'énergie dissipée au cours de l'impact d'une goutte d'eau (R = 0.95 mm) à la vitesse V = 0.2 m/s en fonction de la fréquence d'acquisition de la caméra. L'énergie dissipée tend vers un plateau quand on augmente la fréquence d'acquisition.



FIGURE C.2 : Energie visqueuse E_{visc} calculée en fonction de la fréquence d'acquisition f lors de l'impact d'une goutte d'eau (R = 0.95 mm, V = 0.2 m/s). L'énergie dissipée tend vers un plateau pour les fréquences d'acquisition les plus élevées que nous atteignons.

La méthode présentée permet de réaliser un bilan d'énergie sur une goutte de viscosité quelconque lors d'un impact à partir de vues de côté dans la limite des faible déformations du liquide et en négligeant la dissipation dans l'air ainsi qu'au niveau de la ligne de contact. La principale limite de notre analyse tient à l'amplitude des déformations observées lors d'un impact qui, même pour des vitesses de l'ordre de 0.2 m/s, sont parfois trop importantes pour effectuer une analyse linéaire.

Annexe D

Ondes dans un hydrogel

Sommaire

| D.1 Préparation et rhéologie d'un hydrogel d'Agar | | | | | | |
|--|------------------------|--|--|--|--|--|
| D.2 O | D.2 Ondes propagatives | | | | | |
| D. | 0.2.1 | Mesure de la relation de dispersion | | | | |
| D. | .2.2 | Mesure des champs de déplacement | | | | |
| D.3 In | nstab | ilité de Faraday élastique | | | | |
| D. | .3.1 | Mesure de la relation de dispersion $\ldots \ldots 152$ | | | | |
| D.4 Proposition de calcul de la relation de dispersion | | | | | | |
| D. | .4.1 | Ondes dans un échantillon d'épaisseur finie 154 | | | | |
| D. | 0.4.2 | Ondes de surface | | | | |
| D.5 C | onclu | usion et perspectives | | | | |

L'étude des ondes dans les hydrogels a été menée avec Lucie Domino et a bénéficié des conseils de Sander Wildeman, Guillaume d'Hardemare, Emmanuel Fort et Antonin Eddi.

Nous avons présenté au chapitre 4 plusieurs exemples de problèmes mêlant les effets élastiques et capillaires. Ici, nous nous intéressons à l'instabilité de Faraday (que nous introduirons plus tard dans ce chapitre), et plus généralement à la propagation d'une onde à la surface d'un hydrogel. Plusieurs instabilités hydrodynamiques ont déjà été étudiées dans de tels matériaux : Mora *et al.* [108] ont étudié l'instabilité de Rayleigh-Plateau dans de fin barreaux de gels d'Agar (figure D.1a), ils ont aussi étudié l'instabilité de Rayleigh-Taylor dans un gel renversé [109] (figure D.1b). Plus récemment, Shao *et al.* [110] ont mis en évidence l'existence de l'instabilité de Faraday dans des gels mous de module de cisaillement compris entre 1 et 260 Pa. L'originalité des hydrogels vient de la présence de trois forces de rappel agissant sur l'interface : l'élasticité, la gravité et la capillarité. De nombreuses expériences ont tenté de caractériser la propagation des ondes à la surface des gels [111, 112, 113] mais un consensus peine à émerger, les débats se cristallisant autour de la transition ou coexistence entre un régime élastique et un régime capillaire.


FIGURE D.1 : **a** Déstabilisation de cylindres d'Agar de module de Young de plus en plus faible (du haut, E = 81 Pa vers le bas E = 43 Pa) plongés dans du toluène. Extrait de [108]. **b** Instabilité d'un gel de polyacrylamide mou retourné. On observe un motif stationnaire dont on fait ressortir la forme en projetant une grille lumineuse. Extrait de [114].

Nous étudions la relation de dispersion des ondes à la surface d'un hydrogel d'Agar en mesurant le champ de hauteur à la surface de notre échantillon pour des ondes propagatives et des ondes générées par l'instabilité de Faraday. Nous proposons ensuite un calcul de la relation de dispersion en traitant le gel comme un solide élastique soumis à une condition au limite à la surface libre faisant intervenir la capillarité.

D.1 Préparation et rhéologie d'un hydrogel d'Agar

Préparation

Les échantillons de gel sont préparés en mélangeant de la poudre d'Agar (Sigma A4550) à un volume d'eau déminéralisée. Ce mélange est porté à la température de ~ 95 °C puis versé dans une cuve. Nous laissons ensuite le gel refroidir à température ambiante pendant 3 heures, ce qui permet sa polymérisation. Nous varions la quantité de poudre d'Agar entre 0.2% et 0.5% de masse par volume d'eau pour obtenir des gels de modules de cisaillement différents. Les échantillons sont préparés dans les heures qui précèdent la réalisation d'une expérience pour s'affranchir du problème de vieillissement lié à l'évaporation.

Rhéologie

Nous effectuons des mesures de rhéologie dynamique pour caractériser les propriétés matérielles des gels que nous fabriquons. Nous versons une petite quantité de gel chaud non polymérisé dans la cellule de test (entrefer 1 mm) d'un rhéomètre plan-plan (Anton Paar MCR501). Nous attendons 3 heures afin de nous assurer que le gel soit polymérisé avant de commencer le test en oscillation. Nous travaillons en imposant une déformation constante de 0.1% et explorons le comportement en fréquence des échantillons. La figure D.2 présente l'évolution des modules de cisaillement (G', carrés) et de perte (G'', triangles) avec la fréquence angulaire pour trois gels obtenus en mélangeant 0.2%, 0.3% et 0.5% de masse par volume d'Agar. G' et G'' sont relativement constants pour des sollicitations de pulsations entre 0.1 et 100 rad/s. G' est typiquement supérieur de deux ordres de grandeur



FIGURE D.2 : Modules de cisaillement (G') et de perte (G'') d'hydrogels fabriqués à partir de différentes proportions de poudre d'Agar en fonction de la fréquence angulaire de sollicitation.

à G'', ce qui confirme que nos échantillons sont des solides. Les trois gels ont des modules de cisaillement de 90, 380 et 1000 Pa (pour 0.2%, 0.3% et 0.5% de masse par volume d'Agar respectivement). Nous observons pour des pulsations supérieures à 100 rad/s une chute brutale de G' qui coïncide avec une augmentation de G''. Nous interprétons cet évènement comme une erreur de mesure, il est possible que le gel se décolle des plateaux de la cellule pour les sollicitations les plus rapides que nous imposons.

D.2 Ondes propagatives

Nous commençons par étudier la propagation des ondes créées par un point source placé à la surface d'un hydrogel. Nous réalisons deux expériences visant à caractériser ces ondes : nous mesurons (i) la relation de dispersion en surface et (ii) le champ de déplacement, dans l'épaisseur du gel, associé à leur propagation.

D.2.1 Mesure de la relation de dispersion

Le montage expérimental est présenté dans la figure D.3a. Nous coulons des gels d'Agar, de module de cisaillement 90 et 380 Pa, dans une cuve transparente rectangulaire de 8.5×26 cm de côté. L'épaisseur h des gels synthétisés est contrôlée par le volume de gel produit et a été variée entre 0.2 et 3 cm . Nous excitons les ondes à l'aide d'un aimant, posé à la surface du gel, dont le mouvement est contrôlé par l'amplitude et la fréquence du champ magnétique oscillant généré par un électroaimant. L'aimant est collé sur un barreau de plastique (8×1 cm) de façon à générer des ondes planes se propageant dans la direction x. Nous mesurons le champ d'onde à la surface du gel (transparent) en observant en vue de dessus un motif en damier placé sous la cuve. Au passage d'une onde, la surface du gel est déformée ce qui entraine un déplacement apparent $\delta \mathbf{r}$ du motif par réfraction des rayons lumineux. A partir d'une image de référence et d'une image déformée du motif, nous pouvons reconstruire le champ de hauteur de la surface du gel en utilisant l'algorithme Fast Checkerboard Demodulation [115, 116]. La figure D.3b montre un instantané du champ de hauteur obtenu par cette technique de Schlieren synthétique lorsque l'on excite des ondes



FIGURE D.3 : **a** Schéma du montage expérimental de mesure de la relation de dispersion. Nous excitons des ondes planes à la surface d'un hydrogel de module de cisaillement μ et d'épaisseur h à l'aide d'un aimant mis en mouvement par le champ magnétique créé par un électroaimant. Nous reconstruisons le champ d'onde en observant, en vue de dessus, le déplacement apparent $\delta \mathbf{r}$ d'un motif en damier placé sous la cuve. **b** Champ de hauteur obtenu à l'aide de l'algorithme FCD en excitant à une fréquence de 40 hz la surface d'un gel ($\mu = 90$ Pa et h = 1.1 cm).

planes à la fréquence de f = 40 Hz à la surface d'un gel de module de cisaillement $\mu = 90$ Pa et d'épaisseur h = 1.1 cm. Pour mesurer la relation de dispersion liant la fréquence f et le nombre d'onde k des ondes, nous excitons le gel en réalisant des balayages en fréquence de 10 à 160 Hz. Nous enregistrons des vues de dessus du motif déformé à la cadence de 350 images par seconde et déduisons à partir de la séquence d'images obtenue le champ de hauteur en tout point de la cuve à chaque instant. Nous effectuons une analyse des champs de hauteur par transformée de Fourier fréquentielle et spatiale. Nous obtenons le spectre spatial associé à chaque fréquence d'excitation. Nous normalisons ensuite chaque spectre par son amplitude maximale et conservons l'information présente dans la direction de propagation des ondes. Nous construisons alors la relation de dispersion en assemblant les spectres spatiaux, dans la direction x, correspondant à chaque fréquence f d'excitation.

La relation de dispersion obtenue en soumettant un gel de module de cisaillement $\mu = 90$ Pa et d'épaisseur h = 1.1 cm fait l'objet de la figure D.4a. Nous observons la présence de plusieurs branches dans la relation de dispersion : pour une fréquence donnée, plusieurs nombres d'onde peuvent coexister. Le nombre de branches visible augmente avec la fréquence. La première branche commence pour $f \approx 10$ Hz; nous ne distinguons pas les faibles nombres d'onde et les fréquences de coupure des branches successives aparaissant à des fréquences plus élevées. Si l'on augmente encore la fréquence (f > 100 Hz), le comportement est différent : la relation de dispersion ne présente plus qu'une seule branche.

Nous étudions ensuite l'effet du module de cisaillement sur la relation de dispersion. Nous présentons le résultat obtenu pour un gel de module $\mu = 380$ Pa et d'épaisseur h = 1.1 cm dans la figure D.4b. Nous remarquons également la coexistence de plusieurs branches. Les fréquences de coupure sont notablement modifiées : la première branche démarre pour $f \approx 30$ Hz et la seconde pour $f \approx 50$ Hz. Contrairement au gel de module $\mu = 90$ Pa, nous n'observons pas la transition vers un comportement présentant une seule branche à haute fréquence. La pente globale de la relation de dispersion est plus grande



FIGURE D.4 : Relations de dispersion, liant la fréquence f et le nombre d'onde k, des ondes planes se propageant selon la direction x dans des hydrogels d'Agar ($\mathbf{a} \ \mu = 90$ Pa et h = 1.1 cm, $\mathbf{b} \ \mu = 380$ Pa et h = 1.1 cm, $\mathbf{c} \ \mu = 380$ Pa et h = 3.4 cm). Les niveaux de gris représentent l'intensité du signal mesuré, normalisée entre 0 et 1 pour chaque fréquence.

pour le gel de module plus élevé. Un résultat cohérent avec l'expression de la vitesse de phase des ondes transverses dans un solide élastique : $c_t = \sqrt{\mu/\rho}$.

Nous nous intéressons également à l'effet de l'épaisseur du gel. La figure D.4c présente la carte obtenue pour un gel de module $\mu = 380$ Pa et h = 3.4 cm. Le résultat est notablement différent de celui obtenu pour le gel de même module mais de profondeur 1 cm (figure D.4b). Le nombre de branches que nous mesurons est plus que doublé. Les branches sont plus rapprochées et plusieurs d'entre elles ont une fréquence de coupure plus faible que celle associée à la première branche pour le gel moins épais (f = 30 Hz). L'augmentation de l'épaisseur nous permet également de retrouver la disparition des branches multiples à haute fréquence pour le gel présenté dans la figure D.4a; ici ce comportement apparaît pour f > 140 Hz.

Les résultats de nos mesures suggèrent que la relation liant la fréquence f et le nombre d'onde k dépend à la fois des propriétés mécaniques du gel ainsi que de son épaisseur. Nous interprétons la présence de modes multiples comme la conséquence de l'épaisseur finie de l'échantillon. Les ondes se propageant dans le gel ne seraient pas purement des ondes de surface : le vecteur d'onde \mathbf{k} posséderait une composante verticale. Cette composante du vecteur d'onde serait alors influencée par le confinement du système dans la direction z. Pour vérifier cette hypothèse, nous mesurons le déplacement dans une tranche verticale du gel.

D.2.2 Mesure des champs de déplacement

Nous déterminons le champ de déplacement à l'intérieur du gel en utilisant une technique de corrélation d'images. Nous dispersons des particules de densité spécifique 1.1 et de diamètre 11.7 μ m (PQ Hollow) dans le gel alors qu'il est chauffé à la température de 95 °C. Nous versons alors cette solution dans une cuve transparente (8.5×26 cm); les particules sont emprisonnées par la polymérisation du gel avant leur sédimentation. Nous rendons les particules visibles dans une tranche (xz), parallèle à la direction de propagation des ondes, en les illuminant avec une nappe laser (figure D.5) : chaque particule apparait comme un point lumineux. Nous excitons alors des ondes planes à une fréquence f à l'aide d'un pot vibrant et enregistrons le mouvement des particules à l'aide d'une caméra rapide fonctionnant à une cadence de 250 images par seconde. Le champ de déplacement est obtenu par corrélation entre une image de référence et une image en présence de l'onde en utilisant l'algorithme *Ncorr* [117]. L'image de référence est construite en réalisant la moyenne de toutes les images enregistrées en présence des ondes. Nous mesurons le champ de déplacement dans une fenêtre rectangulaire de dimensions 1.8×1.6 cm dont le haut est situé légèrement sous la surface du gel.

Nous présentons deux exemples de champs de déplacement instantanés mesurés dans un gel de module $\mu = 90$ Pa et d'épaisseur h = 1 cm. La figure D.6a montre la norme du déplacement (codée en niveaux de gris) à laquelle nous avons superposé des flèches représentant le vecteur déplacement **u** pour une fréquence d'excitation de 120 Hz. L'amplitude des déplacements est de l'ordre de la dizaine de micromètres, ce qui correspond à un déplacement d'un pixel. Le vecteur d'onde n'est pas parallèle à la surface, il forme avec cette dernière un angle d'environ 45°. Les ondes que nous observons à la surface possèdent un vecteur d'onde k_x qui est la projection du vecteur d'onde **k** selon la direction x. L'amplitude du déplacement semble amortie plus rapidement dans la direction verticale que le long de la surface. Le champ de déplacement obtenu pour une fréquence d'excitation de 40 Hz fait l'objet de la figure D.6b. Nous observons des déplacements dans la totalité de



FIGURE D.5 : Schéma du montage permettant la mesure du champ de déplacement dans une tranche (xz) d'un gel de module de cisaillement μ et d'épaisseur h. Nous excitons des ondes planes à la surface du gel à l'aide d'un pot vibrant et nous déduisons, par corrélation d'images, le champ de déplacement en suivant le mouvement de particules dispersées dans le gel que l'on illumine à l'aide d'une nappe laser. Nous mesurons le champ de déplacement dans un rectangle de dimensions 1.8×1.6 cm.



