

Introduction	5
Chapitre I. Quelques rappels sur le mouillage	9
I.1 Tension de surface	11
I.1.1 Définition.....	11
I.1.2 Pression de LAPLACE	12
I.1.3 Longueur capillaire	13
I.2 Les surfactants : modification de l'état de surface.....	13
I.2.1 Une molécule amphiphile.....	14
I.2.2 Association de surfactants : formation de micelles.....	15
I.2.3 Interface rigide et interface mobile	16
I.3 Mouillage	17
I.3.1 Définition et applications	17
I.3.2 Paramètre d'étalement S : mouillage total et mouillage partiel	18
I.3.3 Angle de contact d'équilibre : loi de YOUNG-DUPRÉ	18
I.3.4 Une loi insuffisante dans la réalité - Hystérésis du mouillage	19
I.4 Angle de contact dynamique - Modélisation.....	20
I.4.1 Généralités sur la modélisation du mouillage dynamique.....	21
I.4.2 L'approche hydrodynamique	22
I.4.3 Dissipation à la ligne de contact.....	26
I.4.4 Intégration de l'hystérésis dans les modèles de mouillage dynamique.....	27
I.5 Conclusion.....	28
Bibliographie du Chapitre I	29
PREMIÈRE PARTIE GOUTTES SUR UN PLAN INCLINÉ	33
Chapitre II. Singularités de gouttes glissant sur un plan incliné	35
II.1 État de l'art	37
II.2 Dispositif expérimental.....	39
II.2.1 Montage.....	39
II.2.2 Contrôle de la vitesse des gouttes par inclinaison du substrat	40
II.2.3 Description des huiles silicone.....	41
II.2.4 Technique de visualisation.....	42
II.2.5 Méthode de mesure des angles de contact et des angles d'ouverture du coin	43

II.3 Forme des gouttes en fonction de leur vitesse	44
II.4 Angles de contact dynamiques	45
II.4.1 Angle critique de reculée à la transition ovale/coin	45
II.4.2 Test des différents modèles de mouillage	47
II.5 Forme adaptative du coin	49
II.5.1 Vitesse normale à la ligne de contact : $Ca \cdot \sin \phi$	50
II.5.2 Angle d'ouverture du coin en vue de dessus : ϕ	51
II.5.3 Angle d'ouverture du coin en vue de côté (Ω)	52
II.6 Un « coin rond » ?	55
II.6.1 Courbure de la ligne de contact dans la direction transverse à l'écoulement	55
II.6.2 Retard à la transition	57
II.7 Transition vers le cusp	58
II.8 Perlage	59
II.8.1 Transition de perlage	59
II.8.2 Gouttes satellites	60
II.8.3 Largeur du ruisseau arrière	61
II.9 Conclusions et perspectives	63
Bibliographie du Chapitre II	67
 SECONDE PARTIE ÉTUDE DES MÉANDRES	 71

Chapitre III. Méandres stationnaires - Instabilité d'un filet liquide sur une plaque sans érosion **75**

III.1 Introduction	77
III.2 Montage expérimental	78
III.3 Les différents écoulements rencontrés	80
III.3.1 Les régimes à débit croissant	81
III.3.2 Développement des méandres	82
III.3.3 Stabilité des méandres stationnaires	83
III.4 Seuils de méandrage	84
III.4.1 Détermination des seuils	84
III.4.2 Interprétation physique du seuil de méandrage	85
III.5 Morphologie des méandres	90
III.5.1 Origine de la stationnarité des méandres	90

III.5.2 Forme locale des méandres.....	90
III.5.3 Évolution des grandeurs moyennes $\langle R_c \rangle$, $\langle \lambda \rangle$ et $\langle A \rangle$	92
III.6 Les méandres comme fonction : une approche mathématique	96
III.6.1 La sinusoïde.....	96
III.6.2 Suite de demi-cercles.....	97
III.6.3 Arcs de cercles et segments inclinés	99
III.7 Étude de la vitesse au sein des méandres	101
III.7.1 Vitesse moyenne dans le filet droit.....	101
III.7.2 Vitesse moyenne dans les méandres.....	104
III.7.3 Vitesse locale : non-uniformité sur la largeur des méandres.....	108
III.8 Débit décroissant - Hystérésis en débit	109
III.8.1 Résultats expérimentaux.....	109
III.8.2 Origine physique de l'hystérésis en débit.....	110
III.9 Influence de perturbations et de la viscosité.....	110
III.9.1 Débat sur l'origine des méandres : fluctuations en amont de l'injection, dues à la pompe, ou non ?.....	110
III.9.2 Perturbations d'un filet droit en aval de l'injection – Déclenchement de méandres	112
III.10 Conclusion - Discussion	114
III.10.1 Création des méandres – Seuil de méandrage.....	114
III.10.2 Rôle de l'hystérésis de mouillage dans la stationnarité des méandres.....	115
III.10.3 Morphologie des méandres stationnaires	115
III.10.4 Rôle de la gravité sur la forme des méandres.....	116
III.11 Perspectives	118
Bibliographie du Chapitre III.....	121
Chapitre IV. Méandres mouvants en mouillage total	123
IV.1 Historique.....	125
IV.2 Dispositif expérimental	128
IV.2.1 Cellule de Hele-Shaw	128
IV.2.2 Système d'injection.....	129
IV.2.3 Méthode de visualisation	129
IV.3 Le « Fairy », pas si féérique que ça... ..	129
IV.3.1 Tests au « Fairy liquid » à 0,4%.....	129

IV.3.2 Problèmes liés à l'utilisation du Fairy : une dynamique trop riche	131
IV.3.3 Objectifs de la présente étude.....	132
IV.4 Une solution d'un seul surfactant : le Triton X-100™.....	132
IV.4.1 Description du surfactant.....	132
IV.4.2 Écoulements observés selon le débit Q imposé.....	133
IV.5 Influence du type d'interface : mobile ou rigide. Le SDS.....	135
IV.5.1 Description du surfactant.....	136
IV.5.2 Régimes obtenus avec du SDS pour la concentration $c=CMC$	137
IV.5.3 L'effet Marangoni à l'origine des méandres remontants ?	137
IV.6 Influence de la concentration en surfactant sur les méandres	138
IV.6.1 Les différentes concentrations étudiées.....	138
IV.6.2 Régimes d'écoulement pour les différentes concentrations	139
IV.7 Sur la nécessité des gradients de tension superficielle : méandres d'huile silicone	141
IV.7.1 Choix d'un liquide pur et totalement mouillant pour le verre : l'huile silicone 47V2	141
IV.7.2 Méandres sans gradient de tension superficielle.....	141
IV.7.3 Seuil de méandrage	142
IV.7.4 Description des méandres d'huile silicone 47V2 - Comparaison avec les méandres de surfactants.....	144
IV.8 Effet de la viscosité	148
IV.8.1 Effet sur le seuil de méandrage.....	148
IV.8.2 Effet sur la largeur des filets.....	149
IV.9 Conclusions et perspectives.....	151
IV.9.1 Discussion sur les surfactants purs	151
IV.9.2 L'apport des huiles silicones.....	152
IV.9.3 Retour vers le mouillage partiel ?.....	154
Bibliographie du Chapitre IV	155
Conclusion	157
Annexes	163
A. Mesure de la tension superficielle par arrachement	165
B. Mesure de la viscosité : viscosimètre à capillaire.....	167
C. Technique d'enduisage par le FC725.....	168
D. Calcul du préfacteur pour le seuil de méandrage	169

E. Programme de couplage des pousse-seringues.....	171
F. Copie de l'article « Shape and motion of drops sliding down an inclined plane », <i>J. Fluid Mech.</i> (2005)	175
G. Article « Self-similar flow and contact line geometry at the rear of cornered drops », <i>Phys. Fluids</i> (2005)	198
H. Article « Meandering rivulets on a plane : a simple balance between inertia and capillarity ? », accepté à <i>Phys. Rev. Lett.</i>	210
Bibliographie générale du manuscrit	215

Rapport-Gratuit.com

Remerciements

La liste des personnes que j'aimerais remercier ici, qui m'ont aidée d'une manière ou d'une autre durant ma thèse, est longue et je m'excuse par avance si j'oublie quelques noms.

Je voudrais tout d'abord remercier José-Eduardo WESFREID de m'avoir accueillie dans son laboratoire. Je suis arrivée au PMMH pour la première fois en juin 2000, afin d'effectuer un stage de magistère sous la direction de Jean-Marc FLESSELLES, dans l'équipe de Laurent LIMAT. Jean-Marc m'a donné le goût des belles expériences d'hydrodynamique et surtout l'envie de revenir au laboratoire pour y effectuer d'autres stages et, pourquoi pas, une thèse.

Six ans après, l'eau a coulé sous le ponts, j'ai effectivement signé à nouveau pour le PMMH et voilà que ma thèse se termine. J'ai pris beaucoup de plaisir durant toutes ces années au laboratoire à jouer avec les liquides qui prennent des formes curieuses, à regarder couler des gouttes pointues ou à observer avec attention la formation d'un méandre.

Une personne clef dans la réalisation de ce travail de thèse est bien évidemment Laurent LIMAT, mon directeur de thèse. J'ai apprécié le subtil cocktail que Laurent m'a proposé : prenez une belle expérience d'hydrodynamique couplée à des problèmes d'interfaces, travaillez l'aspect expérimental pendant de nombreuses heures en incluant une bonne partie de bricolage, et pour finir, ajoutez une pincée de théorie. Outre son extrême gentillesse et son enthousiasme, Laurent m'a toujours fait aller de l'avant. Il a su me guider juste ce qu'il faut, me faisant souvent des suggestions et commentaires sur mon travail, des fois agaçants, car toujours pertinents. Merci pour m'avoir fait découvrir la recherche et m'avoir fait tout simplement grandir au niveau scientifique.

Je voudrais aussi remercier mon co-directeur de thèse, Adrian DAERR, pour la grande liberté qu'il m'a laissée dans mon travail.

Je tiens à remercier Michèle ADLER et Christophe CLANET pour avoir accepté d'être rapporteurs de cette thèse, ainsi que les autres membres du jury : Emmanuel DE LANGRES, Jens EGGERS et Florence ELIAS. Je les remercie pour les discussions et suggestions intéressantes qu'ils ont proposées et qui devraient permettre d'avancer encore d'avantage dans la compréhension des phénomènes abordés dans cette thèse.

Mais ces trois années de thèse n'auraient pas été les mêmes sans les coéquipiers qui m'ont entourés, et tout particulièrement mes co-bureaux. Un très grand merci donc à Giles et Manue, qui m'ont aidés tant sur le plan scientifique (traitement d'image, conception de montages expérimentaux ou compréhension de modèles de mouillage) que sur le plan humain en parsemant ces années de fou rires. Je vais maintenant tourner une page et pouvoir repenser aux dessins de ronds et de carrés sur le tableau, aux « décourbures » de bananes, aux ateliers créations de T-shirts « mouilleurs et démouilleurs », aux arrosages au pistolet à eau, aux batailles de chips, au tennis raquette, aux lancers de pingouins, aux séances morphing, aux expériences

scientifiques de propulsion de coca-mentos ou autres concours de petits Lu... Vraiment un énorme merci à vous deux.

Merci également à Jacco-Ohwo qui, entre autres, m'a montré que la collaboration entre expérimentateurs et théoriciens n'appartenait pas qu'au domaine du rêve.

Je voudrais également remercier les autres membres du laboratoire qui ont contribué ou contribuent encore à en faire un lieu de travail agréable, convivial et stimulant. En vrac : Christophe, Jean-Sébastien, Julien, Pierre, Lénéïc, Mehdi, Antoine, Avin, Julia, Etienne, Mathilde, Yannis, Sandra, Natacha, Dorra, Florent, Gabriel, Evelyne, Anke, Eric, Antonio, Mauricio, Pascal, Bruno, Marc, Olivia, José, Patrice, David R., Benoît, Luc, Michel dSA, Michel B., Marie-France, Chay, Pedro, Charlotte, Shio, Ramiro et bien d'autres encore.

Un très grand merci aussi à Frédérique AUGER, pour son efficacité et sa capacité à démêler des problèmes indémêlables, mais aussi pour sa bonne humeur quotidienne.

Durant ma thèse, j'ai eu l'occasion d'encadrer plusieurs stagiaires : Marguerite D'OLCE, Vincent MARZLOFF et Stéphane LEGRAND. Je les remercie de l'aide qu'ils m'ont apportée, sur des sujets parfois délicats, et leur souhaite une bonne continuation.

Merci à Manue, Rodolphe et à mes parents pour la relecture du manuscrit, ainsi qu'à Luc et Michel M. pour m'avoir aidée à améliorer ma soutenance.

Merci enfin à mes amis, à ma famille, et tout particulièrement à mon mari, Rodolphe, pour m'avoir écoutée parler de mes expériences et problèmes techniques ou théoriques pendant de longues heures au retour du laboratoire, et pour m'avoir conseillée, mais aussi toujours soutenue et épaulée.

Je vais maintenant larguer les amarres et voguer vers d'autres horizons, je dois le dire, non sans une certaine nostalgie...

Introduction

LE ruissellement de liquides sur des surfaces solides est si omniprésent dans notre vie quotidienne que l'on pourrait se demander s'il est encore nécessaire d'écrire une thèse sur ce thème. Pourtant, bien que l'écoulement de gouttes et de filets soit habituel, et en devienne presque banal, le sujet a été peu étudié et est encore loin d'être totalement compris. Il reste de très nombreuses zones d'ombre dans ce domaine qui fera encore certainement couler beaucoup d'encre.

À propos de l'écoulement de gouttes tout d'abord, la plupart des études ne se sont préoccupées que du seuil de mise en mouvement des gouttes, ou de leur mouvement proche de ce seuil. À plus grande vitesse, les gouttes développent une pointe à l'arrière puis finissent par perler. Mais comment se fait-il que nous observions cette singularité alors que les forces capillaires doivent diverger à la pointe ? Et concernant les méandres, pourquoi un filet se met-il à méandrer ? Une goutte d'eau qui glisse sur un plan incliné va toujours tout droit. Un filet d'eau en chute libre ne méandre jamais lui non plus. Quels sont donc les ingrédients qui peuvent donner naissance à cette instabilité ? Qu'est-ce qui la contrôle ? Comment se développe-t-elle ?

Pour tenter de répondre à ces questions et comprendre davantage la dynamique des écoulements de gouttes et de méandres sur une surface solide, nous avons travaillé sur trois expériences, chacune formant un chapitre de ce manuscrit.

Une première partie (Chapitre II) est consacrée à l'étude de gouttes d'huiles silicone sur un substrat peu mouillant. Cette partie reprend la suite des travaux effectués dans la même équipe du laboratoire P.M.M.H. de l'E.S.P.C.I., par Thomas PODGORSKI. Nous voulions aller plus loin dans la compréhension des singularités qui se développent à l'arrière des gouttes, mais aussi nous intéresser aux régimes à encore plus grande vitesse (régimes de cusp et de perlage).

La seconde partie concerne l'étude des méandres. Elle se divise en deux chapitres, l'un (Chapitre III) portant sur les méandres stationnaires obtenus en mouillage partiel sur une plaque présentant une hystérésis assez importante, et l'autre (Chapitre IV) portant sur des méandres obtenus sans hystérésis, en mouillage total dans une cellule de Hele-Shaw. Ce dernier chapitre a été l'occasion de tester les effets de la physicochimie sur les méandres. Cette étude fait suite à des travaux effectués par Wiebke DRENCKHAN au « Trinity College » de Dublin, qui a regardé les méandres d'une solution de surfactant dans une cellule de Hele-Shaw, mimant les ondulations de bords de Plateau dans les mousses. Avec ces deux expériences de méandres, nous avons pu comparer les différentes situations et mesurer l'importance de l'hystérésis de mouillage. Contrairement à la partie sur les gouttes, qui bénéficiait déjà de nombreux travaux précédant les nôtres, les méandres n'avaient suscité que peu d'études. Là encore, les quelques études existantes s'étaient principalement limitées à regarder le seuil de méandrage, sans s'intéresser au régime en lui-même. Il s'agissait donc de monter de nouvelles manipulations, la cellule de Hele-Shaw ayant même dû être construite de toutes pièces.

Avant d'entrer dans le vif du sujet, le Chapitre I constitue quelques rappels théoriques sur le mouillage (tension de surface, surfactants, mouillage statique et dynamique) qui sont des notions utiles pour la compréhension de la suite du manuscrit.

Chapitre 1.

Quelques rappels sur le mouillage



LES écoulements à surface libre sont des cas de figure fréquemment rencontrés dans l'industrie, mais aussi dans la vie quotidienne : écoulements de gouttes, filets, films liquides, ... D'un point de vue théorique, il s'agit là de problèmes souvent complexes, mettant en jeu des interfaces liquide/gaz, mais aussi parfois solide/liquide et solide/gaz, incluant généralement des effets capillaires. Dans ce chapitre, nous rappelons les principaux résultats sur la capillarité qui seront utiles pour la suite du manuscrit. Il s'agit de rappels sur la tension superficielle, le mouillage et les surfactants. Pour plus de détails, on pourra se reporter par exemple aux livres de GUYON *et al* (2001) et DE GENNES *et al* (2002) concernant la tension superficielle et le mouillage, et à celui de MYSELS *et al* (1959) à propos des surfactants.

1.1 Tension de surface

1.1.1 Définition

Considérons par exemple le cas de l'interface entre une phase liquide et une phase vapeur, comme pour une bulle de savon. Le liquide présente une tension de surface γ (ou *tension superficielle*) et sa surface se comporte comme une membrane tendue. Déformer ou augmenter cette surface coûte de l'énergie. En effet, une molécule dans un fluide est soumise à des interactions attractives, exercées par les autres molécules du milieu. Ces forces cohésives peuvent être des forces de VAN DER WAALS, des liaisons hydrogène, des liaisons ioniques ou métalliques selon le fluide considéré. Si une molécule se situe à une interface (par exemple avec le gaz), elle subit moins d'interactions attractives que lorsqu'elle était dans le volume du fluide et se retrouve dans un état énergétiquement défavorable. L'énergie du système présente alors un terme de surface, positif. À cause de ce terme, les liquides ajustent leur forme de façon à minimiser leur surface.

La tension superficielle traduit cette énergie de cohésion du liquide, et représente l'augmentation de l'énergie libre, F , due à une augmentation de surface A de dA :

$$\gamma = \left(\frac{\partial F}{\partial A} \right)_{T,V,n} \quad (I.1)$$

où T est la température du milieu, V le volume considéré et n la quantité de matière dans le volume V . Dimensionnellement, il s'agit d'une énergie par unité de surface, et donc d'une force par unité de longueur. Les interfaces se comportent alors comme des membranes tendues par cet effet de cohésion du liquide, c'est pourquoi il porte le nom de « tension » superficielle.

La plupart des liquides ont une tension superficielle de l'ordre de 20-50 mN/m (cf. Tableau I-1). À cause des liaisons hydrogène, l'eau possède une tension superficielle particulièrement élevée, de l'ordre de 70 mN/m. Du coup, sa tension superficielle est susceptible de chuter très facilement, par simple contamination. Il est donc nécessaire de prendre des précautions de propreté lorsqu'on travaille avec l'eau.