FIGURE D.6 : **a** Champ de déplacement mesuré dans une tranche (xz) d'un gel $(\mu = 90$ Pa et h = 2.3 cm) excité à la fréquence de 120 Hz. La source se situe en haut à gauche hors de l'image et nous visualisons les déplacements dans une zone de dimensions 1.8×1.6 cm. **b** Champ de déplacement obtenu dans les mêmes conditions mais pour une excitation à 40 Hz. Nous observons des mouvements dans toute l'épaisseur de l'échantillon et la formation d'un motif carré. **c** Carte de la relation de dispersion des ondes se propageant dans la direction x dans un gel d'Agar de module $\mu = 90$ Pa et h = 2.3 cm.

l'épaisseur de l'échantillon. La norme de \mathbf{u} ne semble pas être amortie dans la direction verticale. Nous remarquons la présence d'un motif carré dont nous interpréterons la formation par la suite.

Nous rapprochons ces deux champs de déplacement de la relation de dispersion du gel que l'on présente dans la figure D.6c. La relation de dispersion fait apparaître une unique branche quand f = 120 Hz, le déplacement est atténué avant d'atteindre le bas de l'échantillon. Au contraire, plusieurs modes sont présents pour f = 40 Hz quand nous observons des mouvements dans toute l'épaisseur du gel. Nous pouvons alors confirmer le lien entre le confinement dans la direction verticale et la présence de plusieurs modes en surface.

Ce lien entre relation de dispersion et champ de déplacement dans une tranche parallèle à la direction de propagation peut également être rendu quantitatif en mesurant le vecteur d'onde associé aux mouvements verticaux dans la direction x et en le comparant aux mesures effectuées en surface. Nous analysons par transformée de Fourier fréquentielle et spatiale les champs de déplacement vertical déduits de séquences d'images enregistrées pour une fréquence d'excitation constante, f. Nous isolons alors le spectre spatial associé associé à f. La figure D.7a montre le spectre spatial obtenu en soumettant un gel ($\mu = 90$



FIGURE D.7 : a Spectre spatial obtenu à partir de la mesure du champ de déplacement vertical dans un hydrogel ($\mu = 90$ Pa et h = 2.3 cm) pour une fréquence d'excitation de 120 Hz. b Champ d'onde correspondant au spectre présenté en a. On observe à la surface uniquement la composante selon x du vecteur d'onde.

Pa et h = 2.3 cm) à une excitation de fréquence constante de 120 Hz. L'amplitude du signal est représentée en niveaux de gris (plus un pixel est foncé, plus le signal est fort). Le spectre est composé d'un unique pic correspondant à une onde se propageant dans le volume du gel dont nous représentons le champ d'onde dans la figure D.7b. L'atténuation des ondes semble plus forte dans la direction verticale que le long de la surface. Nous trouvons la composante selon x du vecteur d'onde, $k_x = 1530 \pm 300 (1/m)$: soit une valeur en accord avec celle obtenue lors des mesures en surface.

Le spectre spatial mesuré pour une fréquence d'excitation de 40 Hz fait l'objet de la figure D.8a. Le spectre est notablement différent de celui observé pour f = 120 Hz. Nous remarquons la présence de deux pics correspondant à des vecteurs d'ondes possédant des composantes égales selon l'axe x et opposées selon l'axe z. La projection du vecteur d'onde sur la direction de propagation donne $k_x = 804 \pm 400$ (1/m), un résultat en accord avec la relation de dispersion. Nous ne détectons toutefois pas la présence des modes multiples observés en surface du fait de l'étroitesse spatiale de notre fenêtre de mesure des déplacements. Le champ d'onde associé à ce spectre, présenté dans la figure D.8b, fait apparaître un motif carré. Ce motif est créé par interférence entre l'onde incidente, correspondant au pic entouré en rouge dont nous représentons le champ d'onde dans la figure D.8c, et l'onde réfléchie au fond de la cuve, correspondant au pic entouré en vert dont nous représentons le champ d'onde dans la figure D.8d. Les visualisations des ondes incidentes et réfléchies sont obtenues par transformée de Fourier inverses du spectre spatial sur lequel nous filtrons l'un des deux pics.

La mesure des champs de déplacement permet de valider notre hypothèse d'ondes se propageant dans le volume des gels. La présence de modes multiples semble être liée à l'interaction entre l'onde incidente et l'onde réfléchie au fond de la cuve.



FIGURE D.8 : a Spectre spatial obtenu à partir de la mesure du champ de déplacement vertical dans un hydrogel ($\mu = 90$ Pa et h = 2.3 cm) pour une fréquence d'excitation de 40 Hz. Nous remarquons la présence de deux pics correspondants à des vecteurs d'onde orientés selon les directions $\pm z$. b Champ d'onde correspondant au spectre présenté en a. Nous remarquons la présence d'un motif carré créé par l'interférence de l'onde incidente et de l'onde réfléchie au fond de la cuve. c Visualisation de l'onde incidente obtenue par transformée de Fourier inverse du spectre spatial sur lequel nous avons filtré la composante ayant un vecteur d'onde dans la direction +z. d Champ de l'onde réfléchie obtenu par transformée de Fourier inverse.

D.3 Instabilité de Faraday élastique

Nous étudions une seconde façon de générer des ondes dans un hydrogel : l'instabilité paramétrique de Faraday. Cette instabilité a été observée pour la première fois par Michael Faraday [118] dans un liquide vibré verticalement et plus récemment dans un hydrogel [110]. Dans les deux cas, un motif d'ondes stationnaires apparaît à la surface à une fréquence égale à la moitié de la fréquence de forçage si l'amplitude de l'excitation est suffisante. L'expression de la longueur d'onde en fonction de la fréquence de forçage a été obtenue pour un liquide non visqueux par Benjamin et Ursell [119]. La viscosité du liquide, qui joue un rôle important dans le seuil d'apparition de l'instabilité, a été prise en compte par Kumar et Tuckerman [120].

Nous coulons des gels d'Agar dans une cuve carrée de 12 cm de côté que nous fixons sur un pot vibrant (Brüel & Kjaer). Nous fabriquons des gels de module de cisaillement $\mu = 90$ Pa et $\mu = 380$ Pa et d'épaisseur h = 1.1 cm et h = 2.3 cm. La cuve est vibrée verticalement à une fréquence f (figure D.9a). Nous observons les motifs à la surface du gel en vue de dessus puis à l'aide d'un motif en damier placé au fond de la cuve dont nous analysons la déformation avec l'algorithme FCD.

Dans un premier temps, nous rapportons les motifs obtenus pour différentes fréquences d'excitation à la surface d'un gel de module $\mu = 90$ Pa et d'épaisseur h = 2.3 cm. Nous avons vérifié lors de ces expériences que les ondes stationnaires à la surface du gel oscillent à une fréquence égale à la moitié de la fréquence de forçage. La figure D.9b montre les motifs, visualisés par réflexion, obtenus pour différentes fréquences d'excitation. Nous observons un motif carré sur les trois instantanés, correspondant à des fréquences de 40 Hz, 60 Hz et 80 Hz. Ce motif peut être orienté à 45° par rapport aux bords de la cuve (f = 40Hz et f = 60 Hz) ou être orienté dans la même direction que les bords (f = 80 Hz), un



FIGURE D.9 : **a** Nous générons l'instabilité de Faraday en vibrant verticalement un hydrogel à l'aide d'un pot vibrant. **b** Vue de dessus de l'instabilité de Faraday obtenue à la surface d'un hydrogel (module de cisaillement $\mu = 90$ Pa, épaisseur h = 2.3 cm) pour des fréquences d'excitation de 40 Hz, 60 Hz et 80 Hz. La cuve mesure 12 cm de côté.

comportement déjà rapporté pour les liquides [121]. Lorsque l'on augmente la fréquence, la longueur d'onde du motif diminue.

D.3.1 Mesure de la relation de dispersion

Pour quantifier le lien entre fréquence d'excitation et longueur d'onde du motif, nous mesurons le champ de hauteur de la surface du gel à l'aide de la technique de Schlieren synthétique. Nous déterminons le champ d'onde lié à l'instabilité de Faraday quand le motif occupe toute la cuve. Dans ce cas, nous travaillons à forte amplitude de forçage; l'hypothèse de faible pente utilisée pour la reconstruction du champ de hauteur n'est plus vérifiée. Nous pouvons néanmoins mesurer la longueur d'onde dans ces conditions. Cette dernière est obtenue en mesurant les champs de hauteur correspondant à une séquence d'images. Par transformée de Fourier fréquentielle nous extrayons les déformations oscillant à la fréquence moitié de la fréquence d'excitation ; une transformée de Fourier spatiale nous permet alors d'obtenir le nombre d'onde correspondant au motif de Faraday.

Nous superposons dans la figure D.10 les cartes de la relation de dispersion mesurées lors de la propagation d'ondes planes générées par un point source et les résultats obtenus dans l'expérience de Faraday (points rouges). Les deux expériences sont en bon accord quand nous varions à la fois le module de cisaillement et la profondeur de l'échantillon que l'on considère. Ces résultats suggèrent que nous générons les mêmes ondes dans les deux expériences. Néanmoins, nous n'avons pas observé la coexistence de plusieurs nombres d'onde pour une fréquence donnée pour l'instabilité de Faraday. La plage de fréquence dans laquelle nous observons l'instabilité est peu étendue. A faible fréquence, la longueur d'onde est de l'ordre de la taille de la cuve et ne peut être mesurée. A haute fréquence, le seuil d'apparition de l'instabilité ne peut pas être atteint par notre dispositif expérimental, nous ne parvenons pas à créer un motif. Cette limite est atteinte pour une fréquence de Faraday de 100 Hz pour le gel de module $\mu = 90$ Pa, et de 60 Hz pour le gel de module $\mu = 380$ Pa. Le seuil de l'instabilité est plus élevé pour le gel le plus rigide, c'est à dire



FIGURE D.10 : Superposition des cartes des relations de dispersion pour des ondes planes générées par un point source et des mesures réalisées sur les motifs de Faraday (points rouges). (a $\mu = 90$ Pa et h = 1.1 cm, b $\mu = 380$ Pa et h = 1.1 cm, c $\mu = 380$ Pa et h = 3.4 cm). L'accord entre les deux expériences suggère que nous générons les mêmes ondes par les deux méthodes d'excitation.

pour le gel dont le module de perte G'' est le plus élevé.

Nous sommes capables de générer l'instabilité de Faraday dans un hydrogel. Les ondes que nous observons sont les mêmes que celles que l'on obtient en excitant le solide avec un point source. Nos mesures suggèrent que le seuil de déclenchement de l'instabilité dépend du module de perte G'' du gel.

D.4 Proposition de calcul de la relation de dispersion

Nous cherchons à calculer la relation de dispersion des ondes élastiques qui se propagent dans nos gels. L'originalité de ces matériaux tient à la présence de trois forces de rappel agissant sur la surface libre : l'élasticité à l'origine des ondes élastiques dans les solides, la gravité et la tension de surface à l'origine des ondes capillaires dans les liquides. Deux stratégies ont été développées pour modéliser la propagation d'ondes dans les gels. La première motivée par l'étude de la transition sol-gel consiste à modéliser le matériau comme composé d'un réseau viscoélastique rempli d'un solvant et à résoudre le système couplant les équations du mouvement de ces deux composants [122, 123]. La seconde traite le matériau comme un solide élastique et fait intervenir la capillarité en introduisant une condition aux limites à la surface libre liant la contrainte normale et la courbure de l'interface.

C'est cette seconde approche que nous avons choisi de suivre. Nous modélisons les gels



FIGURE D.11 : Nous considèrons les ondes se propageant dans une plaque d'épaisseur h et d'extension infinie dans les directions x et z.

comme des solides élastiques de densité ρ et de coefficients de Lamé λ et μ .

D.4.1 Ondes dans un échantillon d'épaisseur finie

Nos expériences ayant mis en évidence le rôle joué par l'épaisseur finie du gel, nous considèrons les ondes se propageant dans un domaine d'épaisseur h représenté dans la figure D.11. Nos calculs sont largement inspirés de la dérivation des ondes de plaque, ou ondes de Lamb [124], présents dans des ouvrages de référence [125]. Nous décomposons le déplacement **u** en une composante longitudinale irrotationnelle \mathbf{u}_l et une composante transverse à divergence nulle \mathbf{u}_t . La contribution longitudinale peut être décrite par un potentiel scalaire que nous nommons Φ et la contribution longitudinale par un potentiel vecteur, **H** :

$$\mathbf{u} = \mathbf{u}_l + \mathbf{u}_t = \nabla \Phi + \nabla \times \mathbf{H}.$$

Nous pouvons alors écrire les déplacements en fonction des potentiels vecteurs :

$$u_x = \frac{\partial \Phi}{\partial x} + \frac{\partial H_z}{\partial y}$$
$$u_y = \frac{\partial \Phi}{\partial y} - \frac{\partial H_z}{\partial x}.$$

Les deux potentiels Φ et **H** vérifient l'équation d'onde de d'Alembert :

$$\nabla^2 \Phi - \frac{1}{c_l^2} \frac{\partial^2 \phi}{\partial t^2} = 0$$
$$\nabla^2 H_z - \frac{1}{c_t^2} \frac{\partial^2 H_z}{\partial t^2} = 0$$

où les vitesses des ondes longitudinales et transverses sont données par $c_l = \sqrt{\frac{\lambda+2\mu}{\rho}}$ et $c_t = \sqrt{\frac{\mu}{\rho}}$. Nous cherchons des solutions sous la forme d'ondes se propageant selon l'axe x soit des solutions de la forme $\Phi = f(y)e^{i(kx-\omega t)}$ et $H_z = ih(y)e^{i(kx-\omega t)}$. En insérant ces formes de solution dans l'équation d'onde nous trouvons :

$$\frac{\partial^2 f}{\partial y^2} + \alpha^2 f = 0$$

$$\frac{\partial^2 h}{\partial u^2} + \beta^2 h = 0$$

où $\alpha^2 = \omega^2/c_l^2 - k^2$ et $\beta^2 = \omega^2/c_t^2 - k^2$. Les solutions des deux équations précédentes sont :

$$f = A \sin \alpha y + B \cos \alpha y$$
$$h = C \sin \beta y + D \cos \beta y.$$

Nous déduisons alors les déplacements u_x et u_y :

$$u_x = i \left[k(A\sin\alpha y + B\cos\alpha y) + \beta(C\cos\beta y - D\sin\beta y) \right] e^{i(kx - \omega t)}$$
$$u_y = \left[\alpha(A\cos\alpha y - B\sin\alpha y) + k(C\sin\beta y + D\cos\beta y) \right] e^{i(kx - \omega t)}.$$

Nous remarquons que la forme du champ de déplacement, résultant de notre choix de conditions aux limites, montre la présence de mouvement dans toute l'épaisseur du gel, en accord avec nos observations expérimentales. Nous exprimons ensuite les contraintes σ_{xy} et σ_{yy} :

$$\sigma_{xy} = \rho c_t^2 \left(\frac{\partial u_x}{\partial y} + \frac{\partial u_y}{\partial x} \right)$$
$$\sigma_{yy} = \rho c_l^2 \frac{\partial u_y}{\partial y} + \rho (c_l^2 - 2c_t^2) \frac{\partial u_x}{\partial x}$$