LIQUIDE À 20°C	TENSION SUPERFICIELLE (mN/m)
Eau	72
Éthanol	24
Hexane	18
Octane	22
Huile silicone	~ 20
Mercure	485

Tableau I-1 : Tension superficielle de quelques liquides. La tension superficielle de l'eau est plus élevée que celle des autres liquides usuels à cause des liaisons hydrogène. Celle du mercure est extrêmement élevée de fait des liaisons métalliques fortes.

1.1.2 Pression de LAPLACE

Tout comme un ballon de baudruche que l'on aurait gonflé en soufflant dedans, une bulle de savon reste gonflée par une surpression à l'intérieur de la bulle par rapport à la pression extérieure. Ce saut de pression à la traversée d'une surface de séparation entre deux fluides est donné par la loi de LAPLACE (1805) :

$$\Delta p = p_{\text{int}} - p_{\text{ext}} = \gamma \left(\frac{1}{R} + \frac{1}{R'} \right) = \gamma \kappa \quad (\text{I.2})$$

où κ est la courbure de la surface, et R et R' ses rayons de courbure selon deux plans normaux à la surface, comptés algébriquement. Pour une bulle de savon de rayon R , ce saut de pression dépend de la tension superficielle comme suit¹ :

$$\Delta p = p_{\text{int}} - p_{\text{ext}} = 2 \times \gamma \frac{2}{R} = 4 \frac{\gamma}{R} \quad (\text{I.3})$$

car il y a deux interfaces liquide/gaz à traverser pour passer de l'intérieur à l'extérieur de la bulle.

Ce résultat peut se retrouver simplement par une approche du type « hémisphères de Magdebourg »² (voir Figure I-1). Regardons le bilan des forces exercées sur un hémisphère par l'autre hémisphère, par rapport au cas fictif où le deuxième hémisphère serait absent. La tension de surface équilibre les forces de pression :

¹ La forme géométrique de surface minimale à volume donné est une sphère, c'est pourquoi les bulles de savon adoptent cette forme. Les courbures R et R' sont alors égales et valent le rayon R de la sphère.

² Les hémisphères de Magdebourg furent une expériences de Otto VON GUERICKE, bourgmestre de Magdebourg. Deux hémisphères creux d'un peu plus de trente cm furent assemblées ensemble, si bien que l'air pu être pompé entre les hémisphères. La pression de l'atmosphère environnante les maintenaient ensemble fermement. En 1657 dans un essai devant le Reichstag et l'empereur à Ratisbonne il fut nécessaire d'utiliser seize chevaux pour les séparer.

$$2\gamma (2\pi R) = \Delta p (\pi R^2) \quad (I.4)$$

On retrouve donc l'expression de la différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur de la sphère : $\Delta p = 4\gamma / R$.

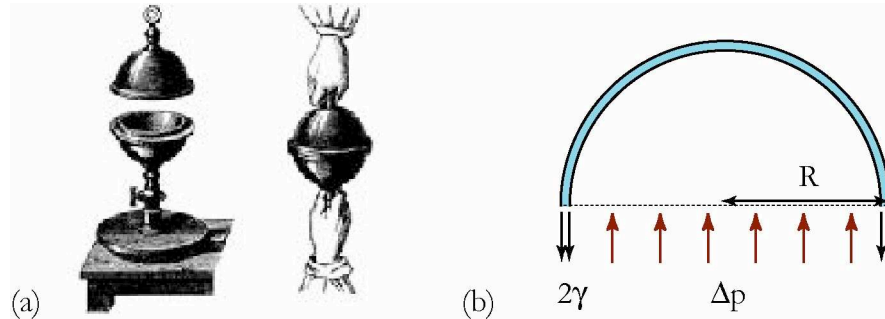


Figure I-1 : (a) Illustration de l'expérience des hémisphères de Magdebourg. montrant l'effet des forces de pression. Les deux hémisphères sont accolés et l'on crée le vide entre les deux. Il est alors très difficile de les séparer. (b) Schéma illustrant les forces s'exerçant sur un « hémisphère de savon ».

1.1.3 Longueur capillaire

Il existe une longueur en deçà de laquelle la gravité est négligeable devant la capillarité. Ainsi, la forme d'une goutte déposée sur un substrat partiellement mouillant (voir section I.3) dépend de son rayon R . Cette longueur est appelée « longueur capillaire » et nous la noterons l_c dans tout le manuscrit³. Elle est estimée en comparant la pression de Laplace γ/l_c à la pression hydrostatique $\rho g l_c$. L'égalité des deux pressions mène à :

$$l_c = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho g}} \quad (I.5)$$

Généralement, la longueur capillaire est de l'ordre de quelques millimètres. Aux échelles de taille supérieures à l_c , la gravité domine la capillarité, mais pour des tailles inférieures à l_c , la gravité est négligeable et les effets capillaires sont dominants. Si le rayon d'une goutte est inférieur à l_c , alors la goutte a la forme d'une calotte sphérique (forme de surface minimale), et si $R > l_c$, elle s'aplatit sous l'effet de la gravité.

1.2 Les surfactants : modification de l'état de surface

Il est possible de faire varier la tension superficielle d'un liquide en lui ajoutant des *surfactants*, c'est-à-dire des molécules actives en surface. Leur ajout dans une solution aqueuse fait baisser la tension superficielle de l'eau et rend ainsi la création d'une interface air/liquide moins coûteuse en énergie. Ces substances, dites tensioactives, sont trouvées très couramment

³ La notation K^{-1} se trouve aussi fréquemment dans les ouvrages.

comme « produit actif » dans des produits ménagers comme les savons, le produit à vaisselle, la lessive, ... et sont aussi utilisées pour stabiliser des émulsions.

1.2.1 Une molécule amphiphile

Les surfactants (ou tensioactifs) sont généralement des composés des masses molaires relativement élevées ($M > 200$ g/mol) qui sont amphiphiles, c'est-à-dire qu'ils comportent deux zones distinctes d'affinités chimique très différentes (voir Figure I-2a). Ils se composent à la fois d'une région hydrophile et d'une région hydrophobe, d'où leur tendance à s'adsorber aux interfaces, créant ainsi une monocouche tapissant l'interface (eau/air ou eau/huile par exemple), comme illustrée sur la Figure I-2b. La partie hydrophobe est souvent une chaîne aliphatique, appelée queue, et la partie hydrophile peut être ionique (tête polaire) ou formée de quelques unités neutres mais solubles dans l'eau. L'interposition des molécules de surfactants entre les deux milieux modifie leurs interactions directes et généralement abaisse la tension superficielle grâce à l'affinité des surfactants pour chacun des deux fluides.

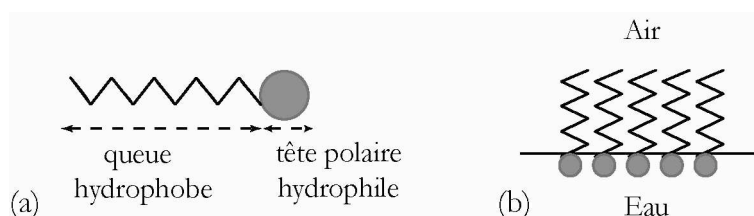


Figure I-2 : (a) Représentation d'une molécule de surfactant avec sa chaîne aliphatique hydrophobe et sa tête polaire hydrophile. (b) Placement des surfactants à une interface eau/huile. Les têtes polaires se mettent dans l'eau alors que les queues fuient l'eau.

Les surfactants peuvent être ioniques (anioniques ou cationiques) ou bien non-ioniques. Quelques exemples sont donnés dans le Tableau I-2. Ils sont largement utilisés comme détergents car ils permettent de modifier le caractère hydrophile ou hydrophobe d'une substance. Si, par exemple, on cherche à éliminer une tache de graisse avec de l'eau additionnée de surfactants, les queues aliphatiques viennent se placer dans la tache d'huile, laissant à la surface leurs têtes hydrophiles. L'élimination de la tache d'huile, maintenant soluble dans l'eau, est alors facilitée.

NOM	NOM DÉVELOPPÉ	FORMULE SEMI DÉVELOPPÉE	NATURE
SDS	Sulfate de dodécyle et de sodium	$(C_{12}H_{25} - O - SO_3^-, Na^+)$	Anionique
C_n TAB	Bromures d'alkyltriméthyl ammonium	$(C_nH_{2n+1} - N^+ - (CH_3)_3, Br^-)$	Cationique
C_nE_m	Polyoxyéthylène alkyl éthers	$C_nH_{2n+1} - (O - CH_2 - CH_2)_m - OH$	Non-ionique

Tableau I-2 : Exemples de surfactants ioniques et non-ioniques

1.2.2 Association de surfactants : formation de micelles

Si l'on considère une solution d'eau très concentrée en surfactants, ces derniers commencent par occuper toute l'interface et l'excédent de surfactant est obligé de se disperser dans le volume de la solution. La partie hydrophobe des molécules n'apprécie pas de se trouver ainsi dans le volume d'eau et les surfactants s'organisent dans la solution afin d'isoler les chaînes hydrophobes. Au-delà d'une concentration critique, dite « concentration micellaire critique » (CMC), les molécules de surfactant se regroupent en micelles (cf. Figure I-3). Ces structures permettent de présenter uniquement les têtes polaires au milieu extérieur, protégeant ainsi toutes les queues aliphatiques de l'eau. Elles se forment avec un nombre moyen de monomères donné.

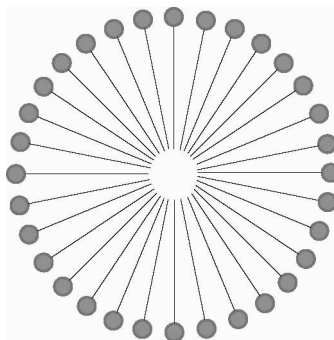


Figure I-3 : Association de surfactants en micelle sphérique. Les cercles représentent les têtes polaires et les traits les queues aliphatiques des surfactants.

Il y a compétition entre une structure micellaire et un ensemble de monomères libres. En effet, la formation d'une micelle permet de diminuer l'énergie interfaciale par molécule, mais les molécules se retrouvent aussi soumises à des interactions répulsives (les têtes étant souvent chargées) et également stériques. Par conséquent, à faible concentration, les molécules sont plus stables sous forme de monomères. Au-delà de la concentration micellaire critique, les molécules s'organisent sous forme de micelles, mais il reste des monomères libres dans le volume de la solution. La concentration en monomères libres varie très peu si l'on augmente la concentration en surfactant, par contre celle en micelles augmente. À concentration encore plus élevée, on peut voir l'apparition de micelles cylindriques (et non plus sphériques) ou encore de bicouches. Par exemple, pour le surfactant SDS, les micelles deviennent cylindriques au-delà de 200 mmol/L à 22°C, soit à 25 fois la concentration micellaire critique.

Les micelles sont en équilibre dynamique avec les monomères libres dans le volume de la solution, et sont constamment en train de se désintégrer et de se reformer [PATIST *et al* (2001)]. L'échange de monomères libres entre les micelles et la solution est relativement rapide (temps de relaxation τ_1 de l'ordre de la microseconde) et est assimilé à des chocs entre monomères et micelles. Par contre, la formation d'une micelle ou sa désintégration totale est beaucoup plus longue, et représente donc l'étape limitante (temps de relaxation τ_2 de l'ordre de la milliseconde à quelques minutes).

1.2.3 Interface rigide et interface mobile

À la suite d'un désaccord sur des résultats de drainage de mousses, obtenus par des laboratoires utilisant le liquide vaisselle « Fairy » irlandais ou le « Dawn » américain (groupes de WEAIRE et de STONE respectivement), ces groupes ont redécouvert le rôle essentiel de la physicochimie des interfaces dans la dynamique des mousses [KOEHLER *et al* (1999)]. Un film de savon créé à l'aide d'un surfactant rigide (comme le Fairy) draine lentement, sans turbulence visible, alors qu'un film contenant des surfactants mobiles (comme le Dawn) draine rapidement, avec l'apparition de mouvements turbulents.

Les surfactants se plaçant préférentiellement aux interfaces, ils influencent ces dernières et imposent de nouvelles conditions aux limites à l'interface, lorsqu'on cherche à résoudre l'écoulement du liquide. En fait, ils modifient la viscosité de surface et par conséquent modifient l'écoulement des solutions [MYSELS *et al* (1959)] en changeant les conditions aux limites. Des expériences de drainage forcé de solutions de surfactants dans des mousses ont permis de mettre en évidence des types de drainages différents selon les surfactants utilisés. Il s'agit d'humidifier une mousse, en injectant une solution à débit fixé par le haut de la mousse, et de mesurer la vitesse de chute du front de mousse humide en fonction du débit. La vitesse du front varie en loi de puissance en fonction du débit, l'exposant obtenu étant caractéristique du type d'écoulement (Poiseuille ou bouchon). De tels résultats ont été obtenus par différentes équipes et avec des techniques variées : WEAIRE *et al* (1993) et DURAND *et al* (1999) par variations de conductivité électrique, KOEHLER *et al* (2000) par marquage à la fluorescéine, KOEHLER *et al* (2002) par suivi de billes de latex fluorescentes, ...

Si les surfactants imposent une forte viscosité de surface, la mobilité de surface est faible et donc l'interface peut être considérée comme approximativement rigide avec des conditions de non-glissement sur l'interface ; l'écoulement engendré est de type Poiseuille. Au contraire, si les surfactants imposent une faible viscosité de surface, l'interface est mobile, et idéalement à contrainte nulle, des éléments de film peuvent se déplacer les uns par rapport aux autres, générant un écoulement de type bouchon. Remarquons qu'en réalité, plutôt que la simple valeur intrinsèque de la viscosité de surface, c'est la mobilité de surface des bords de Plateau, M , qui est pertinente :

$$M = a \frac{\eta}{\eta_s} \quad (I.6)$$

où η représente la viscosité en volume, η_s la viscosité de surface et a la largeur des bords de Plateau [KOEHLER *et al* (2002), DURAND & LANGEVIN (2002)]. La mobilité M est inversement proportionnelle à la viscosité de surface, et est un nombre sans dimension.

Un système donné peut présenter des interfaces rigides, mobiles, ou intermédiaires. Le passage d'interfaces rigides à mobiles (ou réciproquement) peut se faire en changeant de surfactant. De grands surfactants insolubles sont présumés former des interfaces rigides alors que de petits surfactants solubles ont plus de chances de former des interfaces mobiles. Par exemple, le SDS et le « Dawn » sont connus pour créer des interfaces mobiles, alors que le Triton X-100 et le « Fairy » forment des interfaces rigides [STONE *et al* (2003)]. Il est également possible de modifier la mobilité des interfaces en altérant la composition chimique du surfactant. Un ajout d'une très faible quantité de dodécanol au SDS suffit pour rendre les interfaces rigides (rapport

de 10^{-3} entre la concentration en dodécanol et en SDS, puisqu'il en faut une faible concentration de surface, et donc une très faible concentration en volume), [DURAND *et al* (1999), PITOIS *et al* (2005)]. La formation d'une monocouche mixte SDS-dodécanol à l'interface air/liquide, extrêmement stable, et à forte viscosité de surface explique la forte augmentation de la rigidité observée [POSKANZER & GOODRICH (1975)].

1.3 Mouillage

1.3.1 Définition et applications

Jusque-là, nous avons surtout considéré l'interaction entre deux phases. Mais, lorsqu'une goutte de pluie se dépose sur une vitre par exemple, (le tout est plongé dans l'atmosphère terrestre), nous sommes en présence de trois phases : liquide, solide et gazeuse. L'étude de l'étalement d'un liquide sur un substrat, le tout dans un gaz, s'appelle le *mouillage*. Selon les affinités du liquide avec le solide et le gaz environnant, le liquide va plus ou moins s'étaler (voir Figure I-4).

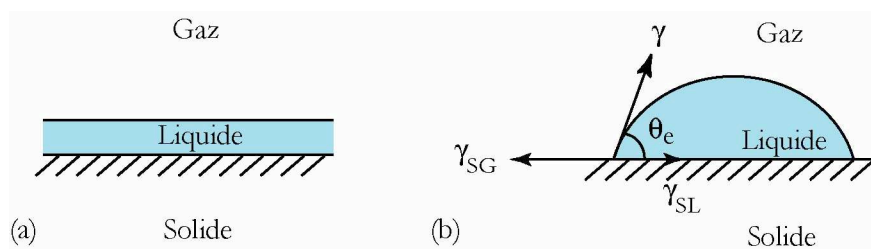


Figure I-4 : (a) Mouillage total : le liquide s'étale complètement sur le substrat sous forme de film. (b) Mouillage partiel : le liquide forme une goutte d'angle de contact θ_e avec le substrat.

Le contrôle du mouillage, c'est-à-dire le contrôle de l'étalement des liquides, trouve des applications dans des champs très variés. Par exemple, les vitres des pare-brises ou les verres des lunettes sont enduits d'une surface protectrice pour que l'eau ne s'y étale pas et qu'elle puisse s'écouler en laissant la surface sèche derrière elle. Les vêtements ou chaussures sont rendus imperméables (cf. Figure I-5a), les monuments ou les pierres poreuses des bâtiments sont protégés contre la pluie (cf. Figure I-5b), les insecticides sont étudiés pour ne pas former des gouttes ruisselant sur les feuilles mais plutôt des films qui pénétreront mieux dans la plante. En cosmétique, l'étalement de crèmes ou de mascara est amélioré, ou encore en cuisine, le recouvrement des poêles par du Téflon (polymère fluoré) les rend non-mouillantes, ...

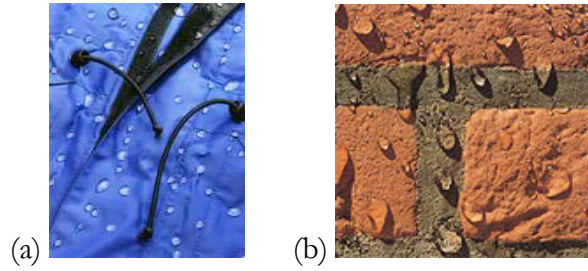


Figure I-5 : (a) Vêtement imperméabilisé : l'eau ne pénètre pas dans les fibres.
(b) Pierre poreuse hydrofugée : les gouttes restent en surface et ne rentrent pas dans les pores.

1.3.2 Paramètre d'étalement S : mouillage total et mouillage partiel

On distingue deux types de mouillage : total et partiel (voir Figure I-4). Afin de déterminer si une goutte va s'étaler sur un substrat ou non, il faut considérer le paramètre d'étalement S (de l'anglais « spreading ») qui correspond à la différence d'énergie entre substrat sec et mouillé :

$$S = \gamma_{SG} - (\gamma_{SL} + \gamma) \quad (I.7)$$

avec γ_{SG} la tension interfaciale solide/gaz, γ_{SL} la tension interfaciale solide/liquide, et γ la tension interfaciale γ_{LG} entre le liquide et le gaz. Si S est positif, le liquide s'étale complètement sur le substrat pour former un film nanoscopique ; on est en situation de mouillage total. Par contre, si S est négatif, alors la goutte ne s'étale pas et elle forme un angle de contact θ_e avec le substrat. La ligne à l'interface des trois phases liquide, solide et gazeuse est appelée « ligne de contact » ou « ligne triple ».