Les conditions aux limites à l'interface libre y = 0 sont (i) $\sigma_{xy} = 0$ et $\sigma_{yy} = \gamma \frac{\partial^2 u_y}{\partial x^2} - \rho g u_y$. Au fond de la cuve, y = -h, nous imposons un déplacement nul dans les deux directions : $u_x(y = -h) = u_y(y = -h) = 0$. Ces quatres conditions permettent d'obtenir quatre équations faisant intervenir les constantes A, B, C et D. Ce système d'équation peut s'écrire sous la forme matricielle¹:

$$\begin{bmatrix} -k\sin\alpha h & k\cos\alpha h & \beta\cos\beta h & \beta\sin\beta h \\ \alpha\cos\alpha h & \alpha\sin\alpha h & -k\sin\beta h & k\cos\beta h \\ 2k\alpha & 0 & 0 & k^2 - \beta^2 \\ k^2\alpha(\gamma + \rho g/k^2) & \rho c_t^2(k^2 - \beta^2) & 2\rho c_t^2k\beta & k^3(\gamma + \rho g/k^2) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A \\ B \\ C \\ D \end{bmatrix} = 0.$$
(D.1)

Nous obtenons alors la relation de dispersion en prenant le déterminant de la matrice 4x4 présente dans l'équation D.1 :

$$4\alpha\beta k^{2}(k^{2}-\beta^{2})+k^{2}\sin\alpha h\sin\beta h\left((k^{2}-\beta^{2})^{2}-\alpha^{2}\beta^{2}\right)-\alpha\beta\cos\alpha h\cos\beta h\left(4k^{4}+(k^{2}-\beta^{2})^{2}\right)$$
$$-\left(\frac{\gamma}{\mu}+\frac{\rho g}{\mu}\frac{1}{k^{2}}\right)\alpha k^{2}(k^{2}+\beta^{2})(k^{2}\cos\alpha h\sin\beta h+\alpha\beta\cos\beta h\sin\alpha h)=0 \quad (D.2)$$

Nous rendons l'équation D.2 sans dimension en introduisant les variables $k^* = kh$ et $\omega^* = \omega h/c_t$. Nous identifions alors deux nombres sans dimension : $\Gamma = \gamma/(\mu h)$ et $G = \rho g h/\mu$ qui comparent l'importance relative de, respectivement, l'élasticité et la capillarité, la gravité

1. On utilise l'astuce : $2k^2 - \frac{c_l^2}{c_t^2}(k^2 + \alpha^2) = k^2 - \beta^2$.



FIGURE D.12 : Superposition des cartes des relations de dispersion pour des ondes planes générées par un point source et des relations de dispersion calculées pour les ondes de Lamb modifiées par la capillarité sans paramètre ajustable (lignes rouges). ($\mathbf{a} \ \mu = 90$ Pa et h = 1.1 cm, $\mathbf{b} \ \mu = 380$ Pa et h = 1.1 cm, $\mathbf{c} \ \mu = 380$ Pa et h = 3.4 cm). L'accord entre les prédictions et les mesures n'est pas satisfaisant, néanmoins la présence et le nombre de branches est bien capturé.

etl'élasticité. Les effets capillaires sont dominants quand la profondeur est inférieure à la longueur élasto-capillaire γ/μ . Cette longueur est de l'ordre de 1 mm pour un hydrogel de module de cisaillement $\mu = 100$ Pa. Au contraire, les effets gravitaires dominent les effets élastiques quand la profondeur est supérieure à la longueur élasto-gravitaire $\mu/(\rho g)$, soit 1 cm pour un gel de module de cisaillement $\mu = 100$ Pa.

La comparaison entre la prédiction calculée à partir de la résolution numérique de l'équation D.2 et les cartes de la relation de dispersion est présentée dans la figure D.12. L'accord entre les prédictions et les mesures n'est pas satisfaisant. Cependant, la présence de branches, leur pente locale et leur nombre semble correctement prédit quand on fait varier le module de cisaillement et l'épaisseur de l'échantillon. Le modèle ne capture pas la transition entre le régime où nous observons la coexistence de plusieurs modes et le régime, à haute fréquence, où nous n'observons plus qu'une seule branche. L'unique branche présente à haute fréquence possède une pente plus élevée que les branches prédites.

Nous mettons en évidence l'effet de la tension de surface sur la relation de dispersion en utilisant un gel dont la profondeur est de l'ordre de la longueur élasto-capillaire. La figure D.13a présente la relation de dispersion obtenue dans un hydrogel de module de cisaillement $\mu = 90$ Pa et d'épaisseur h = 2 mm. Notre modèle est en bon accord avec les mesures uniquement si l'on prend en compte la capillarité (ligne rouge), notre approche est donc capable de rendre compte des effets capillaires sur les ondes se propageant à la surface



FIGURE D.13 : Superposition des cartes des relations de dispersion pour des ondes planes générées par un point source et des relations de dispersion calculées (lignes rouges). **a** $\mu = 90$ Pa et h = 2mm, l'utilisation d'un gel très fin nous permet de mettre en évidence le rôle joué par la capillarité. La prédiction prenant en compte l'effet de la tension de surface (ligne rouge) ajuste mieux les données que la prédiction élastique (ligne rouge pointillée). **b** et **c** $\mu = 90$ Pa et h = 1.1 cm, nous mettons en évidence l'effet de la gravité en mesurant la relation de dispersion dans le même gel dont la surface libre est orientée vers le haut (**b**, prédiction ligne rouge) ou vers le bas(**c**, prédiction ligne rouge pointillée).

d'un solide élastique. Nous montrons également l'influence de la gravité sur la relation de dispersion en mesurant cette dernière pour un même gel ($\mu = 90$ Pa, h = 1.1 cm) dont la surface libre est orientée vers le haut (figure D.13b) ou vers le bas (figure D.13c). Notre modèle rend compte des variations, observées pour de faibles nombres d'onde, liées au changement de direction de la gravité.

D.4.2 Ondes de surface

Pour mieux comprendre le comportement des ondes lorsque nous n'observons pas la coexistence de plusieurs branches, c'est à dire quand le déplacement vertical est confiné à la surface du gel, nous calculons également la relation de dispersion des ondes se propageant à la surface d'un matériau élastique semi-infini, les ondes de Rayleigh [126], en présence de capillarité. Nous reprenons la dérivation classique de la relation de dispersion des ondes ondes de Rayleigh présentée par [127]. La prise en compte de la tension de surface modifie uniquement la condition aux limites sur la contrainte normale au niveau de la surface libre : $\sigma_{yy} = \gamma \frac{\partial^2 u_y}{\partial x^2}$. Nous cherchons des solutions de l'équation d'onde sous la forme :

$$\mathbf{u}_{l,t} = \mathbf{a}e^{i(kx-\omega t)}e^{\kappa_{l,t}y}$$

où $\kappa_{l,t} = \sqrt{k^2 - \omega^2/c_{l,t}^2}$. La relation de dispersion est obtenue en prenant en compte les conditions aux limites à l'interface libre et en nous assurant que les ondes décroissent dans le volume du gel. Nous trouvons alors la relation de dispersion qui s'écrit pour un matériau incompressible :

$$4k^3 \sqrt{k^2 - \frac{\omega^2}{c_t^2}} - (2k^2 - \frac{\omega^2}{c_t^2})^2 + \frac{\gamma k^3 \omega^2}{\rho c_t^4} = 0.$$
(D.3)

Notons que Onodera *et al.* [128] ont dérivé, par la même méthode, une relation de dispersion différente en imposant l'incompressibilité du matériau dès le début du calcul. Nous trouvons les couples ω et k solution de l'équation D.3 en normalisant le nombre d'onde k par la longueur élasto-capillaire γ/μ et en introduisant la variable $r = \omega/(kc_t)$. Les solutions de l'équation D.3 sont alors les racines du polynôme :

$$r^{6} - (8 + 2k^{*})r^{4} + (24 + 8k^{*} + k^{*2})r^{2} - 16 - 8k^{*}$$
(D.4)

où $k^* = k\gamma/\mu$. La relation de dispersion est déterminée en sélectionnant l'unique racine réelle, positive et inférieure à 1 du polynôme D.4. Quand $k^* = 0$, nous reconnaissons le polynôme donnant la solution des ondes de Rayleigh pour lequel r = 0.955. La présence de la capillarité entraine l'augmentation de la valeur de r avec k^* jusqu'à atteindre r = 1, une valeur pour laquelle le déplacement diverge quand $y \to \infty$. La tension de surface cause une augmentation de la pente de la relation de dispersion des ondes de Rayleigh, un phénomène qui peut faire penser à l'augmentation de la pente que nous observons dans les relations de dispersion en surface.

D.5 Conclusion et perspectives

Nous avons mis en évidence l'existence de l'instabilité de Faraday dans des hydrogels vibrés verticalement et caractérisé les ondes se propageant à la surface d'un tel matériau. Nous avons montré que les ondes qui déforment la surface du gel sont sensibles aux caractéristiques mécaniques mais aussi au confinement de nos échantillons dans la direction verticale. Pour prédire ce comportement nous avons modélisé les gels comme des solides élastiques dont l'interface est soumise à une force de rappel supplémentaire : la tension de surface. Bien que nous ne soyons pas encore capables de prédire quantitativement la relation de dispersion, notre approche permet de retrouver qualitativement les effets observés expérimentalement. Nous prédisons localement la relation de dispersion mais ne capturons pas la localisation de l'énergie.

De nombreuses expériences complémentaires restent à effectuer pour compléter ce travail. Etudier les ondes se propageant dans des gels de module de cisaillement plus faible et nous permettra de rendre les effets capillaires plus visibles. Des expériences plus précises sont aussi nécessaires pour tenter de visualiser la présence de plusieurs modes sur les motifs de Faraday et pour déterminer le seuil d'apparition de l'instabilité. Notre démarche de

D.5. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

modélisation semble être sur la bonne voie pour prédire les effets observés, nous pensons que la prise en compte de la dissipation dans les hydrogels nous permettra d'affiner notre compréhension de ces matériaux.

Annexe E

Articles publiés

Article 1

Cet article reprend les résultats présentés au chapitre 2.

Water ring-bouncing on repellent singularities

Pierre Chantelot^{1,2}, Ali Mazloomi Moqaddam³, Anaïs Gauthier^{1,2}, Shyam S. Chikatamarla³, Christophe Clanet^{1,2}, Ilya V. Karlin³ & David Quéré^{1,2}

 Physique & Mécanique des Milieux Hétérogènes, UMR 7636 du CNRS, ESPCI, 75005 Paris, France.
 LadHyX, UMR 7646 du CNRS, École polytechnique, 91128 Palaiseau, France.
 Aerothermochemistry and Combustion Systems Laboratory, Mechanical and Process Engineering Department, ETH Zurich, 8092 Zurich, Switzerland.

f

Texturing a flat superhydrophobic substrate with point-like superhydrophobic macrotextures of same repellency makes impacting water droplets take off as rings, which leads to shorter bouncing times than on a flat substrate. We investigate the contact time reduction on such elementary macrotextures through experiment and simulation. We understand the observations by decomposing the impacting drop reshaped by the defect into sub-units (or blobs) whose size is fixed by the liquid ring width. We test the blob picture by looking at the reduction of contact time for off-centered impacts and for impacts in grooves that produce liquid ribbons where the blob size is fixed by the width of the channel.

Introduction

The most spectacular property of superhydrophobic materials might be their ability to reflect impacting drops [1-4]. This property is important for applications because it defines an antirain function that preserves the dryness of a solid in wet weather [5] and prevents impregnation [6], wetting [7-8], optical distortion [9] and corrosion [10] arising from contact with water. When wettability is low enough, the spreading of impinging drops is followed by recoil and takeoff, in a spring-like fashion [2]. Consequently, the contact time τ of the rebound is set by the (square root of the) ratio between mass (representing inertia) and surface tension (standing for spring stiffness) so that the contact time scales as $\sqrt{\rho R^3/\gamma}$ where ρ stands for the density of water, γ its surface tension and R is the drop radius. This time is on the order of 10 ms for millimeter-size drops, which can be large enough to induce freezing when the solid is very cold [3, 11-12]. Hence it is relevant to find ways to reduce the time τ [3-4, 14-16], which also favors repellency of water containing surfactants [13]. As shown recently [3-4], a reduction of contact time can be triggered by placing macrotextures such as ridges or cones at the solid surface. The scale of these textures is intermediate between the drop size and that of nano/microstructures needed for repellency, which reshapes the liquid at impact and consequently tunes the contact time. Here we propose to test this idea with the simplest imaginable macrotexture, that is, a mere point-like defect. Despite its extreme simplicity, this texture is found to induce reduction of contact time comparable to that of more extended structures (such as lines) and, surprisingly, to maintain this reduction as impacts get off-centered – a property of obvious practical interest if we think of anti-rain features.

The substrate we consider is obtained by attaching a glass bead with radius $r = 200 \pm 20 \,\mu\text{m}$ to a silicon wafer. The bead is deposited on the center of ~100 pL of glue brought with a thin fiber, so that the glue meniscus remains small and axisymmetric. After drying, the flat surface and the bead are made equally water-repellent by spraying a solution of hydrophobic nanobeads (with size ~20 nm) dispersed in acetone (Ultra Ever Dry, UltraTech International). Once the solvent is evaporated, the solid is coated by nanobeads that form aggregates with a characteristic size of 500 nm (see supplementary figure 1), which makes it uniformly super-hydrophobic. Water laid on the textured surface exhibits advancing and receding contact angles of $166^{\circ} \pm 4^{\circ}$ and $159^{\circ} \pm 2^{\circ}$, respectively. These high angles and low hysteresis are typical of water-repellent materials.

Contact time reduction on repellent singularities

Our experiment consists in impacting distilled water (density $\rho = 1000 \text{ kg/m}^3$ and surface tension $\gamma = 72 \text{ mN/m}$) on these macro/nano-textured substrates. As sketched in figure 1a, we first perform centered impacts. The drop radius *R* can be varied between 1 and 2.4 mm by using calibrated needles, whose height is adjusted to generate impact speeds *V* between 0.4 and 1.6 m/s. At such velocities, the integrity of drops is always preserved. Top and side views are shot by two high-speed video cameras (Phantom V7) working at typically 10000 frames per second. The drop surface-free oscillations can be estimated from the experimental movies: as they always remain smaller than 17% of the drop radius, they do not disturb significantly the outcome of impacts - and specifically hardly affect the measurement of the contact time.

Drops always fully bounce on the substrate albeit with two distinctly different behaviors. (1) At low impact velocity (V < 0.9 m/s for R = 1.3 mm), the rebound is not affected by the macrotexture. Water spreads, recoils and takes off as it does when impacting a flat superhydrophobic material. (2) For $V > V^*$ ($V^* = 0.9$ m/s for R = 1.3 mm), the drop adopts an unusual ring shape as it leaves the substrate (Figure 1b and Supplementary Movie 1). The defect does not modify the extension of the spreading drop, but the thin central film gets punctured. This film dewets outwards until it collides with the outer receding rim moving in the opposite direction. The collision creates an upward motion, which eventually leads to the takeoff of a ring. This ring then closes, which generates oscillations without fragmenting water, provided the Weber number $We = \rho R V^2 / \gamma$ remains smaller than 40.



Figure 1: a. A water drop with radius *R* (between 1 and 2.4 mm) impacts at a velocity *V* (between 0.4 and 1.6 m/s) a glass bead with radius $r = 200 \ \mu\text{m}$ glued to a silicon wafer. Both the substrate and the bead are made equally superhydrophobic. **b.** High-angle shot of a water droplet with radius $R = 1.6 \ \text{mm}$ impacting the point-like defect at $V = 1.2 \ \text{m/s}$ (centered impact). The drop takes off as a ring at a time $\tau = 10.3 \ \text{ms}$. **c.** Contact time τ of water drops ($R = 1.3 \ \text{mm}$) bouncing off a repellent wafer (black triangles, τ_0) and a similar surface with the defect (blue dots, experimental data; red circles, simulation results). Both times are plotted as a function of the impact velocity *V*. **d.** Contact times τ (with defect) and τ_0 (without defect) as a function of the drop radius R. τ is measured in the high-speed regime ($V > V^*$) where it is reduced (blue dots, experimental data; red circles, simulation results). Fits are $\tau_0 \approx 2.6 \ (\rho R^3/\gamma)^{1/2}$ (black dashed line) and $\tau \approx 0.48 \ \tau_0$ (blue dashed line); error bars stand for the variations seen in the two plateaus in **c**, which partially originate from the free-surface oscillations of the falling drop.

The contact time τ is measured between the drop/macrobead contact and the take off from the repellent material, including the macrotexture. τ reflects the two regimes of impact, as visible in figure 1c. As reported earlier [2] and confirmed in Figure 1c, its value τ_0 on a flat repellent substrate (black triangles) does not depend on impact velocity. In contrast, two plateaus are observed in the presence of the point-like macrotexture (blue dots in figure 1c). While we have $\tau \approx \tau_0$ for $V < V^*$, the contact time is drastically and abruptly reduced for $V > V^* = 0.9$ m/s, where it is found to reach a new value $\tau \approx 0.48\tau_0$ in a large range of velocities. This reduction of contact time univocally corresponds to the cases when water takes off with a ring-shape. The transition is caused by the puncture of the film, which happens when the size of the defect is close to the film thickness *h*, set by the Weber number. For a spherical defect with radius $r = 200 \ \mu m$ the transition happens for We = 20 ± 2 (as indicated in Supplementary Figure 2). In the regime $V > V^*$ (figure 1d, same symbols as in figure 1c), both τ_0 and τ are measured as a function of the drop radius *R*. For each family of data, $\tau(R)$ follows a scaling law of exponent 1.50 ± 0.03 . Hence contact times are proportional to the square root of the

drop mass, a signature of the balance between inertia and capillarity [2-3]. On a flat surface, this balance can be written $\tau_0 \approx 2.6 (\rho R^3 / \gamma)^{1/2}$ [3], a law drawn with a black dashed line in figures 1c and 1d. In the presence the point-like defect, the scaling law above V^* is the same $(\tau \sim (\rho R^3 / \gamma)^{1/2})$, yet with a prefactor of 1.24 ± 0.3 instead of 2.60 ± 0.2.

Our aim is to understand how a marked reduction of contact time can arise from the presence of a point-like, isotropic, hydrophobic defect. A first approach consists of simulating the complex interaction of water with the substrate. To that end, we use the entropic lattice Boltzmann method (ELBM) for multiphase flows [17-19]. The simulation parameters are matched to the experimental conditions by identifying the Weber number and the Reynolds number ($Re = \rho RV/\eta$, where η is the liquid viscosity), and considering a solid-liquid contact angle of 161° comparable to that of our surfaces. To convert lattice time t_{LB} into seconds, we first compute the inertio-capillary time $T_{LB} = (\rho R^3 / \gamma)^{1/2}$ using the density, droplet radius and surface tension in lattice units. Next, inertio-capillary time T_{exp} is extracted from the experimental data and the reduced times for both the experiment and the simulation are matched, $t_{LB}/T_{LB} = t/T_{exp}$. Thus, given t_{LB} (the number of time steps), we uniquely obtain the corresponding physical time $t = (T_{exp}/T_{LB})t_{LB}$. Figure 2 and Supplementary Movie 2 show ELBM simulation of drop impact on a spherical macrodefect at Weber number $We \sim 30$, corresponding to the conditions explored in figure 1c. The sequence is observed to be in excellent agreement with experiments: the drop spreads and thins out before a ring forms and departs at a time $\tau = 6.7$ ms, a value close to measurements ($\tau = 6.6 \pm 0.1$ ms). Simulations also allow us to explore quantities more difficult to access experimentally. Specifically, figure 2 shows the evolution of the drop cross-section during impact (hidden by a peripheral rim in the experiments). Original observations can be made: (i) Central dewetting occurs when the film thickness compares to the size of the defect that acts as a nucleator of dewetting. For a given drop, this fixes the Weber number at which a ring forms. (ii) Vertical momentum is brought to the system when the rim arising from the dewetting film collides with the receding peripheral outer rim. (iii) The outer bulge carries the dominant momentum so that the latter shock is not symmetric. This generates obliquity in the cross-section of the departing ring, in the final view in figure 2. Further information regarding the flow inside the drop can be seen in the Supplementary Movie 3, and it confirms that collision between opposing rims is the mechanism for creating upward momentum. All these observations do not depend on the actual shape of the surface defect, as seen in Figure 1 in the Supplementary Information where we show experimental results for conical hills and cylindrical defects. We can finally extract from simulations the contact time as a function of V and R. Simulation results in figure 1c and 1d (empty red circles) reproduce the two plateaus corresponding to the two regimes of impact, in excellent quantitative agreement with experiments.



Figure 2: Simulation of a droplet with radius R = 1.3 mm impacting at V = 1.28 m/s a substrate macrotextured by a sphere with radius $r = 200 \mu$ m. For each time, we show high-angle views and cross-sections, allowing us to access the formation of the ring (at t = 3.7 ms), the collision between opposite rims (at t = 6.1 ms) and the takeoff (at t = 6.7 ms).

Blob model

Earlier studies showed that reshaping drops at impact generally affects their contact time. Water impinging slender defects (ridges, fibers) makes lobes that spread and retract, so that it was proposed to take the lobe mass m (instead of the drop one, m_o) as the one fixing the contact time, leading to a reduction of this time by a factor $(m_o/m)^{1/2}$ [14]. Here we propose to generalize this idea to situations where there is no distinct lobes, such as observed when water takes off with a ring shape. Then we consider impacts in grooves, so that impinging water is channeled and makes impact geometry anisotropic, allowing us to test our models in very different situations.

A drop on point-like defects successively spreads and retracts, but the retraction stage occurs both from the drop edges and center, if the defect is large enough to pierce the spreading film. Hence the ring width ℓ appears to be the relevant distance characterizing liquid sub-units (or blobs): for each of these blobs, water spreads and later recoils, a condition for using the spring-like model and writing the corresponding law for the contact time τ . Then we expect τ to scale as $(m/\gamma)^{1/2}$, denoting *m* as the mass of each blob, so that τ can be deduced from τ_0 by a direct comparison between the blob and drop volumes. As sketched in figure 3a, the blob size ℓ compares to the maximum radius of spreading R_{max} , provided that $r \ll R_{\text{max}}$ (a condition fulfilled in our study). For centered impacts, the impact pattern is axisymmetric, allowing us to estimate the common contact time τ of the blobs composing the drop. Assuming that the average height *h* of the spread liquid is not affected by the presence of the point-like defect, the ratio between blob and drop volumes is estimated as $\pi \ell^2 h / 4\pi R_{\text{max}}^2 h$, that is, ~1/4. This immediately yields $\tau \approx \tau_0/2$, in good agreement with our data where we have $\tau \approx 0.48 \tau_0$ (figures 1c and 1d).

A first way to test the blob model consists of off-centering the drops, which tunes the blob mass m (Figure 3b). Off-centering is achieved by adjusting the position of the syringe from which drops are dispensed. The use of micrometric screws allows us to select the distance xbetween the drop center and the defect center with a precision of 20 µm. For a given offcentering distance x > 0, blobs do not have anymore a unique size ℓ , that instead spans between a minimum $\ell_{\perp} < R_{\text{max}}$ and a maximum $\ell_{\perp} > R_{\text{max}}$ on opposite sides of the defect (Figure 3b). As observed in Figure 3c (with x = 0.7 mm and V = 1.3 m/s > V^*), asymmetrical impacts generate asymmetrical rebounds. Spreading and hole formation in the film are similar to what we reported earlier, but the drop does not anymore take off in just one time: the blob with size ℓ_{-} gets lifted after 5.7 ms, while the largest blob with size ℓ_{+} departs 1.7 ms later, which fixes the contact time τ of the whole drop – found here to be 7.4 ± 0.1 ms. Simulated cross-sections displayed in the same figure quantitatively confirm this description. Despite a strong off-centering ($x/R \approx 0.55$), contact time remains markedly reduced ($\tau \approx 0.52\tau_0$), and even comparable to that for centered impacts ($\tau \approx 0.48\tau_0$). At $t > \tau$, the rising nonaxisymmetric ring is tilted (see also Supplementary Movies 4 and 5), owing to the early takeoff of the narrow side of the ring.



Figure 3: a. Top sketch of a water droplet impacting a point-like defect, as it reaches its maximum radius. Impact is centered, and we denote as ℓ the width of the ring. **b.** Similar sketch for an impact off-centered by a distance *x*. The blobs (marked with dotted lines) are now asymmetric, with minimum and maximum size ℓ_{-} and ℓ_{+} . **c.** Water droplet (R = 1.3 mm) impacting at V = 1.3 m/s a bead with diameter r = 200 µm, with off-centering x = 0.7 mm. The left and right parts depart after 5.7 ms and $\tau \approx 7.4 \text{ ms}$, respectively. The corresponding simulations quantitatively match the experiments. **d.** Contact time τ normalized by τ_0 as a function of the normalized blob size ℓ/R_{max} . Dots are experimental data and red circles simulations for the largest blob (size ℓ_{-}).

Based on side views and cross-sections at impact (figure 3c), we can extract two contact times that respectively correspond to blob sizes ℓ_{-} and ℓ_{+} . We report in Figure 3d all the pairs of contact times obtained after varying *x* from 0 to *R*, the maximum off-centering for which we still observe ring bouncing. τ is normalized by τ_{0} , and it is plotted as a function of the blob size ℓ normalized by R_{max} , a fixed distance since we set the impact velocity ($V=1.3 \text{ m/s} > V^*$) and the drop size (R = 1.3 mm). Contact times for "small" ($\ell/R_{\text{max}} < 1$) and "large" blobs ($\ell/R_{\text{max}} > 1$) are respectively reported with triangles and circles. In addition, we indicate with empty symbols the values obtained from simulations and found here again to nicely agree with data. The contact time τ in Figure 3d increases regularly with the blob size ℓ , and the variation is close to be linear (dotted line). This observation allows us to test the blob model. Assuming that we have $m/m_0 \approx \pi \ell^2 / 4\pi R_{max}^2$, and applying the spring scaling $\tau \sim (m/\gamma)^{1/2}$, we obtain $\tau \approx \tau_0$ ($\ell/2R_{max}$), that is, a linear relationship between τ and ℓ , as observed experimentally. Scaling the contact time τ and blob size ℓ by τ_0 and R_{max} , respectively, we expect from the model a coefficient of proportionality $\frac{1}{2}$. The fit drawn with a dotted line in figure 3d has a slope 0.37. This discrepancy may arise from the estimation of the blob volume. By assuming that the spread drop has a constant thickness *h*, we do not take into account the peripheral rim (visible in figure 1b) which leads us to underestimate the volume of small blobs and overestimate that of big blobs. Then we expect to obtain a prefactor smaller than the predicted value of $\frac{1}{2}$ as seen experimentally and in simulations.

Off-centering thus allows us to tune the blob size in a continuous manner, and to measure the contact times associated with asymmetric blobs. We found that even an off-centering of order the drop radius R induces a large reduction of contact time, a result of obvious practical interest. Rain randomly hits solids of any kind, so that it is valuable to keep an effect for x as large as R, and even above as shown in the figure 2 of the SI. The blob picture provides an interpretation for this property, and we can be surprised by the efficiency of such a simple argument: hence the idea to test the model in a different geometry.

A groove etched in a solid substrate will force an impacting liquid to elongate, which results in an anisotropic impact with a fixed width – that of the groove, denoted as W. This experiment is sketched in Figure 4a, and it can be seen as akin to ring bouncing, if considering a ribbon as an unfolded torus. We machine a groove in brass, with depth 0.5 mm and width W = 2.2 mm. Owing to the presence of sharp edges, water impacting such a repellent groove pins along the edges, which artificially modifies and/or scatters the contact time. Hence we choose here to work in the Leidenfrost situation, obtained without treatment of the brass and after heating it at a temperature of 350° C – which also generates rebounds similar to that observed on a repellent material at room temperature [20]. We use ethanol as liquid, with $\rho = 728$ kg/m³ and $\gamma = 17.4$ mN/m at the boiling point 78°C at standard pressure.

Figure 4b shows simultaneous top and side views of a drop with radius R = 0.93 mm hitting a groove at V = 0.7 m/s. The liquid is channeled by the groove so that it elongates at fixed width

W, until it reaches a maximum l_{max} (at t = 3.2 ms in figure 4b). Then the bulges at the walls retract (so that the drop further elongates with a smaller width) and collide, which leads to the takeoff of a liquid cylinder at $\tau = 7.2 \pm 0.1$ ms, a time shorter than $\tau_0 = 13.6 \pm 1$ ms without groove. In figure 4c, we report the contact times τ_0 (triangles) and τ (circles) as a function of the impact velocity *V*. Contrasting with the time τ_0 , τ decreases with *V* and it is always reduced compared to τ_0 , by a factor that can be typically of order 2.



Figure 4: a. Sketch of a drop with radius *R* impacting a groove of width *W* at velocity *V*. The groove is etched in brass and heated at 350 °C so that the liquid is the Leidenfrost state. **b.** Top and side views of an ethanol drop (R = 0.93 mm and V = 0.7 m/s) impacting a groove of width W = 2.2 mm. The droplet reaches a maximal extension l_{max} and it bounces as a cylinder after 7.2 ms, a time shorter than τ_0 , the contact time on a flat surface. **c.** Contact time τ (circles) as a function of *V* for W = 2.2 mm: τ is always smaller than the contact time τ_0 of Leidenfrost drops on a flat surface (triangles). **d.** Normalized contact time τ/τ_0 as a function of $(W/l_{max})^{1/2}$, for the data of figure 4c. The dotted line has a slope 1.

We choose the blob size as the groove width, since all these sub-units composing the elongated drop successively spread and recoil perpendicularly to the groove axis. The drop volume can be written $\Omega = Wl_{max}h$ (where *h* is the average ribbon thickness), while each blob has a volume $\omega = W^2h$. We expect τ/τ_0 to vary as $(\omega/\Omega)^{1/2}$, which yields $\tau = \tau_0(W/l_{max})^{1/2}$. Hence we predict a scaling behavior between the normalized contact time and the inverse of the aspect ratio of the ribbon, as observed in figure 4d where we plot τ/τ_0 as a function of $(W/l_{max})^{1/2}$. The dotted line has a slope 1.0 ± 0.1 , a factor close to unity as expected from our model. More generally, the groove experiment shows that the blob picture can resist a change of geometry. The number of blobs $N = l_{max}/W$ was varied by tuning the impact velocity, which

sets $l_{max}(V)$ and thus N. As a consequence, the contact time τ here varies with the impact speed V, in sharp contrast with what we saw with a point-like defect for which the blob size changes in the same way as the spreading size.

Conclusion

Reshaping interfaces after impact most generally modifies to a large extent the contact time of bouncing drops. Water can be sculpted by placing at the solid surface macrotextures with size intermediate between the drop radius and that of the hydrophobic microtextures. A first case discussed in the literature concerns structures that divide the impinging drop in *n* countable entities [3,14]. Then the contact time is reduced by a factor $n^{1/2}$, which can be understood using a spring-like model [14]. Here we discuss how singular textures reshape impacting water without division, yet with a large reduction of contact time. We propose a new tool for understanding this effect. Reshaping necessarily introduces one (or several) new characteristic size(s), at the scale of which we define liquid "blobs" that individually act as smaller drops possibly still connected to the other blobs. Contact time is that of the blob, and it is thus smaller than the time of bouncing determined in regular experiments. We could use our results in two kinds of situations: either blobs are monodisperse (centered impact on a dot, impact in a groove), in which case the contact time is fixed by the blob size; or they are polydisperse (off-centered impacts on dots), in which case the contact time is fixed by the size of the largest blob. In all these situations, our elementary approach was found to quantitatively capture the contact time reduction and behavior as a function of impact velocity observed in both simulations and experiments. In addition, the generality of the approach makes the blob picture relevant to understand cases where the reduction of contact time remains unexplained, such as the "sausage mode" of bouncing reported on curved materials [15], or to discuss new situations such as impact in assemblies of dots. Further research on this topic might also concentrate on the detail of the impact at the blob scale, which might allow us to understand in a deeper way the relevance and the limits of our description.