1.3.3 Angle de contact d'équilibre : loi de YOUNG-DUPRÉ

Équilibrons les forces capillaires par unité de longueur, agissant sur la ligne triple, c'est-à-dire les tensions interfaciales entre les trois phases liquide, solide et gazeuse (cf. Figure I-4b). La projection sur le plan du solide conduit à la loi obtenue en 1805 par YOUNG⁴ :

$$\gamma \cos \theta_e = \gamma_{SG} - \gamma_{SL} \quad (I.8)$$

Notons ici que la projection des forces capillaires sur la verticale est équilibrée par une déformation élastique du solide. Si le solide est dur, cette déformation est inobservable. Par contre, si le solide est mou ou s'il s'agit d'un deuxième liquide non-miscible (eau et huile par exemple), cette déformation de l'interface devient très visible.

Enfin, le paramètre d'étalement S vu à l'équation (I.7) peut alors se réécrire :

$$S = \gamma (\cos \theta_e - 1) \quad (I.9)$$

⁴ Il s'agit du même YOUNG dont les fentes portent le nom en optique.

Ainsi l'angle de contact θ_e ne peut être défini que si S est négatif, en accord avec ce que nous avons vu à la section I.3.2. En réécrivant l'équation (I.8), on voit que l'angle de contact ne dépend que des différentes tensions interfaciales entre liquide, gaz et solide :

$$\cos\theta_e = \frac{\gamma_{SG} - \gamma_{SL}}{\gamma} \quad (I.10)$$

Dans la pratique, les tensions interfaciales γ_{SG} et γ_{SL} ne sont pas mesurables (γ est mesurable par des méthodes d'arrachement, voir Annexe A). Les valeurs reportées dans les tables de $\gamma_{SG} - \gamma_{SL}$ sont souvent obtenues en substituant des mesures de γ et θ_e dans l'équation (I.10).

1.3.4 Une loi insuffisante dans la réalité - Hystérésis du mouillage

Bien que deux cents ans soient déjà passés depuis l'énoncé des lois de YOUNG et de LAPLACE, elles posent toujours un problème. Si, comme le propose la loi de YOUNG, on suppose l'existence d'un angle de contact d'équilibre unique, une goutte posée sur un solide partiellement mouillant est soumise à une force sur la ligne de contact, égale à $\gamma \cos\theta_e$, et dont la résultante est nulle dans le plan du substrat (cf. Figure I-6a). Entraînée par la gravité, une telle goutte ne pourrait donc pas rester statique sur une plaque inclinée, même pour de très faibles inclinaisons. Pourtant, tout le monde a déjà pu voir des gouttes d'eau qui restent accrochées sur une vitre, même verticale. En réalité, il n'y a pas un unique angle de contact d'équilibre θ_e , mais toute une gamme d'angles de contact statiques (voir Figure I-6b).

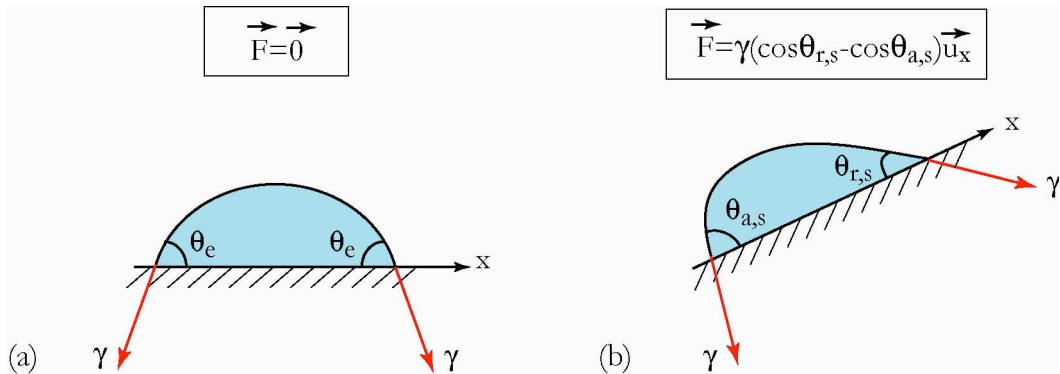


Figure I-6 : (a) Goutte parfaitement symétrique de révolution, avec un angle de contact d'équilibre unique, θ_e . (b) Cas réel d'une goutte restant accrochée sur une paroi inclinée. La symétrie de la goutte est brisée, et qui entraîne une résultante des forces capillaires non nulle et résistive.

Lorsqu'on incline le substrat sur lequel repose une goutte, celle-ci arrive à rester statique en se dissymétrisant et en prenant un angle de contact supérieur à θ_e à l'avant, et inférieur à θ_e à l'arrière (cf. Figure I-6b). L'angle de contact statique observé dépend de la façon dont le système a été préparé. L'angle d'équilibre θ_e est donc multivalué et peut prendre des valeurs comprises entre l'angle statique d'avancée $\theta_{a,s}$ et de reculée $\theta_{r,s}$. Il en résulte une force

d'accrochage par unité de longueur, qui s'oppose au déplacement de la goutte et dont la valeur peut atteindre au maximum : $\gamma(\cos\theta_{r,s}-\cos\theta_{a,s})$. La différence $\theta_{a,s}-\theta_{r,s}$ entre les angles statiques d'avancée et de reculée porte le nom d'*hystérésis de mouillage*. Son origine se trouve dans les imperfections du substrat : rugosité de la surface ou défauts chimiques du solide entraînant une différence locale de mouillabilité [JOANNY & DE GENNES (1984), DE GENNES (1985)].

1.4 Angle de contact dynamique - Modélisation

Voyons maintenant le cas de lignes de contact en mouvement. Celles-ci jouent un rôle important, et même parfois dominant, dans bien des cas : écoulements de gouttes ou de filets sur une surface, techniques d'enduisage [KISTLER & SCHWEITZER (1997)], formation de zones sèches [RIO & LIMAT (2006)], ...

Le problème central du mouillage dynamique est que la vitesse d'un liquide qui avance est non-nulle, alors que les conditions aux limites usuelles de non-glissement à la paroi solide imposent la nullité de la vitesse au niveau du substrat. La vitesse U d'avancée du liquide doit alors être encaissée sur des distances de plus en plus petites au fur et à mesure qu'on s'approche de la ligne de contact, c'est-à-dire que les gradients de vitesse divergent au niveau de la ligne de contact (voir profils de vitesse illustrés sur la Figure I-7). Par conséquent, les contraintes visqueuses σ divergent elles aussi :

$$\sigma = \eta \frac{\partial U}{\partial z} \propto \eta \frac{U}{h} \xrightarrow{h \rightarrow 0} \infty \quad (I.11)$$

(où η est la viscosité dynamique), ainsi que les forces visqueuses intégrées ou encore la dissipation d'énergie. Les lignes de contact arrivent donc à avancer ou à reculer alors que cela devrait leur coûter une énergie infinie.

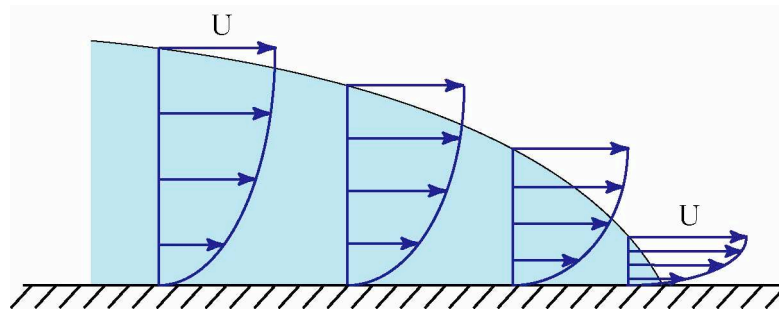


Figure I-7 : Champ de vitesse d'un liquide qui avance vers la droite sur un substrat. Illustration de la divergence des contraintes visqueuses à la ligne triple.

Heureusement, les divergences sont régularisées à des échelles microscopiques. Au niveau de la modélisation, l'écrantage des forces visqueuses à l'échelle microscopique peut être introduit par une longueur de glissement, représentant la distance au solide en deçà de laquelle la vitesse du fluide s'annule [DE GENNES (1979), COX (1986)]. Pour des liquides usuels, la longueur de glissement est en général de l'ordre du micron ou de fractions de micromètres, dépendant principalement de la force des interactions liquide/solide et de la rugosité du subs-

trat. On peut également rendre compte de cet écrantage par l'intermédiaire des forces de VAN DER WAALS [DE GENNES *et al* (1990)] et en regroupant les interactions fluide/solide dans une pression dite de disjonction [DE GENNES (1985)], ou bien par des modèles de sauts moléculaires [BLAKE & RUSCHAK (1997), RUIJTERS *et al* (1999)], ou d'interface diffuse [POMEAU (2000)]. Pour autant, la condition de non-glissement à la paroi reste tout à fait pertinente pour décrire les écoulements à une échelle macroscopique, et a été largement vérifiée.

La divergence des gradients de vitesse induit également la divergence de la courbure de la surface libre [HUH & SCRIVEN 1971], le gradient de pression capillaire étant le seul terme disponible à faible distance de la ligne de contact. Par conséquent, les angles de contact, dont la connaissance est nécessaire en tant que condition aux limites pour la résolution mathématique de problèmes hydrodynamiques, dépendent de l'échelle à laquelle nous les regardons. Les angles qui nous intéresseront ici seront alors des angles de contact apparents, déterminés à une échelle macroscopique donnée et donnant ainsi une condition aux limites macroscopique. Une étude de l'influence de l'échelle de mesure sur les angles de contact dynamiques a été récemment effectuée par RIO (2005).

1.4.1 Généralités sur la modélisation du mouillage dynamique

ABLETT est le premier à s'être rendu compte que l'angle de contact change lorsque le liquide est en mouvement et à en avoir mesuré les variations [ABLETT (1923)]. La condition aux limites à l'interface est donc modifiée dans le cas dynamique par rapport au cas statique. Plus une ligne de contact avance vite (par exemple par inclinaison croissante du substrat), plus l'angle de contact dynamique θ est grand [DUSSAN (1979)]. Réciproquement, plus la ligne de contact recule rapidement, plus l'angle de contact de recul θ diminue.

Les variations de l'angle de contact avec la vitesse de la ligne triple sont généralement prédites en invoquant deux mécanismes possibles. COX (1986) et VOÏNOV (1976), et également DE GENNES (1986) et (1990) ou EGGERS (2004-a), privilégient une approche hydrodynamique, dans laquelle la dissipation visqueuse est dominante. Une autre approche privilégie la dissipation « microscopique » à la ligne de contact, via un processus de déplacements moléculaire et d'adsorption/désorption [BLAKE & RUSCHAK (1997)] ou via l'introduction d'une interface diffuse [POMEAU (2000)]. Certains modèles essayent de combiner les deux approches, en un modèle moléculaire-hydrodynamique [PETROV & PETROV (1992)]⁵. Aujourd'hui, le sujet reste toujours controversé et nous disposons actuellement d'un vaste panel de modèles différents, mais tous censés décrire la même chose. Nous allons détailler les principaux modèles dans ce qui suit.

Malgré leurs différences d'approches, tous les modèles prédisent que l'angle de contact dynamique θ peut être décrit par un polynôme P linéaire en vitesse de la ligne de contact. Au déplacement de la ligne triple, il y a compétition entre la tension superficielle et la viscosité (la

⁵ Ce combiné moléculaire-hydrodynamique réalisé par PETROV & PETROV (1992) reprend l'approche hydrodynamique de COX mais en autorisant cette fois une dépendance de l'angle de contact d'équilibre avec la vitesse, dépendance obtenue grâce à la théorie moléculaire-cinétique. La solution finale comporte alors un grand nombre de paramètres ajustables.

gravité peut être négligée, vu les petites échelles auxquelles nous nous plaçons). Au lieu d'exprimer les variations de l'angle de contact en fonction de la vitesse U de la ligne, on peut l'exprimer en fonction du nombre capillaire Ca , c'est-à-dire de la vitesse U réduite par la vitesse capillaire, γ/η :

$$\overline{Ca} = \frac{\eta \overline{U}}{\gamma} \quad (I.12)$$

où η représente la viscosité dynamique du liquide, γ la tension superficielle et où les barres sur les grandeurs signifient qu'elle sont comptées algébriquement. Lorsque le nombre capillaire est positif, la ligne de contact avance et lorsqu'il est négatif, la ligne recule. Dans toute la suite du manuscrit, nous parlerons de vitesse de la ligne de contact pour désigner aussi bien la vitesse U que la vitesse réduite Ca . Ainsi, les modèles de mouillage dynamique prédisent tous une linéarité d'un polynôme P en angle de contact avec le nombre capillaire :

$$P(\theta, \theta_s) = \overline{Ca} \quad (I.13)$$

où θ_s représente l'angle de contact statique. On note θ_a l'angle de contact dynamique θ lorsque la ligne de contact avance ($\overline{Ca} = Ca$), et θ_r lorsqu'elle recule ($\overline{Ca} = -Ca$).

Notons enfin que tous ces modèles ont été développés en supposant les surfaces solides parfaites (non-rugueuses et chimiquement homogènes), c'est-à-dire non hystérétiques. Nous verrons à la section I.4.4 comment l'hystérésis de mouillage, inévitable dans le cas des solides réels, peut être pris en compte.

1.4.2 L'approche hydrodynamique

Dans l'approche hydrodynamique, la dissipation est entièrement attribuée à l'écoulement. On se place dans le cadre de l'approximation de lubrification (limite des faibles pentes du liquide par rapport au substrat). Considérons la vitesse v_x , selon l'axe x , perpendiculaire à la ligne de contact. Il s'agit de la vitesse pertinente, soit parce que la géométrie impose la nullité de la composante parallèle pour des lignes de contact droites, soit parce que nous nous placerons très près de la ligne de contact pour des lignes courbées, et que la vitesse y est automatiquement perpendiculaire à la ligne de contact [RIO *et al* (2005)]. La vitesse orthogonale à la ligne de contact peut alors s'écrire $v_x(z)$ où z est une coordonnée selon l'axe perpendiculaire au substrat (voir définition des axes sur la Figure I-8). Le champ de vitesse dans le liquide est alors approximativement un demi poiseuille :

$$v_x = \frac{3U}{2h^2} z(2h - z) \quad (I.14)$$

où U est la valeur moyenne de v_x : $U = \frac{1}{h} \int_0^h v_x(z) dz$.

Pour s'affranchir de la singularité à la ligne de contact, le problème est traité en introduisant une longueur de coupure microscopique a , de dimensions moléculaires. Pour VOÏNOV (1976), il s'agit de la distance en dessous de laquelle la description hydrodynamique n'a plus de sens. COX (1986) procède selon une démarche similaire, mais en introduisant plutôt une lon-

gueur de glissement L_s (pour « slip length »), également moléculaire, et donc petite devant la longueur caractéristique de l'écoulement qui elle est macroscopique. L_s devrait dépendre des caractéristiques de surface du solide et des interactions liquide/solide. Mais EGGERS a montré que la physique macroscopique ne dépendait que faiblement de la manière dont le glissement était pris en compte, ce qui fait que nous pouvons simplement tronquer les intégrations à une longueur microscopique a [EGGERS (2004-b)] sans trop nous préoccuper de l'origine du découpage. Au niveau macroscopique, on note b la distance à laquelle se fait la coupure. Au final, on voit apparaître un terme logarithmique $\ln(b/a)$ qui contient à lui seul tout l'effet de la divergence et qui est généralement de l'ordre de 10 [DE GENNES (1985)].

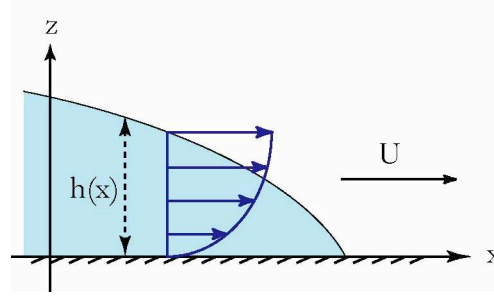


Figure I-8: Orientation des axes pour une goutte s'écoulant sur un substrat.

1.4.2.1 Théorie de COX-VOÏNOV « revisitée »

Il s'agit de résoudre les équations de STOKES (composantes des termes convectif non linéaire $\rho(\vec{v} \cdot \vec{\nabla})\vec{v}$ et locaux $\rho(\partial\vec{v}/\partial t)$ négligeables devant celles des forces de frottement visqueux $\eta\Delta\vec{v}$) :

$$-\vec{\nabla}p + \eta\Delta\vec{v} = \vec{0} \quad (\text{I.15})$$

où p désigne la pression et v la vitesse du liquide. Aux échelles où nous nous plaçons (inférieures à la longueur capillaire), la gravité est négligée. La pression s'exprime alors uniquement par le terme de courbure :

$$p = \gamma\kappa = -\gamma \partial^2 h / \partial x^2 \quad (\text{I.16})$$

où h représente la hauteur de l'interface (voir Figure I-9a). Compte tenu de la vitesse du liquide en demi poiseuille, décrite à l'équation (I.14), la dissipation visqueuse $\eta \partial^2 v_x(z) / \partial z^2$ donne un terme $-3\eta U / h^2$. Il reste alors à résoudre l'équation suivante :

$$\frac{\partial^3 h}{\partial x^3} = 3 \frac{Ca}{h^2} \quad (\text{I.17})$$

L'intégration de cette équation n'étant pas triviale, l'interface est considérée comme faiblement courbée jusqu'à des échelles microscopiques et la pente lentement variable. L'angle de contact à l'échelle microscopique a est pris comme étant l'angle de YOUNG θ_s en régime statique. On parvient alors à une relation liant l'angle de contact dynamique θ (à l'échelle macroscopique b)

et le nombre capillaire. Tant que les angles de contact restent inférieurs à $3\pi/4$, c'est-à-dire inférieurs à 135° , la relation peut se mettre sous la forme [VOÏNOV (1976)] :

$$\theta^3 - \theta_s^3 = 9\overline{Ca} \ln\left(\frac{b}{a}\right) \quad (I.18)$$

Des valeurs typiques des longueurs de coupure, $a \sim 10^{-9}$ m (quelques tailles de molécules) et $b \sim 10^{-3}$ m ($\sim 1\mu$), donnent un ordre de grandeur du terme logarithmique $\ln(b/a) \sim 10$.

Comme nous travaillerons toujours avec des angles de contacts inférieurs à $3\pi/4$, la solution pour des angles de contact supérieurs [COX (1986), SNOEIJER (2006)], qui est beaucoup plus complexe, ne nous intéressera pas.