Acknowledgements

We thank Direction Générale de l'Armement (DGA) for contributing to the financial support. IVK and SSC acknowledge support by ERC Advanced Grant 291094-ELBM and by SNF grant 200021_172640. AMM was

supported by ETH grant ETH35-12-2. Computational resources at the Swiss National Super Computing Center CSCS were provided under the grant s492 and s630.

References

[1] R. Blossey. Self-cleaning surfaces - virtual realities. Nat. Mat. 2, 301-306 (2003).

[2] D. Richard, C. Clanet, and D. Quéré. Contact time of a bouncing drop. *Nature* 417, 811–811 (2002).

[3] J.C. Bird, R. Dhiman, H.-M. Kwon, and K.K. Varanasi. Reducing the contact time of a bouncing drop. *Nature* **503**, 385–388 (2013).

[4] Y. Liu, L. Moevius, X. Xu, T. Qian, J.M. Yeomans, and Z. Wang. Pancake bouncing on superhydrophobic surfaces. *Nat. Phys.* **10**, 515–519 (2014).

[5] P. Roach, N.J. Shirtcliffe, and M.I. Newton. Progress in superhydrophobic surface development. *Soft Matter* **4**, 224–240 (2008).

[6] H. Ogihara, J. Xie, J. Okagaki, and T. Saji. Simple method for preparing superhydrophobic paper: spraydeposited hydrophobic silica nanoparticle coatings exhibit high water-repellency and transparency. *Langmuir* **28**, 4605–4608 (2012).

[7] X. Gao, and L. Jiang. Biophysics: water-repellent legs of water striders. Nature 432, 36-36 (2004).

[8] K.M. Wisdom, J.A. Watson, X. Qu, F. Liu, G.S. Watson, and C.-H. Chen. Self-cleaning of superhydrophobic surfaces by self- propelled jumping condensate. *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **110**, 7992–7997 (2013).

[9] X. Deng, L. Mammen, H.J. Butt, and D. Vollmer. Candle soot as a template for a transparent robust superamphiphobic coating. *Science* **335**, 67–70 (2012).

[10] J. Ma, X.Y. Zhang, D.P. Wang, D. Q. Zhao, D.W. Ding, K. Liu, and W.H. Wang. Superhydrophobic metallic glass surface with superior mechanical stability and corrosion resistance. *Appl. Phys. Lett.* **104**, 173701 (2014).

[11] L. Mishchenko, B. Hatton, V. Bahadur, J.A. Taylor, T. Krupenkin, and J. Aizenberg. Design of ice-free nanostructured surfaces based on repulsion of impacting water droplets. *ACS Nano.* **4**, 7699–7707 (2010).

[12] S. Jung, M.K. Tiwari, N. Vuong Doan, and D. Poulikakos. Mechanism of supercooled droplet freezing on surfaces. *Nat. Comm.* **3**, 615 (2012).

[13] M. Song, J. Ju, S. Luo, Y. Han, Z. Dong, Y. Wang, Z. Gu, L. Zhang, R. Hao, and L. Jiang. Controlling liquid splash on superhydrophobic surfaces by a vesicle surfactant. *Sci. Adv.* **3**, e1602188 (2017).

[14] A. Gauthier, S. Symon, C. Clanet, & D. Quéré. Water impacting on superhydrophobic macrotextures. *Nat. Comm.* **6**, 8001 (2015).

[15] Y. Liu, M. Andrew, J. Li, J.M. Yeomans, and Z. Wang. Symmetry breaking in drop bouncing on curved surfaces. *Nat. Comm.* **6**, 10034 (2015).

[16] Y. Liu, and Z. Wang. Superhydrophobic porous networks for enhanced droplet shedding. *Sci. Rep.* **6**, 33817 (2016).

[17] A. Mazloomi, S.S. Chikatamarla, and I.V. Karlin. Entropic lattice Boltzmann method for multiphase flows. *Phys. Rev. Lett.* **114**, 174502 (2015).

[18] A. Mazloomi, S.S. Chikatamarla, and I.V. Karlin. Entropic lattice Boltzmann method for multiphase flows: Fluid-solid interfaces. *Phys. Rev. E.* **92**, 023308 (2015).

[19] A. Mazloomi, S.S. Chikatamarla, and I.V. Karlin. Simulation of binary droplet collisions with the entropic lattice Boltzmann method. *Phys. Fluids* **28**, 022106 (2016).

[20] M. Kunihide, and M. Itaru, The behavior of a water droplet on heated surfaces, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 27, 781–791 (1984).

Article 2

Cet article reprend le matériel visuel présenté à l'occasion de la Gallery of Fluid Motion 2017. Il fait suite à un projet mené avec Martin Coux et Lucie Domino dont les résultats sont présentés au chapitre 5. Il montre également une partie du travail de Benoît Pype dans le cadre de sa thèse art et sciences au sein de l'équipe.

Gallery of Fluid Motion

2

Kicked drops

| | $p_{1} = q_{1} + \frac{1}{2} p_{2} + q_{2} + \frac{1}{2} p_{3} + \frac{1}{2} p_{3} + \frac{1}{2} p_{3} + \frac{1}{2} q_{3} + \frac{1}$ |
|----|--|
| 3 | Pierre Chantelot, ^{1,2} Martin Coux, ^{1,2} Lucie Domino, ¹ Benoît Pype, ^{1,3} Christophe Clanet, ^{1,2} |
| 4 | Antonin Eddi, ¹ and David Quéré ^{1,2} |
| 5 | ¹ Physique et Mécanique des Milieux Hétérogènes, UMR 7636 du CNRS, ESPCI, 75005 Paris, France |
| 6 | ² LadHyX, UMR 7646 du CNRS, École polytechnique, 91128 Palaiseau, France |
| 7 | ³ PSL-SACRe, EA 7410, EnsadLab, 75005 Paris, France |
| 9 | (Received 2 February 2018; published xxxxxx) |
| 10 | This paper is associated with a video winner of a 2017 APS/DFD Milton van Dyke Award |
| 11 | for work presented at the DFD Gallery of Fluid Motion. The original video is available from |
| 12 | the Gallery of Fluid Motion, [https://doi.org/10.1103/APS.DFD.2017.GFM.V0080]. |
| 13 | DOI: 10.1103/PhysRevFluids.00.000500 |

Vibrating their substrate is an efficient way to manipulate drops and even to sculpt them, as recently discussed in the literature: (1) drops on a shaken inclined plate can surprisingly climb the slope [1]; (2) a puddle on a horizontal vibrating material deforms with asymmetric shapes [2]; (3) an impulsive motion of the substrate generates superpropulsion, that is, an enhanced takeoff of the deposited liquid [3]. Here we report the striking shapes obtained when subjecting water pearls to a strong, quick, vertical impulse.

Figure 1 shows the evolution of a water puddle (volume of about 200 μ l) accelerated by ~100 g 20 (g being the acceleration of gravity), with a corresponding upward displacement of ~ 10 mm. In this 21 experiment, we first deposit dyed water on a superhydrophobic substrate itself placed on a shaker. 22 We use the two rows of Fig. 1 to decompose the main steps of the drop behavior: (1) as the plate 23 moves up, the globular puddle first spreads out to form a disk whose edges take off as the substrate 24 decelerates; (2) water then adopts the shape of a conical cavity whose base contacts the substrate. 25 This cavity is subjected to surface tension and inertia, which makes its shape evolve and eventually 26 collapse, leading to the eruption of a jet and to the formation of numerous satellite droplets. 27

These liquid vases can be sculpted by playing on the substrate nature and on the number of drops 28 initially placed on the device. Contrasting with our usual way of looking at the simplest possible 29 device to make generic behaviors emerge, we considered here complex substrates, so as to generate 30 unique water shapes. To that end, we use a pedestal heightened by a thin fraction of solid tube where 31 water is placed. The choice of a tube allows us to mix effects of solid curvature to that generated by the 32 nonaxisymmetry of the device: the liquid is guided by the tube walls but it can leak from the tube ends. 33 The different pieces are eventually attached to the shaker, glued together and made superhydrophobic, 34 and we show in Fig. 2 three examples of the ephemeral water sculptures arising from these complex 35 substrates. From left to right, we increase the number of deposited drops from one [Fig. 2(a)] to 36 two [Fig. 2(b)] and then four [Fig. 2(c)]; multiple drops are separated by a superhydrophobic wire, 37 which can be seen in photographs (b) and (c). We impose an upward impulsive motion (acceleration 38 comparable to that in Fig. 1) and capture the transient shapes adopted by water in both the spreading 39 stage (top row) and in the takeoff stage (bottom row). These pictures highlight the extreme variety 40

Published by the American Physical Society under the terms of the Creative Commons Attribution 4.0 International license. Further distribution of this work must maintain attribution to the author(s) and the published article's title, journal citation, and DOI.



FIG. 1. Chronophotography of a small water puddle deposited on a superhydrophobic plate subjected to an impulse. As the plate is accelerated upward, water spreads in a disk whose edges take off. Then, the liquid drop forms a truncated cone that eventually collapses, leading to the creation of a jet and satellite droplets. The scale bar is 5 mm. The video associated with these images is available at [https://doi.org/10.1103/APS.DFD.2017.GFM.V0080].



FIG. 2. Transient shapes captured during the spreading (top row) and takeoff (bottom row) of water drops deposited on superhydrophobic curved pedestals. Increasingly complex shapes are created by depositing one drop (a), two drops separated by a repellent wire (b), and four drops, two on each side of the wire (c).

41 of shapes we can design, some of them being even vaguely anthropomorphic. In the physics of
42 droplet impact, the interplay between moving liquids and their substrate leads to elegant structures
43 via complex dynamics. Here we amplify these phenomena by using specifically designed substrates
44 and a water-repellent coating to obtain richer and more intricate shapes.

- 45 We thank Direction Générale de l'Armement (DGA) for financial support.
 - P. Brunet, J. Eggers, and R. D. Deegan, Vibration-Induced Climbing of Drops, Phys. Rev. Lett. 99, 144501 (2007).
 - [2] X. Noblin, A. Buguin, and F. Brochard-Wyart, Triplon Modes of Puddles, Phys. Rev. Lett. 94, 166102 (2005).
 - [3] C. Raufaste, G. R. Chagas, T. Darmanin, C. Claudet, F. Guittard, and F. Celestini, Superpropulsion of Droplets and Soft Elastic Solids, Phys. Rev. Lett. **119**, 108001 (2017).

Article 3

Cet article reprend les résultats présentés dans la première partie du chapitre 4. Il est publié dans le journal Europhysics Letters.
Drop trampoline

PIERRE CHANTELOT, MARTIN COUX, CHRISTOPHE CLANET and DAVID QUERE

 PMMH, UMR 7636 du CNRS, ESPCI Paris, PSL Research University, Sorbonne Université, Université Paris Diderot, 75005 Paris, France
 ² LadHyX, UMR 7646 du CNRS, Ecole polytechnique, 91128 Palaiseau, France

PACS nn.mm.xx - First pacs description PACS nn.mm.xx - Second pacs description PACS nn.mm.xx - Third pacs description

Abstract – Rigid superhydrophobic materials have the ability to repel millimetric water drops, in typically 10 ms. Yet, most natural water-repellent materials can be deformed by impacting drops. To test the effect of deformability, we perform impacts of non-wetting drops onto thin (\sim 10 µm), circular PDMS membranes. The bouncing mechanism is markedly modified compared to that on a rigid material: the liquid leaves the substrate as it is kicked upwards by the membrane. We show that the rebound is controlled by an interplay between the dynamics of the drop and that of the soft substrate, so that we can continuously vary the contact time by playing on the membrane's characteristics and reduce it up to 70%.

Liquids and soft solids can interact in many ways. For instance, a drop can deform a soft solid close to the contact line [1,2] or bend slender and thin structures [3,4]. In more dynamical situations, substrate deformation can induce self-propulsion [5, 6], prevent splashing [7, 8] or allow liquid penetration in soft solids [9]. It can also lead to improvement of the water or ice repellency of superhydrophobic materials [10, 11]. Such materials have the ability to reflect impacting drops and we focus here on the way their flexibility affects this property. The contact time τ of millimetric water drops on a rigid, repellent solid is on the order of 10 ms, which can be large enough to induce freezing [12], significant heat transfer [13] or contamination by surfactants [14]. Different techniques have been proposed to reduce τ . Decorating the substrate with macrotextures (such as ridges) was found to divide τ by a factor of typically 2 [15, 16], a reduction also obserbved using soft membranes, as recently shown by Weisensee *et al.* [17]. This effect occurs at large impact velocity, in a regime difficult to explore due to splashing, which might explain the scattered nature of the results. Vasileiou et al. also stressed the ability of soft membranes to reflect viscous drops - a point of obvious practical interest - but did not provide neither a specific study on the contact time nor a model to account for its reduction [11]. In order to discuss systematically the ability of soft solids to enhance water repellency, we choose to texture liquids rather than solids, that is, to use liquid marbles as a model of non-wetting drops [18]. This allows us to show that the interplay between flexible substrates and non-wetting impacts leads to the possibility of continuously tuning the contact time, which we model.

The experiment is sketched in figure 1a. Our substrates are polydimethylsiloxane (PDMS) sheets with thickness $h = 20 \ \mu m$ (Silex) clamped between two plexiglas rings. The clamped sheets are placed on a frame with radius a (a = 7.5, 10, 17.5, 25 mm) and tension is adjusted by weighting the membrane with a mass m. Liquid marbles are made by coating distilled water (density $\rho = 1000$ kg/m^3 and surface tension $\gamma = 72 mN/m$ with lycopodium grains (diameter $\sim 30 \ \mu m$) treated with fluorodecyl-trichlorosilane. Because the grains occupy less than one monolayer at the liquid/air interface, the marbles keep a surface tension ($\gamma \simeq 57 \pm 8 \text{ mN/m}$) comparable to that of water [18, 19]. They non-wet any subtrate on which they are placed as contact only occurs between the grains and the solid. Liquid marbles show the same remarkable mobility as non-wetting drops. They can resist impacts of moderate velocity, a property enhanced on a repellent substrate. To that end, the membranes are made water-repellent by spraying a solution of hydrophobic nanobeads dispersed in acetone (Ultra Ever Dry, UltraTech International). After evaporation of the solvent, the PDMS is coated by a few layers of nanobeads and it exhibits the high contact angles ($\sim 160^{\circ}$) and low hystere-



Fig. 1: **a** A liquid marble (radius R, velocity V) impacts a circular PDMS membrane with radius a and thickness 20 µm put into tension by a mass m. The membrane is superhydrophobic and its deflection δ is measured by the deviation of an oblique laser sheet. **b** (top) A liquid marble (R = 1.8 mm) impacts a rigid superhydrophobic substrate at V = 0.75 m/s. The drop leaves the substrate after 22.5 ms. (bottom) Same liquid marble impacting a flexible membrane (a = 10 mm, m = 12.23 g) at V = 1 m/s. The drop is kicked off, with a pancake shape, after 7 ms, a reduction of 70 % compared to the rigid case. **c** Deflection δ of the center of the membrane for the impact shown in b, from which we obtain the maximal deflection δ_{max} and its time τ_d . Later, the free oscillations of the membrane give access to its fundamental period τ_m .

sis (~ 6°) typical of superhydrophobic materials. Water drops (R = 1 mm and R = 1.8 mm) made from calibrated needles roll on a horizontal groove covered by lycopodium grains, until they get coated. Then we release them above the substrate through a hole at the end of the groove. The impact velocity V can be varied between 0.5 and 1.5 m/s by adjusting the height from which these marbles fall. We record side views of the impact and monitor the membrane deflection δ through the observation of a laser sheet in oblique incidence, using two fast video cameras (Phantom V7) working at typically 10000 frames per second. The vertical position of the membrane is directly proportionnal to the displacement of the laser sheet.

Marbles are repelled differently by flexible or rigid materials (figure 1b). In the latter case (top sequence), they spread, recoil and take off with an elongated shape, here after 22.5 ms. We also notice excess grains expelled from the marbles during impact, without affecting the integrity of these objects. The contact time τ of a marble with radius R = 1.8 mm is roughly independent of the impact velocity V and plateaus at $\tau_0 = 22.7 \pm 0.8$ ms (see supplementary figure SI1), a value comparable to that of a non-wetting drop. In contrast (bottom sequence), a marble impacting a flexible membrane deforms its substrate, which transiently renders it invisible in our side views. As the membrane recovers its horizontality, we observe that the spread marble takes off with a flattened shape, which implies a reduction of contact time. τ in figure 1b is 7 ms, that is, about one third of τ_0 , a reduction even larger than that reported in [11, 17]. Recoiling takes place later, while the drop is in the air. Figure 1c shows the time evolution of the deflection δ of the center of the membrane. Firstly, the membrane sinks down to its maximal deflection δ_{max} at time τ_d (see supplementary figure SI2). Then, the substrate moves back and goes above the horizontal, which kicks the marble and makes it take off (at time τ) at the membrane's uppermost position. Later, it freely oscillates, allowing us to measure its natural period, here $\tau_m = 3.45 \pm 0.10$ ms. These free oscillations are faster than the first oscillation forced by impact, showing that our system has a characteristic time τ intermediate between τ_m and τ_0 , the respective response times of the membrane and of the drop.

The time τ_m (and corresponding frequency $f_m = 1/\tau_m$) can be varied by tuning the membrane geometry (through the radius a) and tension (through the mass m, see supplementary figure SI3). We show in figure 2a how the contact time τ varies as a function of the impact velocity V for various frequencies f_m . For each value of f_m , the contact time is roughly independent of the impact velocity V, apart from a weak increase at low V also observed for drops on rigid substrates [20]. More importantly, we confirm our main observation: the contact time τ on soft membranes is reduced compared to τ_0 , the plateau value on a rigid substrate indicated in figure 2a with a dashed line. Specifically, τ decreases as we increase the frequency of the membrane, showing the influence of the substrate on the timescale at which the liquid is repelled. The marble size R also influences the contact time, small drops being shed faster than large ones, as shown in supplementary figure SI4 where τ is observed to vary slower than $R^{3/2}$, the usual inertio-capillary behavior [21]. The response of the substrate can be characterized spatially, and we plot in figure 2b the maximal deflection δ_{max} as a function of V. δ_{max} varies linearly with V, and its value is typically millimetric. When R is fixed (filled circles, R = 1.8 mm), there is no obvious relationship between δ_{max} and f_m . At fixed f_m $(f_m = 290 \text{ Hz}, \text{ green circles and triangles}), \delta_{max} \text{ increases}$ with R, a logical consequence of the change in liquid mass.



Fig. 2: a Contact time τ of liquid marbles with radius R = 1.8 mm bouncing off flexible membranes of frequency f_m as a function of impact velocity V. The dashed line shows the contact time τ_0 on a rigid substrate. b Maximal deflection δ_{max} at the center of the membrane as a function of V. Dotted lines are linear fits.

Our aim is to understand how the liquid and the membrane cooperate in an original bouncing mechanism. Our analysis holds for $\tau_m < \tau_0$, the only regime where we expect contact time reduction. We model the solid/liquid system as coupled oscillators (figure 3a and 3b). On the one hand, the marble can be viewed as a spring of stiffness k_d , mass m_d , and oscillating frequency $f_d = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k_d}{m_d}}$. Lord Rayleigh [22] calculated the frequency of freely oscillating drops, and showed that it writes: $f_d = \sqrt{\frac{8\gamma}{3\pi m_d}}$, which provides the stiffness $k_d = \frac{32\pi}{3}\gamma$ of the spring. On the other hand, the membrane can be modelled as a spring of stiffness k, mass m_m and fundamental frequency $f_m = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{m_m}}$. We assume that the droplet-membrane system behaves during contact as oscillators in series, as sketched in figure 3b. Then the position z of the membrane obeys a 4th-order differential equation, as derived in the supplementary information (SI):

$$\frac{d^4z}{dt^4} + \frac{k_d}{m_m} \left(1 + \frac{m_m}{m_d} + \frac{k}{k_d}\right) \frac{d^2z}{dt^2} + \frac{kk_d}{m_d m_m} z = 0 \qquad (1)$$

Equation 1 has two natural limits. (1) On a rigid substrate $(k \to \infty)$, it reduces to a second order differ-

ential equation: $\ddot{z} + 4\pi^2 f_d^2 z = 0$. The contact time on rigid repellent materials is simply proportional to the Rayleigh period $1/f_d$ [21]. (2) A rigid bead $(k_d \to \infty)$ hitting a flexible membrane is described by the equation $\ddot{z} + 4\pi^2 f_b^2 z = 0$, with $f_b = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{m_d + m_m}}$, that is, the frequency of a membrane of stiffness k and mass $m_d + m_m$. We performed experiments with polypropylene beads $(R_b = 1 \text{ mm and } R_b = 1.75 \text{ mm}, \rho_b = 900 \text{ kg/m}^3)$ with mass m_b , and our data plotted in figure 3c show that the reduced contact time τf_b collapses on a single curve, confirming that f_b is the frequency of the bead-membrane system. However, this added mass argument does not capture the contact time reduction observed for drops, as shown in the supplementary figure SI5.

As for the impact of a water drop on a flexible substrate, we can notice that equation 1 provides two natural frequencies, that is, $f_* = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{k_d}{m_m} \left(1 + \frac{m_m}{m_d} + \frac{k}{k_d}\right)\right)^{1/2}$ and $f = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{kk_d}{m_d m_m}\right)^{1/4}$. As shown in the SI, we have $f_* > f$ whatever the values of the physical parameters, which suggests that the dynamics of the system is set by 1/f, the longer timescale. When we rescale the contact time τ by the frequency f and plot it as a function of the impact velocity V (figure 3d), data for various f_m (such as in figure 2a) and various R indeed collapse. Apart from the increase observed at low V [20], contact time is found to plateau at a value $\tau \sim 0.75 f$. The frequency f turns out to be the geometric mean of that of the drop and of the membrane, $f = \sqrt{f_m f_d}$, a formula capturing how the two objects conspire to generate fast bouncing. Interestingly, the frequency f scales as $R^{-3/4}$, a behavior very different from that on a rigid substrate (where it varies as $R^{-3/2}$), in agreement with our data in the supplementary figure SI4. Knowing the frequency f yields a simple prediction for δ_{max} . Before impact, the membrane is immobile and the droplet with mass m_d moves at speed V; during the first oscillation, drop and membrane both oscillate at the frequency f. Conserving the momentum provides the following scaling: $m_d V \sim (m_m + m_d) \delta_{max} f$. Figure 3e and 3f represent $\delta_{max} f_b(1 + \frac{m_m}{m_b})$ and $\delta_{max} f(1 + \frac{m_m}{m_d})$ as a function of V. For both solid and liquid marbles, we observe the predicted linear relationship, with respective slopes 0.4 \pm 0.1 and 0.33 \pm 0.03. These slopes are smaller than 1, suggesting that part of the initial momentum is not injected into membrane oscillations but also in membrane stretching and dissipation in air, and for liquids in internal motion.

Making impacting drops interact with soft solids modifies the outcome of collisions and can lead to enhanced repellency expressed, as by a systematic reduction of contact time. The timescale of such impacts depends on the dynamics of both membrane and drop, so that we can continuously adjust the contact time between $0.3\tau_0$ (a very low value) and τ_0 , by playing on the membrane characteristics and the drop radius. It would also be interesting to



Fig. 3: **a** Drop and membrane are modelled as oscillators with respective frequencies f_d and f_m . **b** We assume that the system behaves as two oscillators in series during contact. **c** Normalized contact time τf_b for solid beads impacting a flexible membrane at velocity V. $f_b = \sqrt{\frac{k}{m_m + m_d}}$ is the frequency of a membrane with mass $m_d + m_m$. **d** Normalized contact time τf for liquid marbles impacting a flexible membrane at velocity V, where $f = \sqrt{f_d f_m}$ is extracted from equation 1. **e** Maximum deflection δ_{max} of the membrane as a function of the impact velocity V for various membrane frequencies and bead radii. Collapse of data is obtained by multiplying δ_{max} by the quantity $f_b(1 + \frac{m_m}{m_b})$ as suggested in the text. **f** Same plot for marble impact. δ_{max} is now multiplied by $f(1 + \frac{m_m}{m_d})$. In both cases, we observe a linear behavior, as predicted in the text. Dotted lines in e and f are linear fits with slopes 0.4 ± 0.1 and 0.33 ± 0.03 , respectively.

model the effect of damping on the bouncing time and on the elasticity of the shocks. We expect two limiting cases: either the damping impedes the rebound or it enhances the liquid reflection. The latter caser is rather counterintuitive: for instance, glycerol will display a solid-like behavior during impact and will be repelled faster and more efficiently than water by a soft non-wetting membrane. Characterising the effect of an increasing drop viscosity would deserve a separate study.

* * *

We thank Direction Générale de l'Armement (DGA) for contributing to the financial support. We also thank Hadrien Bense, Lucie Domino and Benoît Roman for insightful comments.

REFERENCES

 CARRÉ A., GASTEL J.-C. and SHANAHAN M. E., *Nature*, 379 (1996) 432.

- MARCHAND A., DAS S., SNOELJER J. H. and ANDREOTTI B., *Physical Review Letters*, **109** (2012) 236101.
- [3] BICO J., ROMAN B., MOULIN L. and BOUDAOUD A., Nature, 432 (2004) 690.
- [4] PY C., REVERDY P., DOPPLER L., BICO J., ROMAN B. and BAROUD C. N., *Physical Review Letters*, 98 (2007) 156103.
- [5] STYLE R. W., CHE Y., PARK S. J., WEON B. M., JE J. H., HYLAND C., GERMAN G. K., POWER M. P., WILEN L. A., WETTLAUFER J. S. et al., Proceedings of the National Academy of Sciences, 110 (2013) 12541.
- [6] KARPITSCHKA S., PANDEY A., LUBBERS L. A., WEIJS J. H., BOTTO L., DAS S., ANDREOTTI B. and SNOEIJER J. H., Proceedings of the National Academy of Sciences, 113 (2016) 7403.
- [7] HOWLAND C. J., ANTKOWIAK A., CASTREJÓN-PITA J. R., HOWISON S. D., OLIVER J. M., STYLE R. W. and CASTREJÓN-PITA A. A., *Physical Review Letters*, **117** (2016) 184502.
- [8] PEPPER R. E., COURBIN L. and STONE H. A., *Physics of Fluids*, **20** (2008) 082103.
- [9] TAGAWA Y., OUDALOV N., EL GHALBZOURI A., SUN C. and LOHSE D., Lab on a Chip, 13 (2013) 1357.
- [10] VASILEIOU T., GERBER J., PRAUTZSCH J., SCHUTZIUS

T. M. and POULIKAKOS D., *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **113** (2016) 13307.

- [11] VASILEIOU T., SCHUTZIUS T. M. and POULIKAKOS D., *Langmuir*, **33** (2017) 6708.
- [12] MISHCHENKO L., HATTON B., BAHADUR V., TAYLOR J. A., KRUPENKIN T. and AIZENBERG J., ACS Nano, 4 (2010) 7699.
- [13] SHIRI S. and BIRD J. C., Proceedings of the National Academy of Sciences, 114 (2017) 6930.
- [14] SONG M., JU J., LUO S., HAN Y., DONG Z., WANG Y., GU Z., ZHANG L., HAO R. and JIANG L., *Science Advances*, 3 (2017) e1602188.
- [15] BIRD J. C., DHIMAN R., KWON H.-M. and VARANASI K. K., *Nature*, **503** (2013) 385.
- [16] LIU Y., MOEVIUS L., XU X., QIAN T., YEOMANS J. M. and WANG Z., *Nature Physics*, **10** (2014) 515.
- [17] WEISENSEE P. B., TIAN J., MILJKOVIC N. and KING W. P., Scientific Reports, 6 (2016) 30328.
- [18] AUSSILLOUS P. and QUÉRÉ D., Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 462 (2006) 973.
- [19] PLANCHETTE C., LORENCEAU E. and BIANCE A.-L., Soft Matter, 8 (2012) 2444.
- [20] CHEVY F., CHEPELIANSKII A., QUÉRÉ D. and RAPHAËL E., *EPL*, **100** (2012) 54002.
- [21] RICHARD D., CLANET C. and QUÉRÉ D., Nature, 417 (2002) 811.
- [22] RAYLEIGH L., Proceedings of the Royal Society of London, 29 (1879) 71.

Bibliographie

- ZEXIN S. and MEI H., 2017. Robotic form-finding and construction based on the architectural projection logic. In *IOP Conference Series : Materials Science and Engineering*, volume 216, page 012058. IOP Publishing. Cité page 9.
- [2] YOUNG T., 1805. An essay on the cohesion of fluids. Philosophical transactions of the royal society of London, volume 95, pages 65–87. Cité page 10.
- [3] BARTHLOTT W. and NEINHUIS C., 1997. Purity of the sacred lotus, or escape from contamination in biological surfaces. *Planta*, volume 202, no. 1, pages 1–8. Cité pages 10 et 11.
- [4] GAO X. and JIANG L., 2004. Biophysics : water-repellent legs of water striders. *Nature*, volume 432, no. 7013, page 36. Cité page 11.
- [5] WENZEL R.N., 1936. Resistance of solid surfaces to wetting by water. Industrial & Engineering Chemistry, volume 28, no. 8, pages 988–994. Cité page 11.
- [6] CASSIE A.B.D. and BAXTER S., 1944. Wettability of porous surfaces. Transactions of the Faraday society, volume 40, pages 546–551. Cité page 11.
- [7] AUSSILLOUS P. and QUÉRÉ D., 2006. Properties of liquid marbles. In Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences, volume 462, pages 973–999. The Royal Society. Cité pages 11, 15, 81, et 108.
- [8] LEIDENFROST J.G., 1756. De aquae communis nonnullis qualitatibus tractatus. Ovenius. Cité page 11.
- [9] MAHADEVAN L. and POMEAU Y., 1999. Rolling droplets. *Physics of fluids*, volume 11, no. 9, pages 2449–2453. Cité page 11.
- [10] RICHARD D., CLANET C., and QUÉRÉ D., 2002. Surface phenomena : Contact time of a bouncing drop. Nature, volume 417, no. 6891, page 811. Cité pages 11 et 18.
- BOREYKO J.B. and CHEN C.H., 2009. Self-propelled dropwise condensate on superhydrophobic surfaces. *Physical Review Letters*, volume 103, no. 18, page 184501. Cité page 11.
- [12] WORTHINGTON A.M., 1877. Xxviii. on the forms assumed by drops of liquids falling vertically on a horizontal plate. *Proceedings of the Royal Society of London*, volume 25, pages 261–272. Cité page 13.