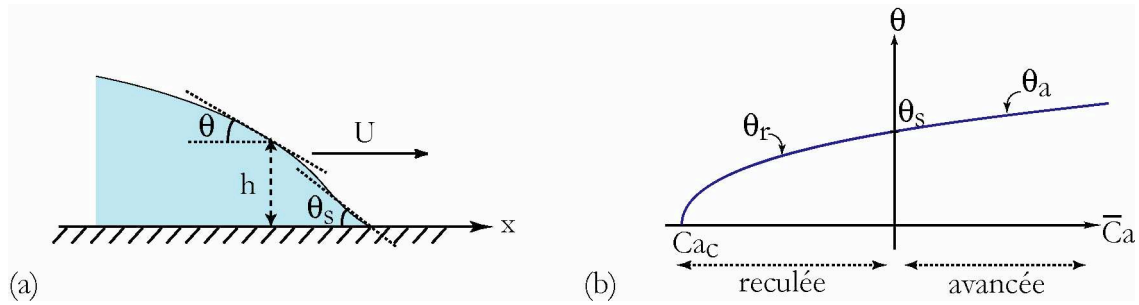


Figure I-9 : (a) Interface courbée avançant à la vitesse U sur un substrat. La hauteur du liquide est notée h et dépend de la position x le long du substrat. (b) Angle de contact dynamique en fonction du nombre capillaire, selon le modèle hydrodynamique de COX & VOÏNOV.

Il est intéressant de remarquer que la loi de COX & VOÏNOV prévoit l'annulation de l'angle de contact de reculée pour une valeur finie du nombre capillaire (voir Figure I-9b) :

$$\theta_r = \theta_c = 0 \Leftrightarrow Ca = Ca_c = \frac{\theta_s^3}{9\ln(b/a)} \quad (I.19)$$

Il y aurait alors une transition de mouillage à angle critique de reculée nul, où le liquide passerait d'un état partiellement mouillant à un état totalement mouillant pour des vitesses de recul de la ligne triple suffisamment grandes. La Figure I-9b fait apparaître le nombre capillaire maximal Ca_c que peut atteindre une ligne de contact lorsqu'elle recule, typiquement de l'ordre de $5 \cdot 10^{-3}$ (pour un angle de contact $\theta_s = \pi/4$ et $\ln(b/a) = 10$). Cette valeur indique la vitesse maximale de démouillage : si la ligne recule plus rapidement que cette vitesse critique, elle n'arrive plus à démouiller le solide et dépose un film liquide sur le substrat.

1.4.2.2 Le modèle de DE GENNES

DE GENNES traite la question du mouillage dynamique d'un point de vue énergétique [DE GENNES (1986), DE GENNES *et al* (1990)]. Il équilibre la dissipation visqueuse dans le volume avec le travail des forces capillaires $\gamma(\cos\theta - \cos\theta_s)$ où θ désigne l'angle de contact dynamique, et θ_s l'angle de contact statique. L'interface liquide/gaz est supposée localement

plane, c'est-à-dire que le liquide forme un dièdre qui avance sur le substrat (voir Figure I-10a). Le travail élémentaire des forces capillaires pendant une durée dt s'exprime comme :

$$dW_\gamma = F_\gamma U dt = \gamma(\cos\theta - \cos\theta_s) U dt \quad (I.20)$$

Celui de la dissipation des forces visqueuse $3\eta U/h$ donne :

$$dW_\eta = \int \frac{3U^2}{h} \eta dt dx \quad (I.21)$$

L'intégration de ce dernier terme en $1/h$ fait apparaître une divergence qu'il faut donc tronquer à une échelle microscopique a et à une échelle macroscopique b , délimitant une zone dans laquelle les forces capillaires et de friction sont dominantes. On obtient finalement le travail des forces visqueuses :

$$dW_\eta = \eta \frac{3U^2}{\tan\theta} \ln\left(\frac{b}{a}\right) dt \quad (I.22)$$

L'effet de la divergence est entièrement contenu dans le logarithme. L'équilibre de ces deux travaux conduit au modèle de DE GENNES pour l'angle de contact dynamique, pour $(\theta_s, \theta) \ll 1$:

$$\theta(\theta^2 - \theta_s^2) = 6\overline{Ca} \ln\left(\frac{b}{a}\right) \quad (I.23)$$

On retrouve bien un polynôme en angle de contact dynamique θ , proportionnel au nombre capillaire. De plus, on peut remarquer que le polynôme est de degré 3, comme dans le modèle de COX et VOÏNOV.

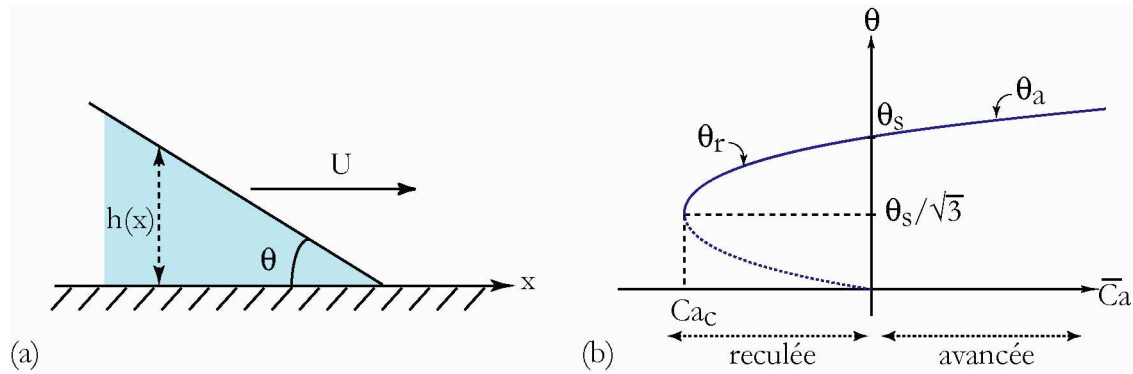


Figure I-10 : (a) Dièdre avançant sur un substrat. (b) Évolution de l'angle de contact dynamique en fonction du nombre capillaire d'après le modèle de DE GENNES. La branche de la courbe en pointillés n'est pas atteinte en pratique.

La principale différence avec le modèle de COX et VOÏNOV porte sur l'angle critique à la transition de mouillage. Le modèle de COX-VOÏNOV prévoit une transition de mouillage pour un angle de contact de reculée nul (transition du deuxième ordre) alors qu'au contraire, le modèle de DE GENNES pronostique une transition du premier ordre avec un angle critique non-nul

(voir Figure I-10b). D'après l'équation (I.23), l'angle dynamique de reculée ne peut pas être inférieur à la valeur critique non-nulle :

$$\theta_c = \frac{\theta_s}{\sqrt{3}} \quad (\text{I.24})$$

1.4.3 Dissipation à la ligne de contact

1.4.3.1 Le modèle moléculaire-cinétique

La théorie moléculaire-cinétique propose un mécanisme non-hydrodynamique pour l'évolution de l'angle de contact dynamique en fonction de la vitesse de la ligne triple [BLAKE & HAYNES (1969), BLAKE (1993)], mécanisme très différent de celui vu pour les modèles précédents. L'approche est ici basée sur le traitement statistique du processus de transport : le mouvement de la ligne de contact est considéré comme provenant de déplacements moléculaires individuels qui modifient l'équilibre d'absorption de la ligne de contact. L'énergie est en fait supposée ne se dissiper qu'à la ligne de contact (par absorption et désorption) et non plus dans le volume par l'intermédiaire de la viscosité, comme dans les approches hydrodynamiques.

Le modèle s'appuie sur la théorie moléculaire-cinétique des liquides. Il suppose que toutes les molécules sont de même taille et se déplacent de site en site grâce à l'énergie d'activation thermique $k_B T$ (où k_B désigne la constante de Boltzmann et T la température absolue du milieu). La barrière d'énergie à franchir est une énergie libre d'activation notée ΔG_0 . À l'équilibre, la fréquence f_0 de sauts d'un site à l'autre est donnée par la statistique de MAXWELL-BOLTZMANN [GUYON *et al* (2001), RUIJTERS *et al* (1999)]:

$$f_0 = \frac{k_B T}{h} e^{\left(-\frac{\Delta G_0}{k_B T}\right)} \quad (\text{I.25})$$

où h est la constante de Planck. Les forces de tension de surface non compensées agissant sur la ligne de contact sont considérées comme motrices du déplacement de la ligne et leur travail par unité de surface se met sous la forme : $w = \gamma(\cos\theta_s - \cos\theta)$. Elles entraînent une dissymétrie des fréquences de déplacements parallèles au solide, f_+ et f_- , qui s'expriment alors comme :

$$f_+ = f_0 e^{\left(\frac{w}{nk_B T}\right)} \text{ et } f_- = f_0 e^{\left(-\frac{w}{nk_B T}\right)} \quad (\text{I.26})$$

où n désigne le nombre de sites par unité de surface. La vitesse U de déplacement de la ligne triple dépend alors de ces deux fréquences et de la longueur des sauts des molécules λ (qui est de l'ordre de $1/\sqrt{n}$) :

$$U = \lambda(f_+ - f_-) = 2\lambda f_0 \text{sh}\left(\frac{w}{nk_B T}\right) \quad (\text{I.27})$$

Il reste ensuite utiliser la modélisation microscopique de la viscosité pour la faire apparaître dans l'équation et ainsi reformer le nombre capillaire [GUYON *et al* (2001)]. En linéarisant le

sinus hyperbolique, on aboutit à une équation pour l'évolution de l'angle de contact dynamique en fonction du nombre capillaire [BLAKE & RUSCHAK (1997)] :

$$\theta^2 - \theta_s^2 = \left(\frac{Q n k_B T}{f_0 \lambda h} \right) \overline{Ca} \quad (I.28)$$

où Q désigne le flux volumique moléculaire.

Tout comme le modèle de COX & VOÏNOV, le modèle moléculaire-cinétique prévoit que l'angle de contact peut s'annuler à la transition de mouillage dynamique. Celle-ci devrait donc être du deuxième ordre. En fait, seul le modèle élaboré par DE GENNES prévoit une transition de mouillage du premier ordre. Il est à noter tout de même que selon EGGERS (2004-a), même si la transition, vue de « loin », est effectivement du second ordre, il se pourrait que les choses soient différentes à petite échelle, et que la transition y soit du premier ordre.

1.4.3.2 Approximation linéaire de la loi de mobilité

POMEAU a proposé une linéarisation de son modèle d'interface diffuse dans lequel la ligne triple avance par un mécanisme d'évaporation et de condensation [POMEAU (2000), (2002)]. Il propose alors un modèle simplifié, linéaire :

$$\theta - \theta_s \propto \overline{Ca} \quad (I.29)$$

Ce même type de relation fut déjà proposé de longue date par DUSSAN [DUSSAN (1979), DUSSAN & CHOW (1983)], avant de tomber quelque peu dans l'oubli vu les courbures importantes trouvées dans la plupart des données expérimentales de $\theta(Ca)$ [BLAKE & RUSCHAK (1997)].

Les modèles de mouillage dynamique précédemment cités se mettent bien tous sous la forme d'un polynôme linéaire en nombre capillaire. Ces polynômes peuvent évidemment être linéarisés pour de faibles valeurs du nombre capillaire, permettant parfois des simplifications intéressantes pour des calculs de mouillage ou démouillage [BEN AMAR *et al* (2001), (2003)].

1.4.4 Intégration de l'hystérésis dans les modèles de mouillage dynamique

Il est admis que la rugosité et les hétérogénéités chimiques du substrat sont responsables du saut de valeurs de l'angle de contact dans la limite statique (hystérésis de l'angle de contact) [JOANNY & DE GENNES (1984), GOLESTANIAN & RAPHAËL (2003)]. Toutefois, les effets de l'hystérésis sur le déplacement d'une ligne de contact sont encore mal connus. Faute de description de ce phénomène, les modèles proposés pour le mouillage dynamique négligent tous l'hystérésis. Cela complique leur comparaison avec les expériences car le saut dans l'angle de contact, entre une ligne triple qui avance ou qui recule, n'est pas reproduit dans ces modèles alors qu'il est toujours présent dans les expériences.

Si l'on dépose une goutte immobile sur un substrat non-mouillant, ses angles de contact peuvent prendre différentes valeurs comprises entre l'angle statique d'avancée $\theta_{a,s}$ et de reculée $\theta_{r,s}$. Lorsque le substrat est incliné de façon à placer la goutte à la limite de son déplacement, ses

angles de contacts seront égaux à $\theta_{a,s}$ à l'avant et à $\theta_{r,s}$ à l'arrière. Si le substrat est incliné davantage, la goutte se met en mouvement, son angle d'avancée devient supérieur à $\theta_{a,s}$ et l'angle de reculée inférieur à $\theta_{r,s}$. Une simplification souvent effectuée pour intégrer l'hystérésis de mouillage dans les modèles d'angle de contact dynamique consiste à supposer que son effet revient à remplacer l'angle de contact statique θ_s par ses valeurs extrémales ($\theta_{a,s}$ dans le cas d'une ligne qui avance et $\theta_{r,s}$ pour une ligne qui recule). Les modèles se mettent alors tous sous la forme suivante :

$$P(\theta, \theta_s) = k \overline{Ca} \xrightarrow{\text{hystérésis}} \begin{cases} P(\theta_a, \theta_{a,s}) = +k Ca \text{ pour l'avancée} \\ P(\theta_r, \theta_{r,s}) = -k Ca \text{ pour la reculée} \end{cases} \quad (I.30)$$

ce qui permet de mieux correspondre aux courbes expérimentales. Cette hypothèse n'a toutefois jamais été prouvée, mais semble intuitivement raisonnable, du moins dans les situations de faible hystérésis.

En prenant en compte l'hystérésis de mouillage de cette façon, les modèles hydrodynamiques de COX & VOÏNOV et DE GENNES prévoiraient alors les courbes tracées sur la Figure I-11.

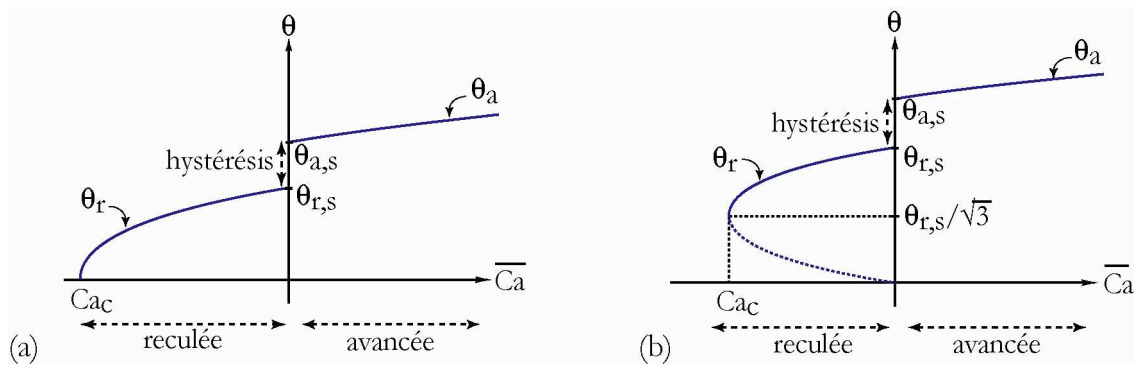


Figure I-11 : Modèles pour les angles de contact dynamiques avec inclusion de l'hystérésis de mouillage, supposé induire un simple décalage des lois de mobilité. (a) Loi de COX & VOÏNOV. (b) Loi de DE GENNES.

1.5 Conclusion

Les principales notions théoriques ayant trait à la capillarité, importantes pour la compréhension des phénomènes de ruissellement de liquides sur une surface solide, ont maintenant été posées. Nous allons donc pouvoir nous plonger enfin dans le cœur du manuscrit et nous intéresser à la morphogenèse des gouttes et des méandres qui ruissent sur un plan. Nous verrons à ce propos l'effet de l'introduction de surfactant sur le méandrage d'un filet liquide, ou encore le rôle crucial de l'hystérésis de mouillage sur la forme des méandres, intervenant à travers les forces d'accrochage sur le substrat. Mais tout de suite, intéressons nous au ruissellement de « simples » gouttes sur un plan incliné et à leur forme. Enfin, « simples » gouttes, ... pas si simples que ça...

Bibliographie du Chapitre I

- ABLETT R., 1923, An investigation of the angle of contact between paraffin wax and water, *Phil. Mag.*, **46**, p. 244-256
- BEN AMAR M., CUMMINGS L. & POMEAU Y., 2001, Singular points on a receding contact line, *C. R. Acad. Sci.*, **329 (IIb)**, p. 277-282
- BEN AMAR M., CUMMINGS L. & POMEAU Y., 2003, Transition of a moving contact line from smooth to angular, *Phys. Fluids*, **15**, p. 2949-2960
- BLAKE T.D., 1993, Dynamic contact angles and wetting kinetics, *Wettability*, Ed. J.C. Berg (Marcel Dekker, New York), p. 251-309
- BLAKE T.D. & HAYNES J.M., 1969, Kinetics of liquid/liquid displacement, *J. Coll. Int. Sci.*, **30**, p. 421-423
- BLAKE T.D. & RUSCHAK K.J., 1997, Wetting : static and dynamic contact lines, *Liquid Film Coating - Scientific Principles and their Applications*, Éd. Kistler S.F. & Schweitzer P.M., Chapman & Hall, p. 63-97
- COX R.G., 1986, The dynamics of the spreading of liquids on a solid surface. Part 1 : Viscous flows, *J. Fluid Mech.*, **168**, p. 169-194
- DE GENNES P.-G., 1979, Ecoulements viscométriques de polymères enchevêtrés, *C. R. Acad. Sci.*, **288 (IIb)**, p. 219
- DE GENNES P.-G., 1985, Wetting : statics and dynamics, *Reviews of Modern Physics*, **57 (3)**, p. 827-862
- DE GENNES P.-G., 1986, Deposition of Langmuir-Blodgett layers, *Colloid Polymer Sci.*, **264**, p. 463-465
- DE GENNES P.-G., HUA X. & LEVINSON P., 1990, Dynamics of wetting : local contact angles, *J. Fluid Mech.*, **212**, p. 55-63
- DE GENNES P.-G., BROCHART-WYART F., QUÉRÉ D., 2002, Gouttes, bulles, perles et ondes, *Éd. Belin*, Collection Échelles, 256 pages
- DURAND M., MARTINOTY G. & LANGEVIN D., 1999, Liquid flow through aqueous foams : from the Plateau border-dominated regime to the node-dominated regime, *Phys. Rev. E*, **60 (6)**, p. R6307-6308
- DURAND M. & LANGEVIN D., 2002, Physicochemical approach to the theory of foam drainage, *Eur. Phys. J. E.*, **7**, p. 35-44
- DUSSAN V. E.B., 1979, On the spreading of liquids on solid surfaces : Static and dynamic contact lines, *Ann. Rev. Fluid Mech.*, **11**, p. 371-400