- [13] WORTHINGTON A.M., 1877. Iii. a second paper on the forms assumed by drops of liquids falling vertically on a horizontal plate. *Proceedings of the Royal Society of London*, volume 25, pages 498–503. Cité pages 13 et 14.
- [14] ENGEL O.G., **1955**. Waterdrop collisions with solid surfaces. *Journal of research of the national bureau of standards*, volume 54, no. 5, pages 281–298. Cité page 14.
- [15] RICHARD D. and QUÉRÉ D., 2000. Bouncing water drops. Europhysics Letters, volume 50, no. 6, page 769. Cité pages 14, 15, 27, 60, 117, et 124.
- [16] REIN M., 1993. Phenomena of liquid drop impact on solid and liquid surfaces. Fluid Dynamics Research, volume 12, no. 2, page 61. Cité page 13.
- [17] YARIN A.L., 2006. Drop impact dynamics : splashing, spreading, receding, bouncing.... Annual Review of Fluid Mechanics, volume 38, pages 159–192. Cité page 13.
- [18] DE RUITER J., LAGRAAUW R., VAN DEN ENDE D., and MUGELE F., 2014. Wettability-independent bouncing on flat surfaces mediated by thin air films. *Nature Physics*, volume 11, pages 48–53. Cité pages 15, 16, 115, 122, 125, et 137.
- [19] COUDER Y., FORT E., GAUTIER C.H., and BOUDAOUD A., 2005. From bouncing to floating : noncoalescence of drops on a fluid bath. *Physical Review Letters*, volume 94, no. 17, page 177801. Cité pages 15 et 115.
- [20] KARL A. and FROHN A., 2000. Experimental investigation of interaction processes between droplets and hot walls. *Physics of fluids*, volume 12, no. 4, pages 785–796. Cité page 15.
- [21] POVAROV O.A., NAZAROV O., IGNAT'EVSKAYA L.A., and NIKOL'SKII A.I., 1976. Interaction of drops with boundary layer on rotating surface. *Journal of Engineering Physics and Thermophysics*, volume 31, no. 6, pages 1453–1456. Cité page 15.
- [22] GAUTHIER A., BOUILLANT A., CLANET C., and QUÉRÉ D., 2018. Aerodynamic repellency of impacting liquids. *Physical Review Fluids*, volume 3, no. 5, page 054002. Cité page 15.
- [23] TANAKA Y., YAMAZAKI Y., and OKUMURA K., 2003. Bouncing gel balls : impact of soft gels onto rigid surface. *Europhysics Letters*, volume 63, no. 1, page 7. Cité page 15.
- [24] ARORA S., FROMENTAL J.M., MORA S., PHOU T., RAMOS L., and LIGOURE C., 2018. Impact of beads and drops on a repellent solid surface : a unified description. *Physical Review Letters*, volume 120, no. 14, page 148003. Cité page 15.
- [25] PROTIÈRE S., BOUDAOUD A., and COUDER Y., 2006. Particle-wave association on a fluid interface. *Journal of Fluid Mechanics*, volume 554, pages 85–108. Cité page 16.
- [26] RENARDY Y., POPINET S., DUCHEMIN L., RENARDY M., ZALESKI S., JOS-SERAND C. ANAND DRUMRIGHT-CLARKE M.A., RICHARD D., CLANET C.,

and QUÉRÉ D., **2003**. Pyramidal and toroidal water drops after impact on a solid surface. *Journal of Fluid Mechanics*, volume 484, pages 69–83. Cité pages 17 et 117.

- [27] RAYLEIGH L., 1879. On the capillary phenomena of jets. Proceedings of the Royal Society of London, volume 29, no. 196-199, pages 71–97. Cité pages 18 et 85.
- [28] BIRD J.C., DHIMAN R., KWON H.M., and VARANASI K.K., 2013. Reducing the contact time of a bouncing drop. *Nature*, volume 503, no. 7476, page 385. Cité pages 18, 30, 31, 32, et 82.
- [29] CHEVY F., CHEPELIANSKII A., QUÉRÉ D., and RAPHAËL E., 2012. Liquid hertz contact : softness of weakly deformed drops on non-wetting substrates. *Euro-physics Letters*, volume 100, no. 5, page 54002. Cité pages 19, 57, et 72.
- [30] CHANDRA S. and AVEDISIAN C.T., 1991. On the collision of a droplet with a solid surface. *Proceedings of the Royal Society of London A*, volume 432, no. 1884, pages 13–41. Cité pages 20, 22, et 115.
- [31] SAN LEE J., WEON B.M., JE J.H., and FEZZAA K., 2012. How does an air film evolve into a bubble during drop impact? *Physical Review Letters*, volume 109, no. 20, page 204501. Cité page 20.
- [32] KOLINSKI J.M., RUBINSTEIN S.M., MANDRE S., BRENNER M.P., WEITZ D.A., and MAHADEVAN L.L., 2012. Skating on a film of air : drops impacting on a surface. *Physical Review Letters*, volume 108, no. 7, page 074503. Cité page 20.
- [33] MONGRUEL A., DARU V., FEUILLEBOIS F., and TABAKOVA S., 2009. Early post-impact time dynamics of viscous drops onto a solid dry surface. *Physics of Fluids*, volume 21, no. 3, page 032101. Cité page 21.
- [34] RIBOUX G. and GORDILLO J.M., 2014. Experiments of drops impacting a smooth solid surface : a model of the critical impact speed for drop splashing. *Physical Review Letters*, volume 113, no. 2, page 024507. Cité page 21.
- [35] LAGUBEAU G., FONTELOS M.A., JOSSERAND C., MAUREL A., PAGNEUX V., and PETITJEANS P., 2012. Spreading dynamics of drop impacts. *Journal of Fluid Mechanics*, volume 713, pages 50–60. Cité pages 21, 22, 23, 105, et 115.
- [36] EGGERS J., FONTELOS M.A., JOSSERAND C., and ZALESKI S., 2010. Drop dynamics after impact on a solid wall : theory and simulations. *Physics of Fluids*, volume 22, no. 6, page 062101. Cité pages 22, 23, 58, 115, et 120.
- [37] LASTAKOWSKI H., BOYER F., BIANCE A.L., PIRAT C., and YBERT C., 2014. Bridging local to global dynamics of drop impact onto solid substrates. *Journal of Fluid Mechanics*, volume 747, pages 103–118. Cité pages 22 et 105.
- [38] VILLERMAUX E. and BOSSA B., 2011. Drop fragmentation on impact. Journal of Fluid Mechanics, volume 668, pages 412–435. Cité page 23.
- [39] CLANET C., BÉGUIN C., RICHARD D., and QUÉRÉ D., 2004. Maximal deformation of an impacting drop. *Journal of Fluid Mechanics*, volume 517, pages 199–208. Cité pages 23, 52, 68, 102, et 103.

- [40] LAAN N., DE BRUIN K.G., BARTOLO D., JOSSERAND C., and BONN D., 2014. Maximum diameter of impacting liquid droplets. *Physical Review Applied*, volume 2, no. 4, page 044018. Cité pages 23, 58, 59, et 120.
- [41] BARTOLO D., JOSSERAND C., and BONN D., 2005. Retraction dynamics of aqueous drops upon impact on non-wetting surfaces. *Journal of Fluid Mechanics*, volume 545, pages 329–338. Cité pages 24, 25, 26, 115, 120, 121, et 122.
- [42] TAYLOR G.I., 1959. The dynamics of thin sheets of fluid. iii. disintegration of fluid sheets. Proceedings of the Roayl Society of London A, volume 253, no. 1274, pages 313–321. Cité pages 24 et 105.
- [43] CULICK F.E.C., 1960. Comments on a ruptured soap film. Journal of applied physics, volume 31, no. 6, pages 1128–1129. Cité pages 24 et 105.
- [44] REYSSAT M., RICHARD D., CLANET C., and QUÉRÉ D., 2010. Dynamical superhydrophobicity. *Faraday discussions*, volume 146, pages 19–33. Cité pages 24, 26, et 108.
- [45] BUGUIN A., VOVELLE L., and BROCHARD-WYART F., 1999. Shocks in inertial dewetting. *Physical Review Letters*, volume 83, no. 6, page 1183. Cité pages 24 et 108.
- [46] VOINOV O.V., 1976. Hydrodynamics of wetting. *Fluid dynamics*, volume 11, no. 5, pages 714–721. Cité page 25.
- [47] TANNER L.H., 1979. The spreading of silicone oil drops on horizontal surfaces. Journal of Physics D : Applied Physics, volume 12, no. 9, page 1473. Cité page 25.
- [48] COX R.G., 1986. The dynamics of the spreading of liquids on a solid surface. part 1. viscous flow. *Journal of Fluid Mechanics*, volume 168, pages 169–194. Cité page 25.
- [49] BARTOLO D., JOSSERAND C., and BONN D., 2006. Singular jets and bubbles in drop impact. *Physical Review Letters*, volume 96, no. 12, page 124501. Cité page 26.
- [50] BIANCE A.L., CHEVY F., CLANET C., LAGUBEAU G., and QUÉRÉ D., 2006. On the elasticity of an inertial liquid shock. *Journal of Fluid Mechanics*, volume 554, pages 47–66. Cité page 27.
- [51] MISHCHENKO L., HATTON B., BAHADUR V., TAYLOR J.A., KRUPENKIN T., and AIZENBERG J., 2010. Design of ice-free nanostructured surfaces based on repulsion of impacting water droplets. ACS nano, volume 4, no. 12, pages 7699–7707. Cité pages 29 et 30.
- [52] SHIRI S. and BIRD J.C., 2017. Heat exchange between a bouncing drop and a superhydrophobic substrate. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, volume 114, no. 27, pages 6930–6935. Cité pages 29 et 30.
- [53] VASILEIOU T., GERBER J., PRAUTZSCH J., SCHUTZIUS T.M., and POULI-KAKOS D., 2016. Superhydrophobicity enhancement through substrate flexibility. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, volume 113, no. 47, pages 13307–13312. Cité pages 29 et 81.

- [54] SONG M., JU J., LUO S., HAN Y., DONG Z., WANG Y., GU Z., ZHANG L., HAO R., and JIANG L., 2017. Controlling liquid splash on superhydrophobic surfaces by a vesicle surfactant. *Science Advances*, volume 3, no. 3, page e1602188. Cité page 29.
- [55] LIU Y., MOEVIUS L., XU X., QIAN T., YEOMANS J.M., and WANG Z., 2014. Pancake bouncing on superhydrophobic surfaces. *Nature Physics*, volume 10, no. 7, pages 515–519. Cité page 31.
- [56] GAUTHIER A., SYMON S., CLANET C., and QUÉRÉ D., 2015. Water impacting on superhydrophobic macrotextures. *Nature communications*, volume 6, page 8001. Cité pages 31, 32, 34, 41, et 47.
- [57] BIANCE A.L., PIRAT C., and YBERT C., 2011. Drop fragmentation due to hole formation during leidenfrost impact. *Physics of Fluids*, volume 23, no. 2, page 022104. Cité page 34.
- [58] JOSSERAND C., LEMOYNE L., TROEGER R., and ZALESKI S., 2005. Droplet impact on a dry surface : triggering the splash with a small obstacle. *Journal of Fluid Mechanics*, volume 524, pages 47–56. Cité page 34.
- [59] TAYLOR G.I. and MICHAEL D.H., 1973. On making holes in a sheet of fluid. Journal of Fluid Mechanics, volume 58, no. 04, page 625. Cité page 36.
- [60] MAZLOOMI M. A., CHIKATAMARLA S.S., and KARLIN I.V., 2015. Entropic lattice boltzmann method for multiphase flows. *Physical Review Letters*, volume 114, page 174502. Cité page 37.
- [61] MAZLOOMI M. A., CHIKATAMARLA S.S., and KARLIN I.V., 2015. Entropic lattice boltzmann method for multiphase flows : Fluid-solid interfaces. *Physical Review E*, volume 92, page 023308. Cité page 37.
- [62] MAZLOOMI M. A., CHIKATAMARLA S.S., and KARLIN I.V., 2016. Simulation of binary droplet collisions with the entropic lattice boltzmann method. *Physics of Fluids*, volume 28, no. 2, page 022106. Cité page 37.
- [63] MASON B.J., 1971. The physics of clouds. Oxford University Press. Cité page 44.
- [64] LIST R. and MCFARQUHAR G.M., 1990. The role of breakup and coalescence in the three-peak equilibrium distribution of raindrops. *Journal of the atmospheric sciences*, volume 47, no. 19, pages 2274–2292. Cité page 44.
- [65] DRESSAIRE E., COURBIN L., CREST J., and STONE H.A., 2009. Thin-film fluid flows over microdecorated surfaces : Observation of polygonal hydraulic jumps. *Physical Review Letters*, volume 102, no. 19, page 194503. Cité page 45.
- [66] DRESSAIRE E., COURBIN L., DELANCY A., ROPER M., and STONE H.A., 2013. Study of polygonal water bells : inertia-dominated thin-film flows over microtextured surfaces. *Journal of Fluid Mechanics*, volume 721, pages 46–57. Cité page 45.
- [67] LIU Y., ANDREW M., LI J., YEOMANS J., and WANG Z., 2015. Symmetry breaking in drop bouncing on curved surfaces. *Nature communications*, volume 6, page 10034. Cité page 55.

- [68] BANITABAEI S.A. and AMIRFAZLI A., 2017. Droplet impact onto a solid sphere : Effect of wettability and impact velocity. *Physics of Fluids*, volume 29, no. 6, page 062111. Cité page 56.
- [69] GE Y. and FAN L.S., 2007. Droplet–particle collision mechanics with film-boiling evaporation. Journal of Fluid Mechanics, volume 573, pages 311–337. Cité page 56.
- [70] ŠIKALO Š., TROPEA C., and GANIĆ E.N., 2005. Impact of droplets onto inclined surfaces. Journal of colloid and interface science, volume 286, no. 2, pages 661–669. Cité page 56.
- [71] ANTONINI C., VILLA F., and MARENGO M., 2014. Oblique impacts of water drops onto hydrophobic and superhydrophobic surfaces : outcomes, timing, and rebound maps. *Experiments in fluids*, volume 55, no. 4, page 1713. Cité pages 56 et 58.
- [72] PAIRAM E. and FERNÁNDEZ-NIEVES A., 2009. Generation and stability of toroidal droplets in a viscous liquid. *Physical Review Letters*, volume 102, no. 23, page 234501. Cité pages 68, 69, et 131.
- [73] MCGRAW J.D., LI J., TRAN D.L., SHI A.C., and DALNOKI-VERESS K.K., 2010. Plateau-rayleigh instability in a torus : formation and breakup of a polymer ring. *Soft Matter*, volume 6, no. 6, pages 1258–1262. Cité pages 68 et 131.
- [74] DARBOIS TEXIER B., PIROIRD K., QUÉRÉ D., and CLANET C., 2013. Inertial collapse of liquid rings. *Journal of Fluid Mechanics*, volume 717. Cité pages 68, 107, et 131.
- [75] HERTZ H.R., 1882. Uber die beruhrung fester elastischer korper und uber die harte. Verhandlung des Vereins zur Beforderung des Gewerbefleißes, Berlin, page 449. Cité page 74.
- [76] CARRÉ A., GASTEL J.C., and SHANAHAN M.E.R., 1996. Viscoelastic effects in the spreading of liquids. *Nature*, volume 379, no. 6564, page 432. Cité page 80.
- [77] ANDREOTTI B., BÄUMCHEN O., BOULOGNE F., DANIELS K.E., DUFRESNE E.R., PERRIN H., SALEZ T., SNOEIJER J.H., and STYLE R.W., 2016. Solid capillarity : when and how does surface tension deform soft solids? *Soft Matter*, volume 12, no. 12, pages 2993–2996. Cité page 80.
- [78] BICO J., ROMAN B., MOULIN L., and BOUDAOUD A., 2004. Adhesion : elastocapillary coalescence in wet hair. *Nature*, volume 432, no. 7018, pages 690–690. Cité page 80.
- [79] PY C., REVERDY P., DOPPLER L., BICO J., ROMAN B., and BAROUD C.N.,
 2007. Capillary origami : spontaneous wrapping of a droplet with an elastic sheet. *Physical Review Letters*, volume 98, no. 15, page 156103. Cité page 80.
- [80] KARPITSCHKA S., PANDEY A., LUBBERS L., WEIJS J.H., BOTTO L., DAS S., ANDREOTTI B., and SNOEIJER J.H., 2016. Liquid drops attract or repel by the inverted cheerios effect. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, volume 113, no. 27, pages 7403–7407. Cité page 80.