- DUSSAN V. E.B. & CHOW R. T.-P., 1983, On the ability of drops or bubbles to stick to non-horizontal surfaces of solids, *J. Fluid Mech.*, **137**, p. 1-29
- EGGERS J., 2004-a, Hydrodynamic theory of forced dewetting, *Phys. Rev. Lett.*, **93**, p. 094502
- EGGERS J., 2004-b, Towards a description of contact line motion at higher capillary numbers, *Phys. Fluids*, **16**, p. 3491-3494
- GOLESTANIAN R. & RAPHAËL E., 2003, Roughening transition in a moving contact line, *Phys. Rev. E*, **67**, p. 031603-1-14
- GUYON E., HULIN J.-P., PETIT L., 2001, Hydrodynamique physique, Nouvelle édition revue et augmentée, Éd. CNRS, EDP Sciences, Collection Savoirs actuels, Paris, 676 pages
- HUH C. & SCRIVEN L.E., 1971, Hydrodynamic model of steady movement of a solid/liquid/fluid contact line, *J. Coll. Int. Sc.*, **35 (1)**, p. 85-101
- JOANNY J.F. & DE GENNES P.-G., 1984, A model for contact angle hysteresis, *J. Chem. Phys.*, **81 (1)**, p. 552-562
- KISTLER S.F. & SCHWEITZER P.M., 1997, Liquid film coating – Scientific principles and their technological implications, *Ed. Chapman & Hall*, 783 pages
- KOEHLER S.A., HILGENFELDT S., STONE H.A., 1999, Liquid flow through aqueous foams : The node-dominated foam drainage equation, *Phys. Rev. Lett.*, **82 (21)**, p. 4232-4235
- KOEHLER S.A., HILGENFELDT S. & STONE H.A., 2000, A generalized view of foam drainage : Experiment and theory, *Langmuir*, **16**, p. 6327-6341
- KOEHLER S.A., HILGENFELDT S., WEEKS E.R. & STONE H.A., 2002, Drainage of a single Plateau borders : Direct observation of rigid and mobile interfaces, Rapid communications, *Phys. Rev. E*, **66**, 040601(R), 4 pages
- MYSELS K., SHINODA K., FRANKEL S., 1959, Soap Films, Studies of their thinning, New York, Éd. Pergamon
- PATIST A., OH S.G., LEUNG R., SHAH D.O., 2001, Kinetics of micellization : its significance to technological processes, *Colloids and Surfaces A : Physicochem. Eng. Aspects*, **176**, p. 3-16
- PETROV P.G. & PETROV J.G., 1992, A combined molecular-hydrodynamic approach to wetting kinetics, *Langmuir*, **8**, p. 1762-1767
- PITOIS O., FRITZ C. & VIGNES-ADLER M., 2005, Liquid drainage through aqueous foam : study of the flow on the bubble scale, *J. Coll. Int. Sci.*, **282**, p. 458-465
- POMEAU Y., 2000, Représentation de la ligne de contact mobile dans les équations de la mécanique des fluides, *C. R. Acad. Sci., Mécanique des fluides*, **328 (IIb)**, p. 411-416
- POMEAU Y., 2002, Recent progress in the moving contact line problem : a review, *C. R. Mécanique*, **330**, p. 207-222
- POSKANZER A.M. & GOODRICH F.C., 1975, Surface viscosity of Sodium Dodecyl Sulfate solutions with and without added dodecanol, *J. Phys. Chem.*, **79 (20)**, p. 2122-2126

- RIO E., DAERR A., ANDREOTTI B. & LIMAT L., 2005, Boundary conditions in the vicinity of a dynamic contact line : experimental investigation of viscous drops sliding down an inclined plane, *Phys. Rev. Lett.*, **94**, p. 0245031-4
- RIO E. & LIMAT L., 2006, Wetting hysteresis of a dry patch left inside a flowing film, *Phys. Fluids*, **18**, p. 032102
- RUIJTERS M.J., BLAKE T.D. & DE CONINCK J., 1999, Dynamic wetting studied by molecular modeling simulations of drop spreading, *Langmuir*, **15**, p. 7836-7847
- SNOEIJER J.H., 2006, Free surface flows with large slopes : beyond lubrication theory, *Phys. Fluids*, **18**, p. 021701
- STONE H .A., KOEHLER S.A., HILGENFELDT S. & DURAND M., 2003, Perspectives on foam drainage and the influence of interfacial rheology, *J. Phys. : Condens. Matter*, **15**, p. S283-S290
- VOÏNOV O.V., 1976, Hydrodynamics of wetting, *Fluid Dyn.*, **11**, p. 714-721
- WEAIRE D., PITTET N., HUTZLER S., PARDAL D., 1993, Steady-state drainage of an aqueous foam, *Phys. Rev. Lett.*, **71 (16)**, p. 2670-2673

PREMIÈRE PARTIE

GOUTTES SUR UN PLAN INCLINÉ

Chapitre II. Singularités de gouttes glissant sur un plan incliné



LES lignes de contact font partie de notre vie de tous les jours et sont particulièrement présentes dans les procédés industriels, que ce soit pour l'impression « offset » ou l'enrobage de bonbons par du chocolat [KISTLER & SCHWEITZER (1997)]. Comme nous l'avons vu au Chapitre I, leur dynamique reste cependant controversée. Dans ce chapitre, nous allons concentrer notre étude sur un système bien défini et apparemment simple : l'écoulement de gouttes sur un substrat incliné en situation de mouillage partiel. Ces gouttes peuvent développer des singularités en pointe tout à fait surprenantes, que nous allons tenter de comprendre.

Certains résultats présentés ici ont été obtenus au cours de mon stage de D.E.A., effectué en 2002 dans ce même laboratoire. L'étude des gouttes menée dans ce chapitre a été l'occasion de collaborations fructueuses avec Emmanuelle RIO et Jacco SNOEIJER. Une grande partie des résultats présentés dans ce chapitre peuvent être retrouvés dans deux articles joints en Annexes F et G : LE GRAND *et al* (2005) et SNOEIJER *et al* (2005).

II.1 État de l'art

La plupart des études sur le sujet portent sur le seuil de mise en mouvement des gouttes [BIKERMAN (1950), FURMIDGE (1962), DUSSAN V. & CHOW (1983)] ou sur leur mouvement juste au-delà du seuil [DUSSAN V. (1985), KIM *et al* (2002)]. Curieusement, très peu d'études se sont intéressées au mouvement loin du seuil. PODGORSKI est le premier à avoir examiné le comportement de ces gouttes à grande vitesse [PODGORSKI (2000), PODGORSKI *et al* (2001)].

Durant son récent travail de thèse au laboratoire P.M.M.H. de l'E.S.P.C.I., PODGORSKI a effectué des expériences d'écoulement de gouttes d'huile silicone sur une plaque de verre recouverte de fluoropolymères. Il a montré qu'elles prenaient des formes inattendues pour des vitesses d'écoulement U suffisamment grandes. En effet, un coin se développe à l'arrière des gouttes lorsque celles-ci dépassent une vitesse critique U_c (voir Figure II-1a et b). La présence d'une telle singularité est très surprenante compte tenu des courbures importantes de la surface à la pointe, engendrant une pression capillaire considérable. Lorsque les gouttes dévalent la pente à vitesse encore plus importante, la courbure de la ligne de contact s'inverse sur les côtés des gouttes et elles se mettent à perler, c'est-à-dire qu'elles déposent de petites gouttes satellites sur le substrat derrière elles (voir Figure II-1c).

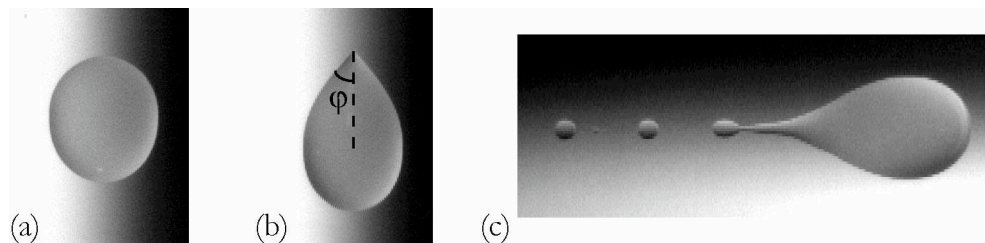


Figure II-1: Photographies de gouttes d'huile silicone ruisselant à vitesses croissantes sur le substrat fluoré FC725. Extraits de PODGORSKI (2000). L'écoulement se fait de haut en bas pour les deux premières images : (a) goutte ronde et (b) goutte en coin, et de gauche à droite pour la figure (c) Goutte perlante.

L'inclinaison de la ligne de contact pour former un coin rappelle un phénomène similaire observé par BLAKE & RUSCHAK (1979) lorsqu'une plaque est tirée hors d'un bain, en conditions de mouillage partiel. Pour de faibles vitesses de tirage, le liquide démouille parfaitement la plaque et il n'y a pas de dépôt de liquide sur la plaque. Au-delà d'une vitesse seuil, le liquide est entraîné par la plaque et prend une forme en coin qui peut perler si la vitesse de retrait est suffisante (voir Figure II-2). Cette « mise en coin » impose en fait une vitesse maximale de démouillage.

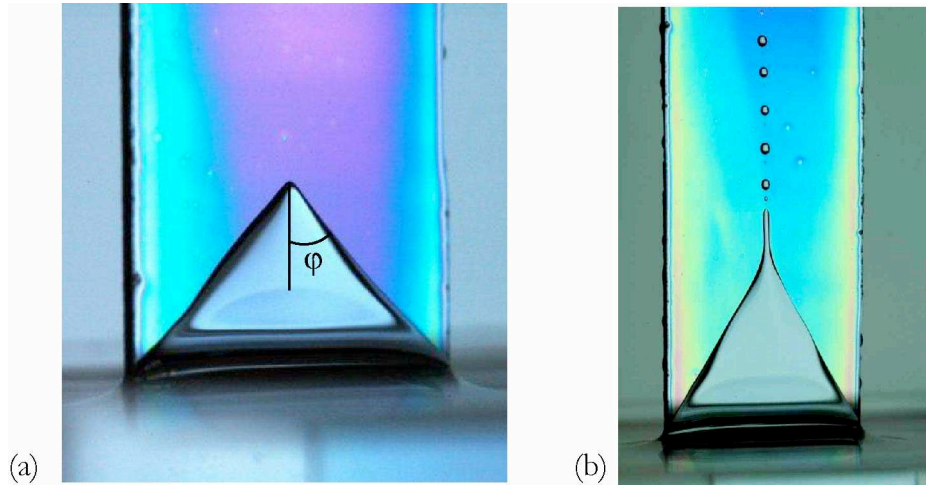


Figure II-2: Pastilles (wafer) de silicium enduites de FC725 et tirées hors d'un bain d'huile silicone 47V1000 ($\eta=1000$ cP). Vitesses de retrait des plaques : (a) $650 \mu\text{m/s}$ et (b) $700 \mu\text{m/s}$. Photographies prises par Giles DELON [DELON (2006)].

Lorsque la vitesse de la ligne de contact augmente, l'angle dynamique de reculée diminue. Une transition, dite de mouillage dynamique, devrait se produire au moment où l'angle de contact de reculée atteint la valeur nulle, hypothèse formulée pour la première fois par DERJAGUIN & LEVI (1964). La ligne de contact devrait alors laisser un film de LANDAU-LEVICH derrière elle. L'interprétation de BLAKE et RUSCHAK (1979), reprise par PODGORSKI *et al* (2001) pour les gouttes, est que cette transition peut être retardée par l'apparition du coin. Pour minimiser les variations d'énergie de surface, leurs lignes de contact s'inclinent d'un angle ϕ par rapport à la direction du mouvement, ce qui leur permet d'avancer à la vitesse $U \sin \phi$. Ainsi, la ligne triple peut avancer à la vitesse critique U_c alors que l'ensemble de la goutte se déplace à une vitesse U supérieure à U_c , les deux vitesses satisfaisant une relation de type cône de Mach :

$$U_c = U \sin \phi \quad (\text{II.1})$$

PODGORSKI *et al* (2001) ont proposé une relation plus précise pour la sélection de l'angle d'ouverture du coin en fonction du nombre capillaire, en reprenant la loi de COX et VOÏNOV pour une ligne qui recule :

$$\theta_r^3 - \theta_{r,s}^3 = -9 \ln \frac{b}{a} Ca \quad (\text{II.2})$$

où θ_r et θ_s sont respectivement les angles de contact dynamique et statique de reculée, b et a sont les échelles de coupure macroscopique et microscopique, et Ca représente le nombre capillaire. En supposant l'angle de reculée θ_r nul et comme d'autre part les lignes de contact sont inclinées et ont donc une vitesse $Ca \sin \phi$, on obtient la relation suivante :

$$\sin \phi = \frac{\theta_{r,s}^3}{9 \ln(b/a) Ca} \propto \frac{1}{Ca} \quad (\text{II.3})$$

La proportionnalité de l'angle d'ouverture du coin avec l'inverse du nombre capillaire a bien été vérifiée expérimentalement par PODGORSKI *et al* (2001).

Les transitions observées pour les gouttes glissant sur un plan incliné (forme et nombres capillaires critiques aux transitions) ne sont cependant pas comprises en détail du point de vue théorique. BEN AMAR *et al* (2001) et (2003) se sont intéressés à la transition goutte ronde à goutte en coin, en considérant que la forme globale des gouttes est donnée par un équilibre entre gravité et capillarité. Ils supposent que la pointe de la goutte prend une forme de point selle, ce qui permet d'imposer un angle de contact nul à la pointe et de limiter la divergence de la pression capillaire. On trouve, une autre modélisation de la pointe par STONE *et al*, qui pensent que le coin est plutôt un cône à structure auto-similaire, ce qui augmente la divergence de la pression [STONE *et al* (2001), LIMAT & STONE (2004)]. Dans sa thèse effectuée au laboratoire P.M.M.H., Emmanuelle RIO a d'ailleurs récemment étudié cette autosimilarité de l'écoulement dans le coin des gouttes [RIO (2005)].

Dans cette étude, nous avons repris la suite des travaux de PODGORSKI en améliorant le dispositif expérimental afin d'obtenir des informations sur la structure tridimensionnelle de l'interface, et non plus simplement bidimensionnelle. Cela nous a permis de tester les modèles de mouillage dynamique présentés à la section I.4, et surtout de visualiser la forme effective de la pointe des gouttes. Le coin s'est ainsi avéré être en réalité un cône dont la pointe est arrondie aux petites échelles. Quant au perlage, nous ne disposons pas encore de modélisation de ce régime, mais nous avons mené déjà quelques investigations sur ce régime, qui seront à compléter dans le futur.

II.2 Dispositif expérimental

II.2.1 Montage

Le dispositif expérimental est décrit sur la Figure II-3. Des gouttes millimétriques d'huiles silicones (voir caractéristiques à la section II.2.3) sont émises à la fréquence de 0,5 Hz grâce à un pousse-seringue « Génie » de la « KENT SCIENTIFIC CORPORATION ». Elles sont lâchées sur la partie haute d'une plaque de dimensions 22x22 cm, inclinable de 0 à 90°. Les gouttes atteignent leur vitesse limite quelques millimètres seulement en dessous de l'impact. Elles dévalent alors la pente à vitesse (et forme) constante.

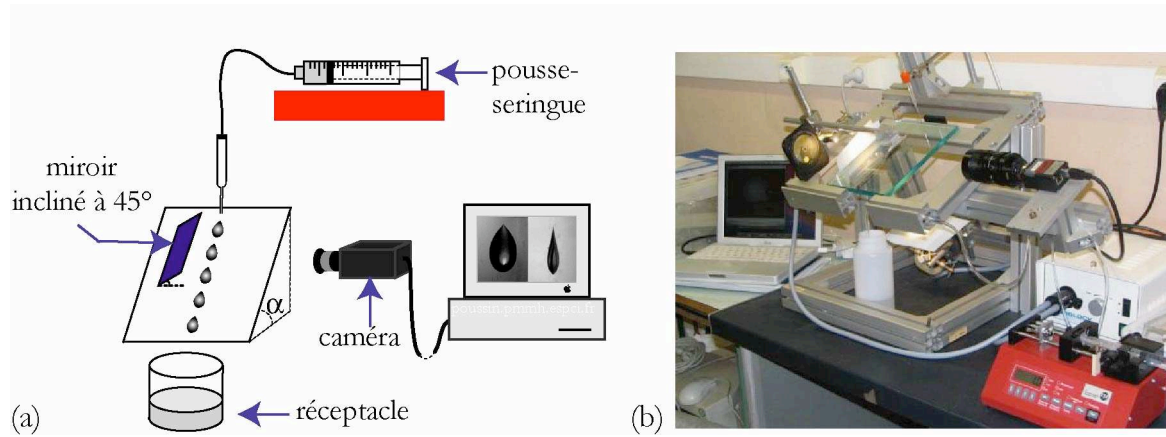


Figure II-3: Description du dispositif expérimental pour l'étude des gouttes ruisselant sur un plan incliné. (a) Schéma explicatif. (b) Photographie du dispositif.

Le substrat est une plaque de verre enduite d'une fine couche de FC725, fluoropolymère commercialisé par 3M. Il s'agit d'un vernis très visqueux que l'on étale sur la plaque en le dissolvant au préalable dans cinq fois son volume d'acétate d'éthyle (voir détails de la méthode décrits dans l'Annexe C). Le solvant s'évapore ensuite et laisse une fine couche de fluoropolymère sur la plaque. Ce traitement permet de rendre la plaque de verre partiellement mouillante pour les huiles silicones, les angles de contact statiques étant aux alentours de 50°.

II.2.2 Contrôle de la vitesse des gouttes par inclinaison du substrat

Le paramètre gérant les transitions entre les différents régimes de gouttes est leur vitesse U . Cette dernière peut être contrôlée soit en changeant le volume des gouttes, soit en modifiant l'inclinaison α de la plaque par rapport à l'horizontale [PODGORSKI (2000)]. En effet, des considérations physiques simple (écoulement de STOKES) impliquent que le nombre capillaire :

$$Ca = \eta U / \gamma \quad (\text{II.4})$$

est à peu près proportionnel au nombre de Bond :

$$Bo = (V^{2/3} \sin \alpha) / l_c^2 \quad (\text{II.5})$$

où V représente le volume de la goutte et $l_c = \sqrt{\gamma / (\rho g)}$ la longueur capillaire. Plus précisément, cette loi linéaire résulte d'un équilibre entre le poids et les frottements visqueux, l'hystérésis introduisant un léger effet de seuil [PODGORSKI *et al* (2001), LE GRAND *et al* (2005)]. Comme il est beaucoup plus simple en pratique d'incliner la plaque que de changer le volume des gouttes, nous avons préféré utiliser l'inclinaison α comme paramètre de contrôle et travailler à volume de gouttes fixé à $V = (6,0 \pm 0,2) \mu\text{L}$.

Aux très faibles inclinaisons, les gouttes restent en fait accrochées à la plaque sans se déplacer, à cause de l'hystérésis de mouillage. Comme l'hystérésis est assez faible sur les substrats utilisés, les gouttes se mettent en mouvement pour des inclinaisons raisonnables de la

plaque. Des détails sur le seuil de mise en mouvement sont disponibles dans LE GRAND *et al* (2005), dont une copie est jointe dans l'Annexe F de ce manuscrit.

II.2.3 Description des huiles silicone

Les huiles 47V, commercialisées par RHODORSIL, sont composées de PDMS (PolyDi-MéthylSiloxane) de formule chimique indiquée sur la Figure II-4. Les groupements méthyle leur confèrent des propriétés d'hydrophobie et d'anti-adhérence. Elles sont transparentes, inertes chimiquement, et ne vieillissent pas sous l'effet de l'air, l'eau ou la lumière, même ultraviolette.

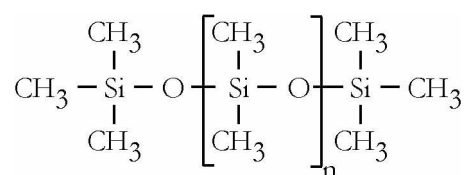


Figure II-4: Molécule de PDMS. L'indice n représente le degré de polymérisation.

Nous avons choisi d'utiliser ces huiles car elles présentent de nombreux avantages. Elles sont fabriquées par polycondensation, ce qui permet de disposer d'huiles de viscosités variables sur plusieurs ordres de grandeur (de $\eta=2$ cP à plusieurs centaines de milliers de centipoises⁶) par simple variation du degré de polymérisation, tout en conservant une densité d proche de 1, et surtout une tension superficielle γ quasi-constante, de l'ordre de 20 mN/m (voir Tableau II-1). Comme leur tension superficielle est basse, il n'y a pas de risque d'abaissement de la tension superficielle par contamination, contrairement au cas de l'eau. De plus, les huiles silicone sont très peu volatiles dès que le nombre de monomères vaut quelques unités.

HUILE	n	η (cP)	d	γ (mN/m)
47V10	9	$10,0 \pm 0,2$	0,936	20,1
47V100	75	$103,7 \pm 0,2$	0,964	20,9
47V1000	338	1035 ± 5	0,970	21,1

Tableau II-1 : Propriétés des huiles utilisées : degré de polymérisation n , viscosité η (mesurée avec un viscosimètre à capillaire), densité d et tension superficielle γ . Les données proviennent de la documentation Rhône-Poulenc [RHODORSIL].

L'ensemble des propriétés de ces huiles fait qu'elles sont très utilisées dans l'industrie, aussi bien comme lubrifiant, que comme isolant, agent anti-mousse, ou additif tensioactif pour peintures ...

⁶ Le poise (P) est une unité « cgs » : $1 \text{ P} = 1 \text{ g.cm}^{-1}.\text{s}^{-1}$. On utilise généralement le centipoise car 1 cP correspond à la viscosité dynamique de l'eau. L'unité « SI » de la viscosité dynamique est le poiseuille (Pl), $1 \text{ Pl} = 1 \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$. Au lieu de quantifier les viscosités en centipoises, comme cela se fait encore de façon extrêmement courante, nous pourrions utiliser le millipoiseuille à la place, car $1 \text{ cP} = 1 \text{ mPl}$.

II.2.4 Technique de visualisation

Les gouttes sont filmées de côté par une caméra, placée à environ 20 cm du train de gouttes, et dont l'axe est perpendiculaire à la plaque (voir Figure II-5). Afin d'obtenir une image satisfaisante, nous avons adapté un zoom 12,5-75 mm et une bague allonge de 10 mm sur la caméra. PODGORSKI ne disposait que des vues de dessus des gouttes. Nous avons ajouté un miroir suspendu au-dessus du dispositif et orienté à 45° , ce qui permet d'obtenir simultanément une vue de côté (en direct) et une vue de dessus des gouttes (à travers le miroir), et d'en extraire des informations sur leur forme tridimensionnelle.

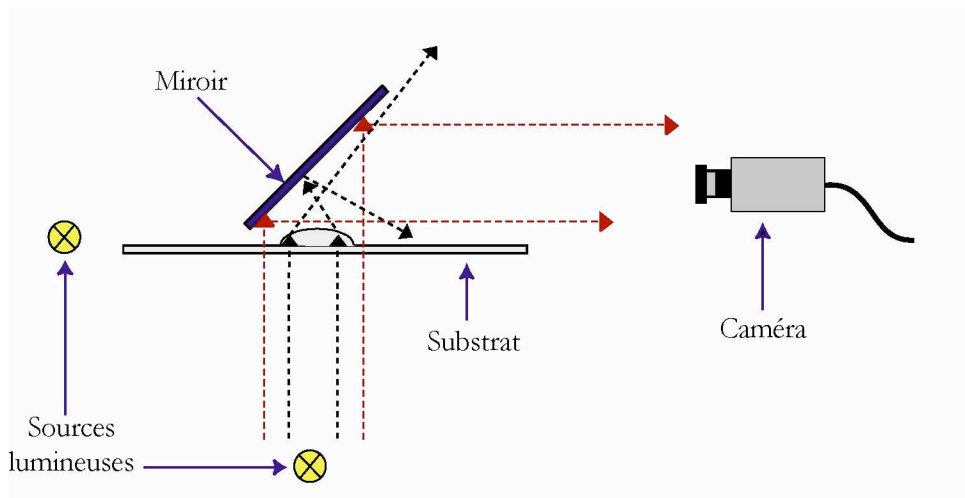


Figure II-5: Technique de visualisation des gouttes avec vue simultanée de dessus et de côté et maximisation du contraste.

Reste à régler le problème de l'éclairage. En effet, l'huile silicone est transparente ce qui rend difficile l'obtention d'un bon contraste sur la plaque de verre. PODGORSKI plaçait un masque de gradients de niveaux de gris sous le substrat, ce qui donnait une impression de relief aux gouttes (voir Figure II-1). Par contre, cette visualisation était peu commode pour l'extraction de contours car le contraste avec la surface non-mouillée s'annulait vers la pointe des gouttes, zone qui justement nous intéresse particulièrement. Comme nous disposons dorénavant de deux vues orthogonales des gouttes, nous n'avons plus besoin de cette sensation de relief et nous avons plutôt cherché à maximiser le contraste des gouttes pour bien distinguer ce qui se passe à leur pointe. Pour cela, nous avons placé deux sources lumineuses « à l'infini », derrière et sous les gouttes (voir Figure II-5). Les sources sont suffisamment étendues pour produire un fond lumineux autour des gouttes, mais également suffisamment ponctuelles pour que les rayons lumineux qui arrivent sur la goutte soient quasi-parallèles et se réfractent hors du diaphragme de la caméra. Ainsi, les gouttes apparaissent sombres sur un fond clair, sauf au centre des gouttes sur la vue de dessus, où l'on perçoit une image de la source lumineuse (voir Figure II-6b).

II.2.5 Méthode de mesure des angles de contact et des angles d'ouverture du coin

Les vues de côté des gouttes permettent d'en extraire les angles de contact dynamiques d'avancée θ_a et de reculée θ_r . Plutôt que de déterminer ces angles par ajustement d'un dièdre formé de deux segments de droites, nous avons préféré ajuster le contour des gouttes par des cercles, soit sur la partie avant pour obtenir θ_a , soit sur l'arrière des gouttes pour en déduire θ_r (voir Figure II-6a). Les cercles sont déterminés en définissant trois points sur le contour des gouttes, proches de la ligne de contact. Les points peuvent éventuellement être déplacés pour obtenir un meilleur ajustement. L'angle entre les tangentes à l'intersection des cercles définit l'angle de contact dynamique. Cette technique de mesure améliore la précision et donne une meilleure reproductibilité que la mesure par des segments de droites. Les angles de contact mesurés par la « méthode des cercles » sont obtenus avec une précision de 1° à 2° .

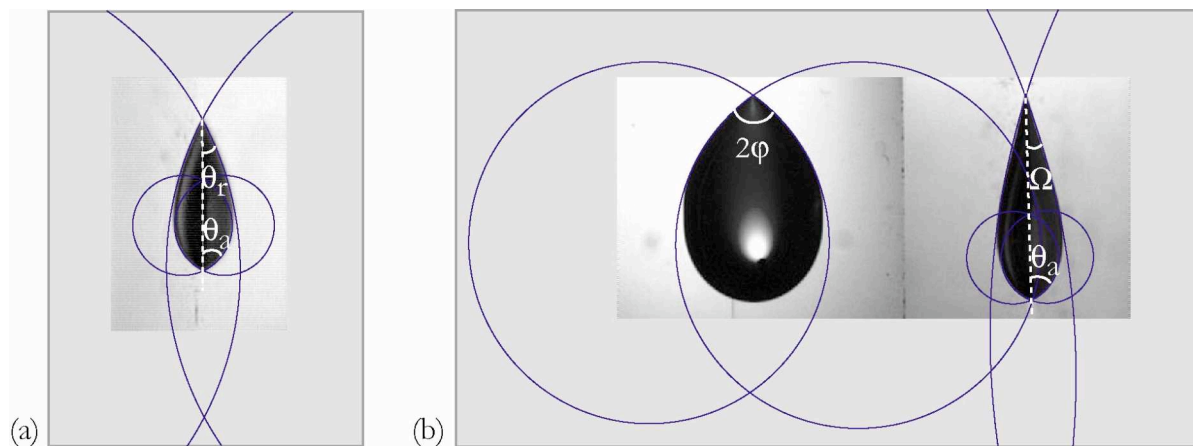


Figure II-6 : Ajustements du contour des gouttes par des cercles pour mesurer les angles caractéristiques. (a) Goutte ovale vue de côté, accompagnée de son reflet dans la plaque de verre. Mesure des angles de contact θ_a et θ_r . (b) Goutte en coin vue de dessus (partie gauche) et vue de côté (partie droite). Mesure des angles d'ouverture du coin φ et Ω .

Il faut noter que l'angle qui est mesuré ici est un angle de contact défini à une échelle macroscopique, de l'ordre du quart de millimètre. Des valeurs différentes d'angles de contacts peuvent être attendues à des échelles plus petites [NGAN & DUSSAN (1982), RIO *et al* (2005)]. Les résultats présentés dans ce manuscrit n'engagent donc que les angles de contact macroscopiques.

La même technique de mesure des angles avec ajustement de contours par des cercles est également utilisée pour caractériser le régime en coin. Les mesures des angles d'ouverture du coin vu de dessus (φ) et vu de côté (Ω) sont effectuées par cette méthode (voir Figure II-6b).

II.3 Forme des gouttes en fonction de leur vitesse

Nous avons effectué des expériences avec trois huiles silicones de viscosités $\eta=10$ cP, 104 cP et 1040 cP. Quelle que soit l'huile utilisée, les gouttes ont montré à chaque fois les mêmes changements de forme lorsque leur vitesse de descente est augmentée. Les différentes morphologies sont particulièrement bien démarquées d'après les vues de dessus des gouttes (voir Figure II-7), ce qui nous a permis de les classer en quatre régimes différents.

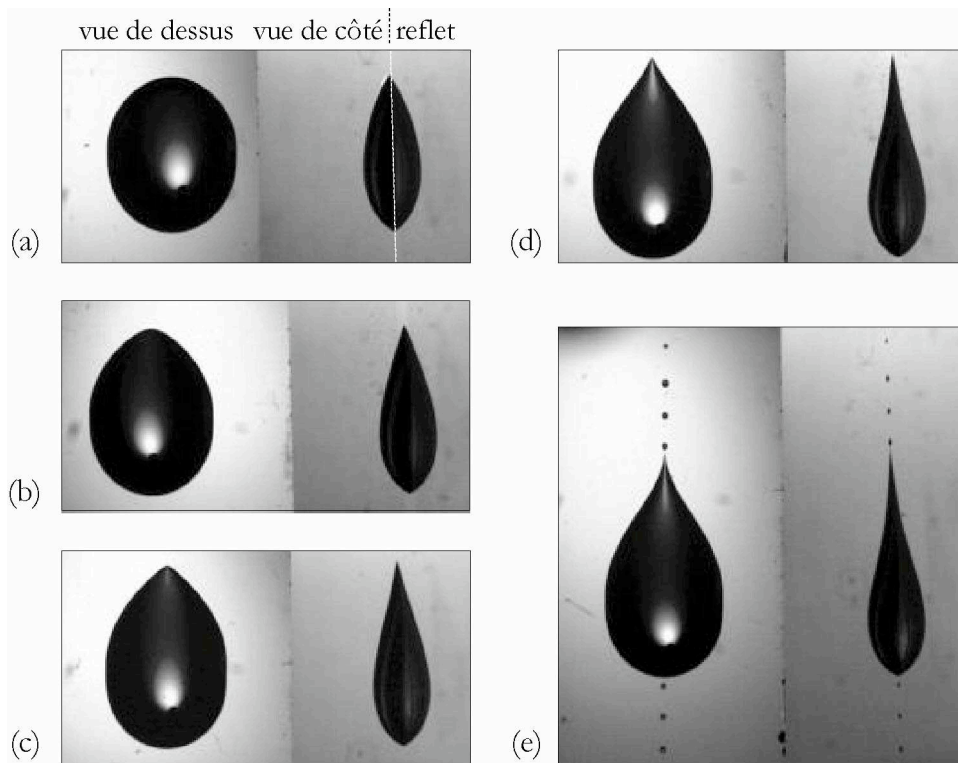


Figure II-7 : Vues de dessus et de côté de gouttes d'huile 47V100 ($\eta=104$ cP), observées pour des vitesses croissantes. La vue de côté est accompagnée du reflet de la goutte dans le support. L'écoulement est du haut vers le bas. (a) Goutte ovale $Ca=2,85.10^{-3}$. (b) Coin $Ca=4,95.10^{-3}$ (c) Coin $Ca=5,14.10^{-3}$. (d) Cusp $Ca=7,07.10^{-3}$. (e) Perlage $Ca=7,19.10^{-3}$.

Ovale. À faible vitesse au-delà du seuil de mise en mouvement des gouttes, leur forme est relativement ronde (cf. Figure II-7a).

Coin. Plus on augmente la vitesse des gouttes, plus elles tendent à développer une pointe à l'arrière (cf. Figure II-7b et c). La forme pointue est surprenante car la tension superficielle s'oppose en principe à la formation d'une telle singularité, la pression capillaire résultante étant considérable. Cette transition paraît se faire continûment : le rayon de courbure de la ligne de contact à l'arrière des gouttes diminue peu à peu tandis que deux segments de droite apparaissent de chaque côté des gouttes.

Cusp. À des vitesses encore plus grandes, la courbure de la ligne de contact s'inverse, faisant apparaître un point d'inflexion (cf. Figure II-7d). Les gouttes arrivent à conserver cette courbure extérieure, sans pour autant déposer de gouttes satellites derrière elles. Ce régime

n'avait pas été identifié par PODGORSKI, probablement parce que ses images étaient moins contrastées que les nôtres, notamment au niveau de la ligne de contact.

Perlage. Enfin, aux grandes vitesses, la pointe finit par déposer de plus petites gouttes derrière elle (cf. Figure II-7e). Les gouttes satellites sont émises par la pointe du cusp selon un processus semblable au pincement d'un filet d'eau sous un robinet qui goutte.

Au niveau du rapport d'aspect des gouttes, c'est principalement leur longueur qui se modifie avec la vitesse de descente sur la plaque. Les gouttes s'allongent fortement, surtout en régime de perlage, alors que leur largeur ne décroît que très faiblement (et reste aux environs de 4 mm) et que leur hauteur reste fixée à 1 mm. Pour plus de détails, voir LE GRAND *et al* (2005) en Annexe F.

Grâce aux améliorations que nous avons apportées au dispositif expérimental (miroir à 45° permettant la visualisation simultanée des gouttes de côté et de dessus, et contraste fortement accentué), nous avons pu examiner en détail la forme tridimensionnelle de ces singularités en pointe qui apparaissent à l'arrière des gouttes et les différentes transitions.

II.4 Angles de contact dynamiques

Commençons par caractériser le mouillage statique et dynamique des huiles silicone sur notre substrat fluoré. Nous avons mesuré les angles de contact pour les différentes formes de gouttes. Ces mesures n'avaient pas pu être réalisées par PODGORSKI car il ne disposait pas des vues simultanées de dessus et de côté. Les résultats se sont avérés très utiles par la suite, donnant notamment des informations sur l'angle critique de reculée à la transition ovale/coin.

II.4.1 Angle critique de reculée à la transition ovale/coin

Comme nous l'attendions, l'angle de contact d'avancée θ_a augmente avec le nombre capillaire, et l'angle de reculée θ_r diminue avec la valeur absolue du nombre capillaire Ca (voir Figure II-8). Une observation importante est que le coin se forme à un angle de contact non-nul, proche de 21° pour l'huile de viscosité $\eta=10$ cP, et de 23° et 26° pour $\eta=104$ cP et $\eta=1040$ cP respectivement. Ceci est contraire aux postulats de BLAKE & RUSCHAK (1979) et de PODGORSKI *et al* (2001) qui supposaient que le coin apparaissait pour des angles de contact nuls. Cette observation n'est pas non plus en faveur du modèle de coin de BEN AMAR *et al* (2001) et (2003) dans lequel le coin est également censé se produire lorsque l'angle de contact de reculée s'annule.

Comparons l'angle critique non-nul trouvé à la transition en coin avec la valeur proposée par DE GENNES dans son modèle de mouillage dynamique, seul modèle qui prédit $\theta_c \neq 0$. Nous avons vu à la section I.4.2.2 que l'angle critique est attendu à la valeur :

$$\theta_c = \theta_s / \sqrt{3} \quad (\text{II.6})$$

où θ_s est l'angle statique de YOUNG. Nous devons toutefois prendre en compte l'hystérésis de mouillage, qui est faible sur notre substrat fluoré. La Figure II-8 met en évidence la petitesse de

l'hystérésis (au repos, les angles de contact ne peuvent prendre que des valeurs comprises entre $\theta_{r,s}=46^\circ$ et $\theta_{a,s}=51^\circ$ pour l'huile de 10 cP par exemple), ce qui révèle la propreté et l'homogénéité de la surface. Les valeurs des angles de contact statiques limites ($\theta_{a,s}$ et $\theta_{r,s}$) pour les trois huiles utilisées, ainsi que de l'hystérésis correspondante ($\theta_{a,s}-\theta_{r,s}$) sont transcrites dans le Tableau II-2. En incorporant l'hystérésis de mouillage, on s'attend à trouver la transition à :

$$\theta_c = \theta_{r,s} / \sqrt{3} \quad (\text{II.7})$$

Cette valeur est comparée aux résultats expérimentaux dans le Tableau II-2 et l'on constate que la valeur prévue par le modèle de DE GENNES est proche de celle observée expérimentalement, au moins pour les deux huiles les plus visqueuses. La légère différence entre les valeurs expérimentales et celles prédites pourrait être due à l'hystérésis de mouillage, ce qui va dans le sens d'une étude récente de GOLESTANIAN & RAPHAËL (2001) suggérant un décalage de l'angle critique dû à la rugosité de la surface. Toutefois, cette dernière est censée augmenter l'angle critique de transition, alors que nous trouvons des valeurs inférieures au cas idéal non-rugueux du modèle de DE GENNES.