- [81] PEPPER R.E., COURBIN L., and STONE H.A., 2008. Splashing on elastic membranes : The importance of early-time dynamics. *Physics of Fluids*, volume 20, no. 8, page 082103. Cité pages 80, 91, et 92.
- [82] HOWLAND C.J., ANTKOWIAK A., CASTREJÓN-PITA J.R., HOWISON S.D., OLIVER J.M., STYLE R.W., and CASTREJÓN-PITA A.A., 2016. It's harder to splash on soft solids. *Physical Review Letters*, volume 117, no. 18, page 184502. Cité pages 80, 91, 92, 93, 94, et 95.
- [83] PARK S.J., WEON B.M., SAN LEE J., LEE J., KIM J., and JE J.H., 2014. Visualization of asymmetric wetting ridges on soft solids with x-ray microscopy. *Nature communications*, volume 5, page 4369. Cité page 80.
- [84] VASILEIOU T., SCHUTZIUS T.M., and POULIKAKOS D., 2017. Imparting icephobicity with substrate flexibility. *Langmuir*, volume 33, no. 27, pages 6708–6718. Cité page 81.
- [85] WEISENSEE P.B., TIAN J., MILJKOVIC N., and KING W.P., 2016. Water droplet impact on elastic superhydrophobic surfaces. *Scientific reports*, volume 6, page 30328. Cité page 81.
- [86] PLANCHETTE C., LORENCEAU E., and BIANCE A.L., 2012. Surface wave on a particle raft. Soft Matter, volume 8, no. 8, pages 2444–2451. Cité page 81.
- [87] MARCHAND A., 2011. Static and Dynamic Wetting : Geometrical Effects at Molecular Scales. Ph.D. thesis, Université Paris-Diderot - Paris VII. Cité pages 82 et 99.
- [88] SOTO D., BOREL DE LARIVIERE A., BOUTILLON X., CLANET C., and QUÉRÉ D., 2014. The force of impacting rain. Soft matter, volume 10, no. 27, pages 4929–4934. Cité page 90.
- [89] GORDILLO L., SUN T.P., and CHENG X., 2018. Dynamics of drop impact on solid surfaces : evolution of impact force and self-similar spreading. *Journal of Fluid Mechanics*, volume 840, pages 190–214. Cité page 90.
- [90] JOSSERAND C. and THORODDSEN S.T., 2016. Drop impact on a solid surface. Annual Review of Fluid Mechanics, volume 48, pages 365–391. Cité page 91.
- [91] KITTEL H.M., ROISMAN I.V., and TROPEA C., 2018. Splash of a drop impacting onto a solid substrate wetted by a thin film of another liquid. *Physical Review Fluids*, volume 3, no. 7, page 073601. Cité page 91.
- [92] LANDAU L. and LEVICH B., 1942. Dragging of liquid by a plate. Acta. Physicochim USSR, volume 17, page 42. Cité page 93.
- [93] DERJAGUIN B.V., 1943. Thickness of liquid layer adhering to walls of vessels on their emptying and the theory of photo-and motion-picture film coating. Acta Physicochim. USSR, volume 20, page 349. Cité page 93.
- [94] LIU Y., TAN P., and XU L., 2015. Kelvin-helmholtz instability in an ultrathin air film causes drop splashing on smooth surfaces. *Proceedings of the National Academy* of Sciences, volume 112, no. 11, pages 3280–3284. Cité pages 95 et 96.

- [95] NOBLIN X., BUGUIN A., and BROCHARD-WYART F., 2005. Triplon modes of puddles. *Physical Review Letters*, volume 94, no. 16, page 166102. Cité page 98.
- [96] BRUNET P., EGGERS J., and DEEGAN R.D., 2007. Vibration-induced climbing of drops. *Physical Review Letters*, volume 99, no. 14, page 144501. Cité page 98.
- [97] REYSSAT M., PARDO F., and QUÉRÉ D., 2009. Drops onto gradients of texture. Europhysics Letters, volume 87, no. 3, page 36003. Cité page 98.
- [98] BOREYKO J.B. and CHEN C.H., 2009. Restoring superhydrophobicity of lotus leaves with vibration-induced dewetting. *Physical Review Letters*, volume 103, no. 17, page 174502. Cité page 98.
- [99] GALVIN K.P., CORK A., and WALL T.F., 1996. Droplet impaction with a substrate—the critical condition for detachment. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, volume 113, no. 1-2, pages 107–116. Cité page 98.
- [100] RAUFASTE C., RAMOS CHAGAS G., DARMANIN T., CLAUDET C., GUIT-TARD F., and CELESTINI F., 2017. Superpropulsion of droplets and soft elastic solids. *Physical Review Letters*, volume 119, no. 10, page 108001. Cité pages 98 et 101.
- [101] LEE H.J. and KIM H.Y., 2004. Control of drop rebound with solid target motion. *Physics of Fluids*, volume 16, no. 10, pages 3715–3719. Cité page 98.
- [102] WEISENSEE P.B., MA J., SHIN Y.H., TIAN J., CHANG Y., KING W.P., and MILJKOVIC N., 2017. Droplet impact on vibrating superhydrophobic surfaces. *Physical Review Fluids*, volume 2, no. 10, page 103601. Cité page 98.
- [103] NGUYEN T.V., TSUKAGOSHI T., TAKAHASHI H., MATSUMOTO K., and SHI-MOYAMA I., 2016. Depinning-induced capillary wave during the sliding of a droplet on a textured surface. *Langmuir*, volume 32, no. 37, pages 9523–9529. Cité page 110.
- [104] GAUTHIER A., BIRD J.C., CLANET C., and QUÉRÉ D., 2016. Aerodynamic leidenfrost effect. *Physical Review Fluids*, volume 1, no. 8, page 084002. Cité page 115.
- [105] MOLÁČEK J. and BUSH J.W.M., 2012. A quasi-static model of drop impact. *Physics of Fluids*, volume 24, no. 12, page 127103. Cité pages 122, 137, 140, et 141.
- [106] DE RUITER J., LAGRAAUW R., MUGELE F., and VAN DEN ENDE D., 2015. Bouncing on thin air : how squeeze forces in the air film during non-wetting droplet bouncing lead to momentum transfer and dissipation. *Journal of fluid mechanics*, volume 776, pages 531–567. Cité pages 122, 125, et 137.
- [107] TOMOTIKA S., 1935. On the instability of a cylindrical thread of a viscous liquid surrounded by another viscous fluid. *Proceedings of the Royal Society of London A*, volume 150, no. 870, pages 322–337. Cité page 132.
- [108] MORA S., PHOU T., FROMENTAL J.M., PISMEN L.M., and POMEAU Y., 2010. Capillarity driven instability of a soft solid. *Physical Review Letters*, volume 105, no. 21, page 214301. Cité pages 143 et 144.
- [109] MORA S., PHOU T., FROMENTAL J.M., and POMEAU Y., 2014. Gravity driven instability in elastic solid layers. *Physical Review Letters*, volume 113, no. 17, page 178301. Cité page 143.

- [110] SHAO X., SAYLOR J.R., and BOSTWICK J.B., 2018. Extracting the surface tension of soft gels from elastocapillary wave behavior. *Soft matter*, volume 14, no. 36, pages 7347–7353. Cité pages 143 et 151.
- [111] MONROY F. and LANGEVIN D., 1998. Direct experimental observation of the crossover from capillary to elastic surface waves on soft gels. *Physical Review Letters*, volume 81, no. 15, page 3167. Cité page 143.
- [112] AHN K., YOON K.H., and KIM M.W., 2001. Thickness dependence of surface modes on a gel. *Europhysics Letters*, volume 54, no. 2, page 199. Cité page 143.
- [113] AHN K., KOSEVICH Y.A., and KIM M.W., 2002. Coexistence of two elastic surface modes enhanced by viscous losses. *Europhysics Letters*, volume 60, no. 2, page 241. Cité page 143.
- [114] MORA S. and POMEAU Y., 2017. Souple et solide : comment la matière élastique se déforme-t-elle? *Reflets de la physique*, pages 18–23. Cité page 144.
- [115] MOISY F., RABAUD M., and SALSAC K., 2009. A synthetic schlieren method for the measurement of the topography of a liquid interface. *Experiments in Fluids*, volume 46, no. 6, page 1021. Cité page 145.
- [116] WILDEMAN S., 2018. Real-time quantitative schlieren imaging by fast fourier demodulation of a checkered backdrop. *Experiments in Fluids*, volume 59, no. 6, page 97. Cité page 145.
- [117] BLABER J., ADAIR B., and ANTONIOU A., 2015. Ncorr : open-source 2d digital image correlation matlab software. *Experimental Mechanics*, volume 55, no. 6, pages 1105–1122. Cité page 148.
- [118] FARADAY M., 1831. Xvii. on a peculiar class of acoustical figures; and on certain forms assumed by groups of particles upon vibrating elastic surfaces. *Philosophical* transactions of the Royal Society of London, volume 121, pages 299–340. Cité page 151.
- [119] BENJAMIN T.B. and URSELL F.J., 1954. The stability of the plane free surface of a liquid in vertical periodic motion. *Proceedings of the Royal Society of London* A, volume 225, no. 1163, pages 505–515. Cité page 151.
- [120] KUMAR K. and TUCKERMAN L.S., 1994. Parametric instability of the interface between two fluids. *Journal of Fluid Mechanics*, volume 279, pages 49–68. Cité page 151.
- [121] DOUADY S. and FAUVE S., 1988. Pattern selection in faraday instability. Europhysics Letters, volume 6, no. 3, page 221. Cité page 152.
- [122] HARDEN J.L., PLEINER H., and PINCUS P.A., 1991. Hydrodynamic surface modes on concentrated polymer solutions and gels. *The Journal of chemical physics*, volume 94, no. 7, pages 5208–5221. Cité page 153.
- [123] KUMARAN V., 1993. Surface modes on a polymer gel of finite thickness. The Journal of chemical physics, volume 98, no. 4, pages 3429–3438. Cité page 153.

- [124] LAMB H., 1881. On the vibrations of an elastic sphere. Proceedings of the London Mathematical Society, volume 1, no. 1, pages 189–212. Cité page 154.
- [125] GRAFF K.F., 2012. Wave motion in elastic solids. Courier Corporation. Cité page 154.
- [126] RAYLEIGH L., 1885. On waves propagated along the plane surface of an elastic solid. Proceedings of the London Mathematical Society, volume 1, no. 1, pages 4–11. Cité page 157.
- [127] LANDAU L.D. and LIFSHITZ E.M., 1986. Theory of elasticity, vol. 7. Course of Theoretical Physics, volume 3, page 109. Cité page 157.
- [128] ONODERA Y. and CHOI P.K., 1998. Surface-wave modes on soft gels. The Journal of the Acoustical Society of America, volume 104, no. 6, pages 3358–3363. Cité page 158.



ÉCOLE DOCTORALE

Sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences (SMEMAG)

Titre : Rebonds spéciaux de liquides

Mots clés : Superhydrophobie, rebond, macrotexture

Résumé : Ce travail de thèse s'articule autour de plusieurs variations sur le thème du rebond d'une goutte d'eau sur une surface non-mouillante. Nous engendrons des rebonds spéciaux que nous caractérisons expérimentalement. Notre analyse de ces rebonds se concentre sur la mise en évidence des paramètres et des phénomènes physiques contrôlant leur extension spatiale et temporelle, deux quantités qu'il est important de comprendre tant d'un point de vue fondamental qu'appliqué. Nous étudions, dans un premier temps, les effets de la géométrie du substrat sur le rebond d'une goutte d'eau. Nous montrons qu'une modification locale, l'ajout d'une macrotexture ponctuelle, crée un mécanisme de rebond nouveau que nous associons à une réduction du temps de contact d'un facteur 2. Nous réalisons également des impacts sur des substrats coniques et sphériques en mettant en avant les différences et les similitudes avec les impacts sur une surface plane. Dans un second temps, nous nous intéressons aux effets créés par un substrat mobile. Nous étudions l'impact de gouttes sur des surfaces déformables et comprenons comment l'échelle de temps du rebond

est influencée par une interaction entre celle de la goutte et celle du substrat. Nous discutons aussi l'influence de la déformation du substrat sur le splash. Notre étude de l'influence du mouvement s'est poursuivie en utilisant des surfaces rigides auxquelles nous pouvons imposer un déplacement vertical. En soumettant des gouttes initialement au repos à un mouvement impulsionnel, nous engendrons de surprenantes cavités coniques dont nous modélisons la dynamique. Cette expérience permet de faire un constat étonnant, la faible adhésion des surfaces superhydrophobes est nécessaire à l'obtention des cavités. Nous réalisons des impacts sur une surface dont le déplacement peut-être déclenché au moment du contact entre le liquide et le solide à l'aide du signal provenant d'un capteur de force de type MEMS. Nous atteignons des temps de contact extrêmement réduits, de l'ordre de 20% de celui observé sur le même substrat sans mouvement. Enfin, nous modifions le liquide et non le substrat. Nous montrons que des gouttes jusqu'à 200 fois plus visqueuses que l'eau peuvent rebondir sur des matériaux superhydrophobes.

Title : Special liquid rebounds

Keywords : Superhydrophobocity, bouncing, macrotexture

Abstract : This thesis revolves around the ability of liquid drops to bounce off superhydrophobic materials. We generate special rebounds and characterize them experimentally. We focus on finding the relevant physical phenomena to describe the temporal and spatial extension of such events, both quantities being of importance from the fundamental and applied point of vue. First, we study the influence of the susbtrate geometry. We modify the surface locally, by introducing a singular macrotexture, and show that it leads to a new bouncing mechanism that shortens the contact time typically by a factor 2. We also modify the substrate at the size of the drop. We perform impacts on non wetting cones and spheres and compare them to what is observed on a flat surface. Then, we study the effect of substrate motion. We make impacts on soft materials that can be deformed by the drop. We show that this situation can lead to fast bouncing and interpret the contact time as the result of an

interplay between the timescale of the drop and that of the substrate. We also discuss the influence of substrate deformation on splashing. We go deeper into the effect of substrate motion by using rigid materials which movement we can trigger. We evidence new liquid shapes, conical cavities, by submitting a drop, initially at rest, to a vertical impulse. Surprisingly, the adhesion of superhydrophobic materials is the key ingredient needed to observe such shapes. We also work on the effect of motion at the onset of impact, by trigerring the substrate movement using the signal from a MEMS force sensor integrated in the surface. This setup allow us to reach contact times that represent 20% of the contact time on an immobile substrate. Finally, we change perspective and modify the liquid instead of the solid. We show that viscous drops can bounce as long as their viscosity does not exceed 200 times that of water.