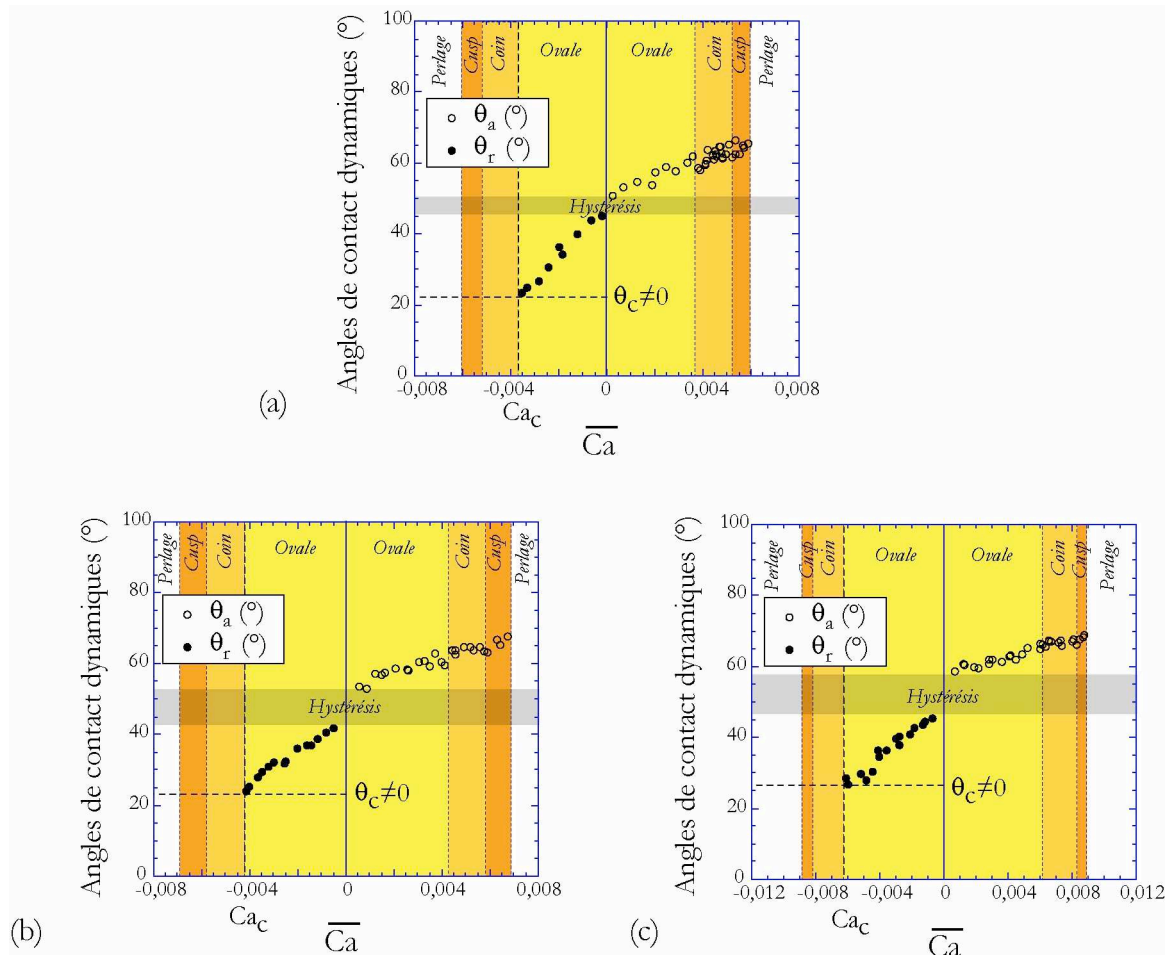


Figure II-8 : Angles de contact dynamiques d'avancée et de reculée pour une huile silicone de viscosité dynamique (a) $\eta=10$ cP, (b) $\eta=104$ cP, et (c) $\eta=1040$ cP. Mise en évidence de l'angle critique θ_c non-nul à la transition en coin.

HUILE	$\theta_{a,s} (^{\circ}) \pm 0,5^{\circ}$	$\theta_{r,s} (^{\circ}) \pm 0,5^{\circ}$	HYSTÉRÉSIS $\pm 1^{\circ}$	$\theta_c (^{\circ}) \pm 0,5^{\circ}$	$\theta_c \text{ THÉORIQUE } (^{\circ})$
10 cP	50,5	45,5	5,0	21,0	26,0
104 cP	52,9	42,7	10,2	23,0	24,5
1040 cP	58,1	46,8	11,3	26,0	27,0

Tableau II-2 : Hystérésis observées le substrat fluoré FC725 pour les trois huiles silicones utilisées, et comparaison des angles critiques de reculée de la transition en coin à la valeur théorique prévue par DE GENNES (1986).

II.4.2 Test des différents modèles de mouillage

Le dispositif expérimental dont nous disposons est sans doute l'un des plus simples permettant d'obtenir les angles de contacts dynamiques, ce qui nous a donné l'opportunité de tester les différents modèles de mouillage exposés à la section I.4. Nous avons donc testé les modèles hydrodynamiques de COX & VOÏNOV [COX (1986), VOÏNOV (1976)] et de DE GENNES [DE GENNES (1986), DE GENNES *et al* (1990)], le modèle moléculaire-cinétique [BLAKE & RUSCHAK (1997), RUIJTERS *et al* (1999)], et enfin l'approximation linéaire souvent évoquée dans le modèle d'interface diffus [POMEAU (2000) et (2002)]. Leurs expressions respectives sont les suivantes :

$$\text{Cox - Voïnov} \quad \theta^3 - \theta_s^3 = 9 \overline{\text{Ca}} \ln(b/a) \quad (\text{II.8})$$

$$\text{de Gennes} \quad \theta(\theta^2 - \theta_s^2) = 6 \overline{\text{Ca}} \ln(b/a) \quad (\text{II.9})$$

$$\text{Moléculaire - cinétique} \quad \theta^2 - \theta_s^2 \propto \overline{\text{Ca}} \quad (\text{II.10})$$

$$\text{Linéaire} \quad \theta - \theta_s \propto \overline{\text{Ca}} \quad (\text{II.11})$$

où θ est l'angle de contact dynamique, θ_s l'angle statique, $\overline{\text{Ca}}$ le nombre capillaire algébrique, et b et a des longueurs de coupure macroscopique et microscopique. Afin de les comparer, nous avons tracé, pour chaque modèle, le polynôme en angle de contact dynamique θ qui devrait être linéaire en nombre capillaire, en remplaçant θ_s par $\theta_{a,s}$ pour la branche d'avancée et par $\theta_{r,s}$ pour la reculée. Les résultats pour les quatre modèles sont regroupés sur la Figure II-9.

Tous les modèles semblent s'ajuster correctement sur les données expérimentales. Notre dispositif ne permet donc pas de clairement valider ou rejeter les modèles essayés. Toutefois, la loi proposée par DE GENNES semble ne plus s'appliquer près de la transition de mouillage où l'on observe un plateau inattendu (Figure II-9b). Les modèles moléculaire-cinétique et linéaire, quant à eux, ne conservent pas la symétrie entre mouillage et dé mouillage : les pentes des droites sont différentes à l'avancée et à la reculée de la ligne de contact (voir Figure II-9c et d). Il n'y a bien sûr aucune raison que la nature privilégie cette symétrie, mais la loi de COX & VOÏNOV donne des résultats totalement symétriques pour le mouillage et le dé mouillage (voir Figure II-9a). Cette symétrie subsiste même lors du changement de viscosité, comme on peut le voir dans le Tableau II-3. Nous avons donc privilégié ce modèle par la suite car il permet finalement de décrire les expériences avec le plus petit nombre de paramètres indépendants possible.

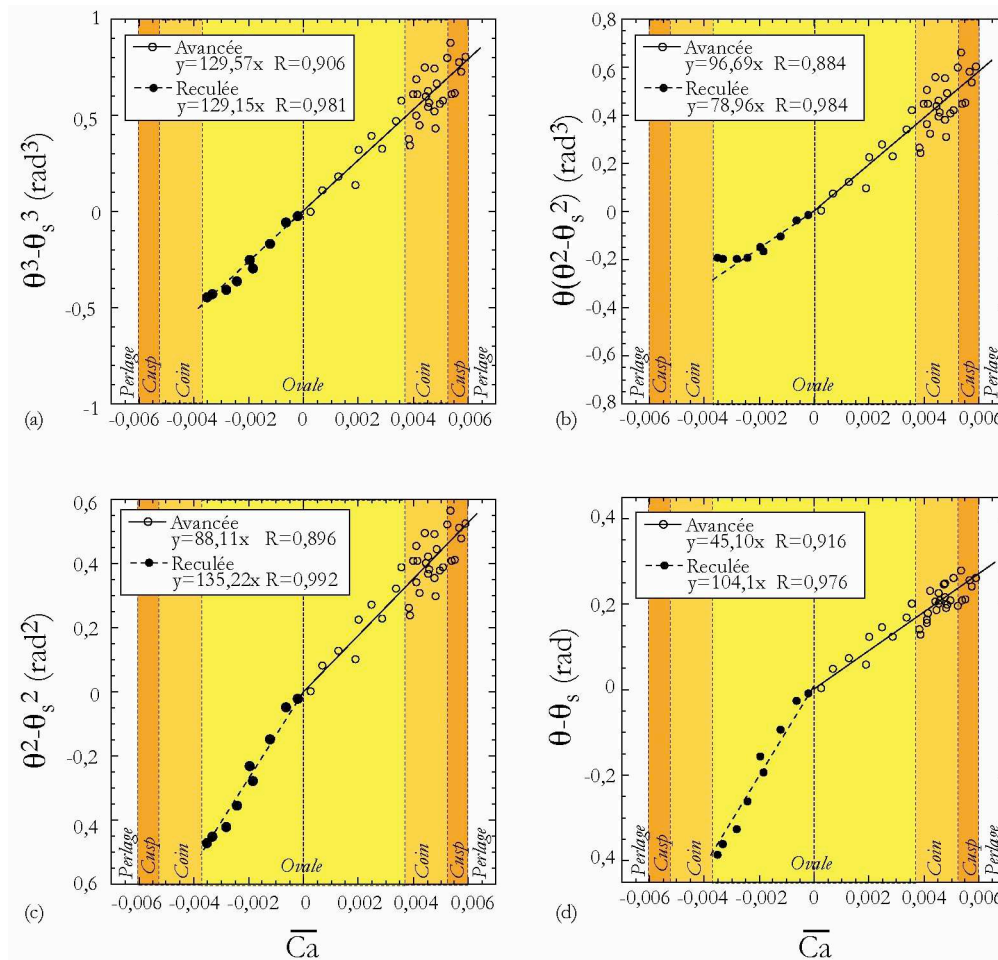


Figure II-9 : Modèles de mouillage dynamique, $\eta=10$ cP. (a) Loi de COX & VOÏNOV. (b) Loi de DE GENNES. (c) Modèle moléculaire-cinétique. (d) Modèle linéaire.

HUILE	n	EXPÉRIMENTAL			ACCORDÉON		PELOTE	
		ln(b/a) avancée	ln(b/a) reculée	ln(b/a) moyen	a (nm)	ln(b/a)	a (nm)	ln(b/a)
10 cP	9	14	14	14	3	13	1	14
104 cP	75	13	9	11	20	11	3	13
1040 cP	338	9	9	9	100	9	6	12

Tableau II-3 : Cohérence des pentes dans le modèle de COX & VOÏNOV. La longueur de coupure microscopique a est déterminée en estimant la longueur des molécules de PDMS. La longueur macroscopique b est prise égale à 1 mm.

De plus, la modification de la valeur des pentes d'une viscosité à l'autre peut s'expliquer par le changement de l'échelle de coupure microscopique a , due au changement de taille des molécules de PDMS entre les différentes huiles. Nous avons vérifié que les valeurs des pentes obtenues pour la loi de COX & VOÏNOV étaient compatibles avec des ordres de grandeur des

échelles de coupure microscopiques intervenant dans le modèle. Les valeurs de la constante de proportionnalité $\ln(b/a)$ ont été estimées en prenant la taille typique des gouttes $b=1$ mm pour l'échelle de coupure macroscopique et la taille des molécules d'huiles silicones (PDMS) pour la coupure microscopique a . Nous avons calculé a par deux approches différentes. La distance de la liaison silicium-oxygène dans le PDMS étant de 0,160 nm et l'angle de la chaîne Si-O-Si étant de 144° , la distance séparant deux atomes de silicium dans le PDMS est de $l_{\text{Si-Si}}=0,30$ nm. La longueur totale d'une molécule d'huile silicone en « accordéon » serait alors de :

$$a = (n + 1)l_{\text{Si-Si}} + 2l_{\text{Si-CH}_3} \sim (n + 2)l_{\text{Si-Si}} \quad (\text{II.12})$$

où n est le nombre de monomères composant la molécule (voir Figure II-4 et Tableau II-1). Si la molécule est très flexible, elle se met plutôt sous forme de pelote. En supposant une marche aléatoire, le diamètre typique de la molécule est alors de l'ordre de :

$$a \sim \sqrt{(n + 2)} \cdot l_{\text{Si-Si}} \quad (\text{II.13})$$

La valeur correcte de la coupure microscopique, a , devrait se trouver quelque part entre ces deux estimations. Sur le Tableau II-3, on peut voir que les pentes expérimentales $\ln(b/a)$ sont en excellent accord avec les valeurs estimées pour le modèle de COX-VOÏNOV. Remarquons toutefois que les ordres de grandeur des pentes obtenues avec le modèle de DE GENNES sont aussi compatibles avec nos estimations de a .

Le modèle hydrodynamique de COX & VOÏNOV semble donc bien approprié pour décrire les variations d'angles de contact dynamiques avec la vitesse des gouttes dans nos expériences. Pour autant, gardons en mémoire que ce modèle ne décrit pas parfaitement l'ensemble de nos données puisqu'il prévoit un angle de contact de reculée nul à la transition en coin, ce qui est en contradiction avec nos résultats expérimentaux. Seul le modèle de DE GENNES prédit une transition pour un angle de contact critique non-nul et nous avons déjà vu que la valeur attendue pour cet angle est proche des valeurs expérimentales (voir section II.4.1), bien que le modèle s'ajuste mal aux données près de la transition ovale/coin.

En conclusion, aucun modèle ne semble réussir à englober la totalité des caractéristiques de l'écoulement des gouttes. Le modèle de COX et VOÏNOV décrit tout de même correctement les angles de contact pour le ruissellement des gouttes et respecte la symétrie des courbes $\theta(\text{Ca})$ entre l'avancée et la reculée. Même si la transition en coin ne se trouve pas à l'emplacement attendu, la courbe $\theta(\text{Ca})$ prévue par ce modèle reflète très bien les valeurs expérimentales (les courbes des angles de contact sont en fait interrompues avant d'atteindre la valeur nulle). Nous avons donc privilégié le modèle de COX & VOÏNOV par rapport aux autres, et fait uniquement usage de celui-ci dans tout le chapitre.

II.5 Forme adaptative du coin

La singularité en coin est tout à fait surprenante car les forces de tension superficielle s'opposent violemment à la formation de courbures très prononcées. Cette singularité de singularité (la ligne triple étant elle-même une singularité) a donc retenu toute notre attention et nous avons tenté de la décrire en détail.

II.5.1 Vitesse normale à la ligne de contact : $Ca \cdot \sin\phi$

Dans le régime en coin, les gouttes voient leur forme évoluer : les angles d'ouverture du coin varient avec la vitesse des gouttes. Selon PODGORSKI *et al* (2001), la mise en coin des gouttes serait une façon de diminuer la vitesse de la ligne de contact (qui avance alors à $Ca \cdot \sin\phi$) et de la maintenir en dessous de la vitesse maximale de démouillage. RIO a confirmé que la composante pertinente de la vitesse était bien la vitesse normale à la ligne de contact [RIO *et al* (2005), SNOEIJER *et al* (2005)]. Elle a montré que l'angle de contact ne dépend que du nombre capillaire formé sur la vitesse normale à la ligne de contact, et qu'en fait, les lignes de champ de la vitesse de l'écoulement dans les gouttes arrivaient normalement à la ligne de contact. Il n'y a donc pas de vitesse parallèle à la ligne de contact. Nous avons donc relevé l'évolution de cette vitesse normale à la ligne de contact ($Ca \sin\phi$), en fonction du nombre capillaire. Les résultats sont reportés sur la Figure II-10.

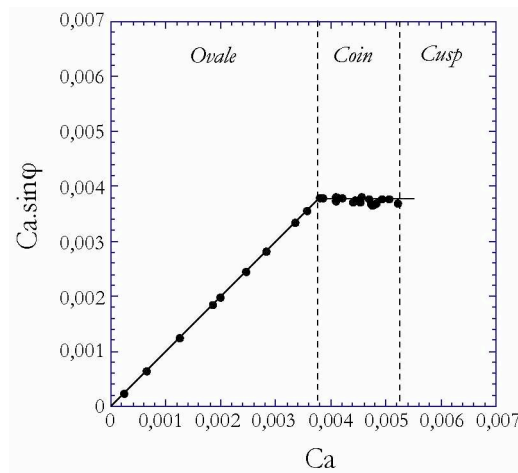


Figure II-10 : Vitesse de reculée normale à la ligne de contact, en fonction de la vitesse de la goutte. Il s'agit ici des valeurs absolues des nombres capillaires.

Pour les gouttes ovales, la vitesse normale à la ligne de contact à l'arrière est égale à la vitesse des gouttes ($\phi=90^\circ$). Les points s'alignent alors sur la première bissectrice. En régime de coin, la courbe sature et l'on observe un plateau. Le graphique indique donc qu'une fois que le nombre capillaire dépasse la valeur critique de transition en coin, la vitesse normale reste constante et bloquée à la vitesse critique à laquelle la transition a lieu, évitant ainsi que la goutte ne perle, bien qu'elle descende à une vitesse supérieure à la vitesse critique. C'est précisément ce qu'avaient si justement suggéré BLAKE & RUSCHAK (1979), à propos de la « mise en coin » des lignes de contact pour des plaques tirées hors d'un bain.

Cette représentation de la vitesse normale de la ligne de contact en fonction de la vitesse de la goutte permet *a posteriori* de justifier la séparation ovale/coin proposée lors de la classification des régimes. La transition y est clairement mise en évidence par la rupture de pente de la courbe, permettant de préciser le nombre capillaire critique auquel la transition a lieu.

II.5.2 Angle d'ouverture du coin en vue de dessus : φ

Une autre façon de traduire le fait que la vitesse normale à la ligne de contact reste constante pendant le régime de coin ($Ca \sin\varphi = \text{cte}$) est de dire que l'angle d'ouverture du coin s'adapte de façon à ce que $\sin\varphi$ soit inversement proportionnel à Ca ($Ca = \text{cte}/\sin\varphi$). Partant de la loi de COX et VOÏNOV et prenant l'angle de contact nul pour le régime en coin, PODGORSKI *et al* ont obtenu la loi de variation suivante :

$$\sin\varphi = \frac{\theta_{r,s}^3}{9\ln(b/a)Ca} \propto \frac{1}{Ca} \quad (\text{II.14})$$

Ils ont vérifié la proportionnalité en $1/Ca$, mais nous avons voulu aller plus loin et tester la loi dans son intégralité, avec le préfacteur. En effet, grâce aux vues de côté des gouttes nous avons pu mesurer les angles de contact dynamiques et ainsi pu déterminer le préfacteur $9\ln(b/a)$ intervenant dans la loi de COX-VOÏNOV, en plus de la valeur de l'angle limite $\theta_{r,s}$ (voir section II.4).

Les résultats des relevés de l'angle d'ouverture du coin dans le plan du substrat, φ , sont regroupés sur la Figure II-11. La proportionnalité entre $\sin\varphi$ et Ca est bel et bien réalisée, mais par contre le préfacteur proposé s'avère ne pas être correct. Cela n'est en fait pas très surprenant puisque PODGORSKI pensait que l'angle dynamique de reculée s'annulait à la transition en coin et en a déduit la relation (II.14). Or, nous avons vu que qu'en réalité, l'angle dynamique de reculée n'était pas nul à la transition. Une des hypothèses du raisonnement de PODGORSKI n'est donc pas valable.

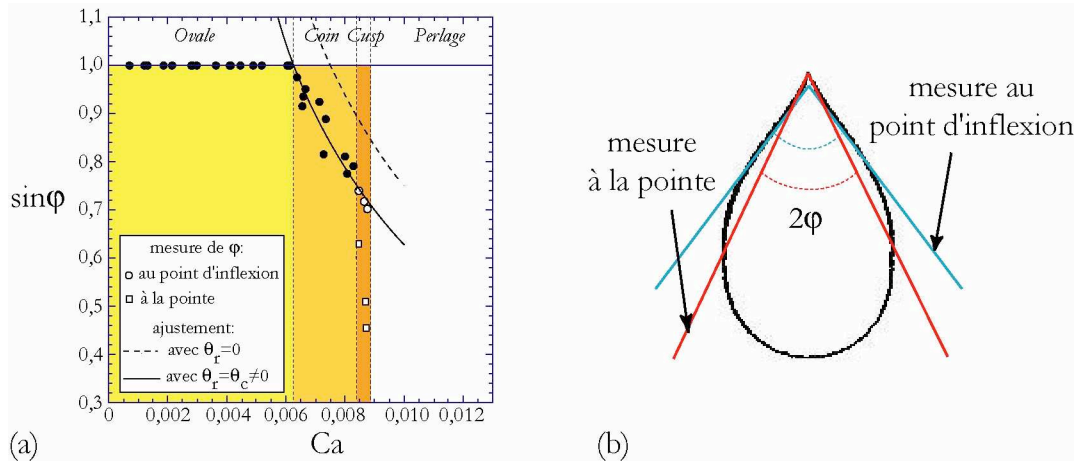


Figure II-11 : (a) Variation de l'angle d'ouverture du coin vu de dessus en fonction du nombre capillaire. $\eta=1040$ cP. La ligne pointillée représente la prédiction de PODGORSKI pour laquelle θ_r est pris nul. La ligne continue est la prédiction pour $\theta_r=\theta_c$. (b) Les deux mesures possibles pour un cusp : mesure à la pointe ou au point d'inflexion.

Étant donné que l'angle de reculée n'est pas nul mais est égal à θ_c au passage en coin, nous avons repris la démarche de PODGORSKI, mais en remplaçant cette fois l'angle de reculée par θ_c au lieu de zéro. Nous obtenons alors une nouvelle expression :

$$\sin \varphi = \frac{\theta_{r,s}^3 - \theta_c^3}{9 \ln(b/a) Ca} \quad (\text{II.15})$$

L'équation (II.15) a été testée sur nos mesures de l'angle φ , obtenues d'après les vues de dessus des gouttes, en prenant les valeurs de θ_c et $\ln(b/a)$ extraites des mesures d'angles de contact θ_a et θ_r données par les vues de côté. Cette nouvelle loi corrigée rend parfaitement compte de nos mesures, sans aucun paramètre ajustable. Il semblerait donc qu'au lieu de voir leurs angles de contact aller à zéro, les gouttes en coin conservent un angle de contact non nul et égal à θ_c sur chacune des deux lignes de contact. Ce résultat va dans le sens de mesures d'angles de contact obtenues par déflexion d'une nappe laser sur des gouttes de grande dimension, aplaties par la gravité, et effectuées par RIO (2005).

Tout comme le tracé de la vitesse normale à la ligne de contact en fonction du nombre capillaire définissait clairement la transition ovale/coin, le tracé de $\sin \varphi$ en fonction de Ca est une autre façon de déterminer l'emplacement de la transition car alors l'angle varie brutalement de 90° à des valeurs plus faibles.

Nous avons ajouté sur la Figure II-11 des mesures concernant le régime de cusp sur le graphique donnant $\sin \varphi$ en fonction de Ca . Pour les coins, l'angle φ est défini sans ambiguïté et mesuré au moyen de la méthode d'ajustement du contour des gouttes par un cercle, décrite à la section II.2.5. Au contraire, cet angle est plus délicat à définir dans le cas des cusps, étant donné la courbure de la ligne de contact. Nous avons donc pris deux mesures de φ pour les cusps, décrites sur la Figure II-11b : une effectuée à la pointe extrême des gouttes (courbure tournée vers l'extérieur des gouttes), et une au point d'inflexion de la ligne de contact. Cette dernière mesure correspond à l'angle entre les deux tangentes à la ligne de contact, au niveau du point d'inflexion, sans prendre en compte la pointe extrême des gouttes. Les mesures de type point d'inflexion se sont révélées se positionner dans la lignée parfaite des mesures du régime en coin, ce qui indique la pertinence de ces mesures type point d'inflexion. La « pointe » du cusp viendrait donc se greffer sur le reste de la goutte, qui elle-même définit un coin à l'arrière, indépendant du cusp.

II.5.3 Angle d'ouverture du coin en vue de côté (Ω)

Les images de côté du coin (voir par exemple Figure II-7) montrent que les gouttes adoptent une forme conique, comme proposée par LIMAT & STONE (2004) ou SNOEIJER *et al* (2005), et non une forme de selle telle que suggérée par BEN AMAR *et al* (2001) et (2003). Nous avons relevé l'évolution de l'angle d'ouverture de ce cône en vue de côté, Ω en fonction du nombre capillaire. Les résultats sont reportés sur la Figure II-12a. On peut remarquer qu'il n'y a aucune discontinuité entre θ_r juste en dessous du nombre capillaire critique de la transition en coin et Ω juste au-dessus. Il est également intéressant de noter que Ω diminue lorsque la vitesse de la goutte augmente, mais qu'il ne s'annule jamais, même à la transition de perlage !

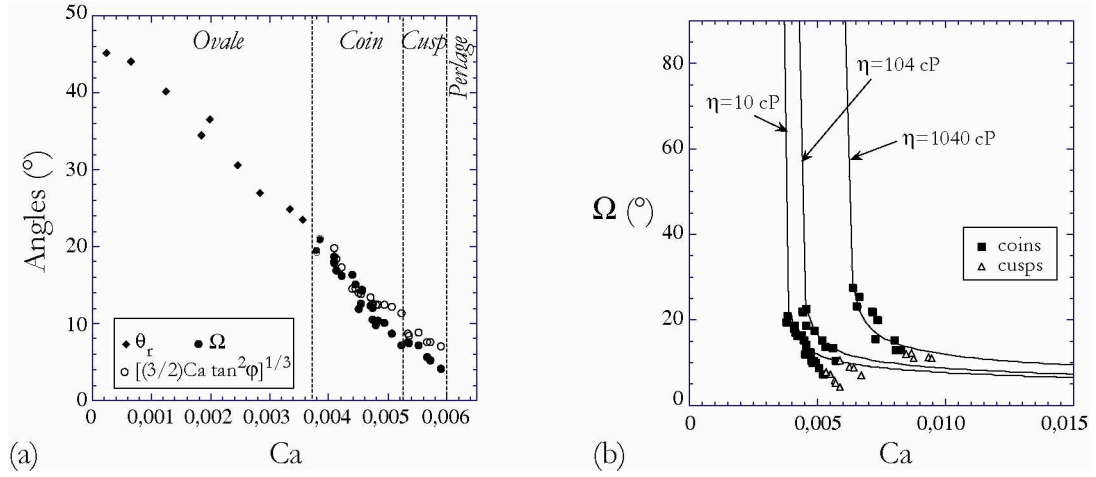


Figure II-12 : (a) Angle d'ouverture du cône en vue de côté, Ω , et comparaison avec le modèle de LIMAT & STONE. $\eta=10$ cP. (b) Comparaison des mesures de Ω avec les lois donnant $\Omega=f(Ca)$, tracées en lignes continues pour les trois viscosités.

LIMAT & STONE (2004) ont suggéré récemment des modélisations de l'arrière des gouttes. Ils ont proposé des solutions auto-similaires de l'équation de STOKES dans le cadre de l'approximation de lubrification, l'interface $h(x,y)$ étant supposée conique :

$$\begin{cases} \vec{\nabla}(\Delta h) = \frac{3\eta}{\gamma} \frac{\vec{U}}{h^2} \\ h(x,y) = xH(y/x) \end{cases} \quad (\text{II.16})$$

où les coordonnées x et y sont définies sur la Figure II-13. La pertinence du modèle pour la description de la pointe des gouttes a été confirmée par la très bonne concordance entre le champ de vitesse dans le coin, obtenu expérimentalement (par suivi de traceurs en surface des gouttes), et du champ de vitesse auto-similaire attendu par ce modèle [SNOEIJER *et al* (2005)]. Cette modélisation du coin conduit à une relation entre les angles d'ouverture φ et Ω . En approximant les sections transverses des cônes par des paraboles, on peut obtenir une expression analytique liant Ω à φ [LIMAT & STONE (2004)] :

$$\tan^3 \Omega = \frac{3}{2} Ca \tan^2 \varphi \quad (\text{II.17})$$

Une façon simple et plus physique de retrouver ce résultat est d'écrire, dans le référentiel de la goutte, l'équilibre entre le flux linéique induit par la plaque $Uh(x,y)$ et le flux de retour entraîné par la gravité et la capillarité :

$$Uh(x,y) = -\frac{h^3}{3\eta} \cdot \frac{\partial p}{\partial x} \quad (\text{II.18})$$

Près de la pointe, la pression capillaire domine la pression hydrostatique, donc la pression totale peut s'exprimer par $p \approx -\gamma \Delta h(x,y) \approx -\gamma h_{yy}$, où h_{yy} désigne la dérivée seconde par rapport à y de la hauteur h . Enfin, en supposant que les sections du coin peuvent être assimilées à des paraboles :

$$h(x,y) = \Omega x \left(1 - \frac{y^2}{x^2 \tan^2 \varphi} \right) \quad (\text{II.19})$$

la pression donne finalement $p = 2\gamma\Omega / (x \tan^2 \varphi)$, d'où la relation⁷ :

$$\Omega^3 = \frac{3}{2} Ca \tan^2 \varphi \quad (\text{II.20})$$

qui est similaire à la relation (II.17) car $\tan \Omega \approx \Omega$.

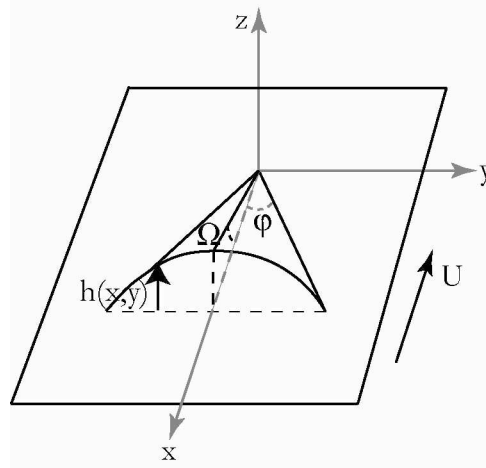


Figure II-13 : Notations pour le modèle de coin de LIMAT & STONE. Le substrat remonte à la vitesse U et le référentiel choisi est celui de la goutte.

La Figure II-12a montre que l'on a un très bon accord entre les mesures de Ω , faites directement sur les vues de côté des gouttes et la valeur $[(3/2)Ca \tan^2 \varphi]^{1/3}$, déterminée à partir des mesures de φ faites sur les vues de dessus des gouttes. Cela confirme à nouveau que le modèle convient très bien pour la description de la pointe des gouttes en régime de coin.

Nous disposons maintenant d'une relation liant φ à Ca, l'équation (II.15), ainsi que d'une relation liant Ω à φ . Nous pouvons en déduire une troisième relation donnant cette fois directement l'évolution de Ω avec le nombre capillaire Ca :

$$\tan^3 \Omega = \frac{3}{2} Ca \tan^2 \left(\arcsin \frac{\theta_s^3 - \theta_c^3}{9 \ln(b/a) Ca} \right) \quad (\text{II.21})$$

Cette loi a été comparée aux données expérimentales de Ω pour les trois viscosités sur la Figure II-12b. L'accord avec les expériences est remarquable compte tenu de la complexité de la physique sous-jacente aux équations (II.15) et (II.17), qui ne sont clairement que des approximations assez fortes de la réalité, et du fait que nous n'ayons là aucun paramètre ajustable. Il subsiste tout de même des différences notables entre la courbe prévue de Ω en fonction

⁷ Notons qu'un calcul plus rigoureux de la relation entre les angles Ω et φ [SNOEIJER *et al* (2005)] donne un préfacteur égal à 35/16, au lieu du 3/2 trouvé par LIMAT & STONE (2004), ce qui ne change que peu les résultats.

de Ca et les mesures directes de Ω sur les photographies des gouttes. Les valeurs expérimentales sont légèrement en dessous des valeurs prévues par le modèle, mais surtout la divergence attendue près du seuil d'apparition des coins est écartée par un phénomène que nous allons maintenant découvrir.

II.6 Un « coin rond » ?

II.6.1 Courbure de la ligne de contact dans la direction transverse à l'écoulement

La singularité en coin est tout à fait surprenante compte tenu des pressions capillaires infinies que cela suppose. En réalité, cette singularité est régularisée à des échelles de plus en plus petites au fur et à mesure que la vitesse de la goutte est augmentée. Le coin n'est donc jamais totalement « pointu » et la ligne de contact présente un rayon de courbure non-nul à la pointe. Nous avons relevé les courbures de la ligne de contact dans le plan du substrat à la fois à l'avant (κ_a) et à l'arrière des gouttes (κ_r). Les valeurs sont reportées sur la Figure II-14 en fonction du nombre capillaire $Ca = \eta U / \gamma$.

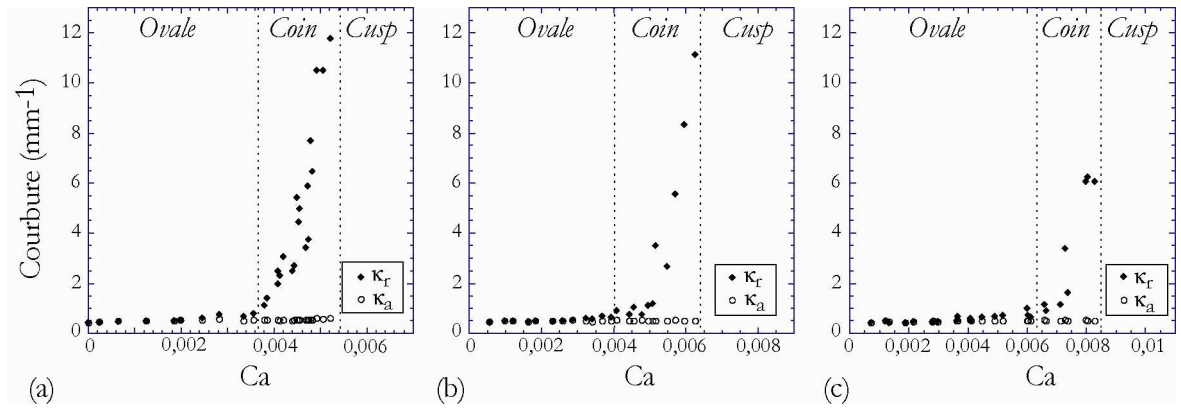


Figure II-14 : Courbure des gouttes dans le plan du substrat pour les trois huiles silicone utilisées. κ_a représente la courbure à l'avant de la goutte et κ_r celle à l'arrière.

(a) $\eta = 10$ cP, (b) $\eta = 104$ cP, (c) $\eta = 1040$ cP.

La courbure à l'avant des gouttes κ_a reste quasi-constante, quelque soit le régime, alors que la courbure à l'arrière κ_r augmente continûment. La transition ovale/coin se fait donc en douceur, comme nous l'avons remarqué lors de l'observation « à l'œil » des régimes de gouttes. Il apparaît sur les graphiques que la transition entre ces deux régimes est marquée par la séparation de la courbure arrière et avant. Pour les vitesses les plus lentes, et donc les plus petits nombres capillaires, les courbures κ_a et κ_r sont égales. Au-delà du nombre capillaire critique auquel la transition ovale/coin intervient, la courbure arrière devient supérieure à celle de l'avant, puis se met à augmenter brutalement et finit par diverger à nombre capillaire fini. Cette augmentation de courbure du coin a été retrouvée par Valéry ROY (communication privée), par simulation numérique en utilisant la théorie de la lubrification avec pression de disjonction.

Si l'on regarde bien les graphes, la courbure avant κ_a demeure finie et quasi-constante, tandis que κ_r diverge, mais cette divergence n'est pas atteinte à la sortie du régime en coin qui est arrondi à la transition coin/cusp. Cela signifie que le coin des gouttes n'est en fait jamais un véritable coin : il est toujours arrondi ! L'arrondi se fait à des échelles de plus en plus petites au fur et à mesure que le nombre capillaire augmente. Nos mesures indiquent que l'échelle minimale à laquelle se produit la régularisation du coin va jusqu'à un rayon de courbure de l'ordre de $100\ \mu\text{m}$. Cette valeur est à prendre avec précaution car elle correspond en fait à la résolution limite de notre système de visualisation. Il faudrait donc regarder de plus près, à l'aide d'un microscope par exemple, pour voir si la régularisation ne se ferait pas à des échelles encore plus petites lorsqu'on s'approche encore plus de la transition.

Le fait que le coin ne soit pas pointu mais arrondi peut paraître en contradiction avec l'analyse en termes de forme conique que nous avons utilisée jusqu'ici. Cependant, malgré cet arrondi, il est toujours possible de définir l'angle du coin vu de dessus, φ , en considérant l'angle d'intersection des deux segments de droite qui forment le coin (voir Figure II-15a). Le fait est que les données expérimentales des angles d'ouverture du coin φ et Ω sont bien reproduites par le modèle conique de LIMAT et STONE (voir section II.5.3). La régularisation du coin à petite échelle ne semble donc pas être primordiale pour sa modélisation, et il peut toujours être assimilé à un cône.

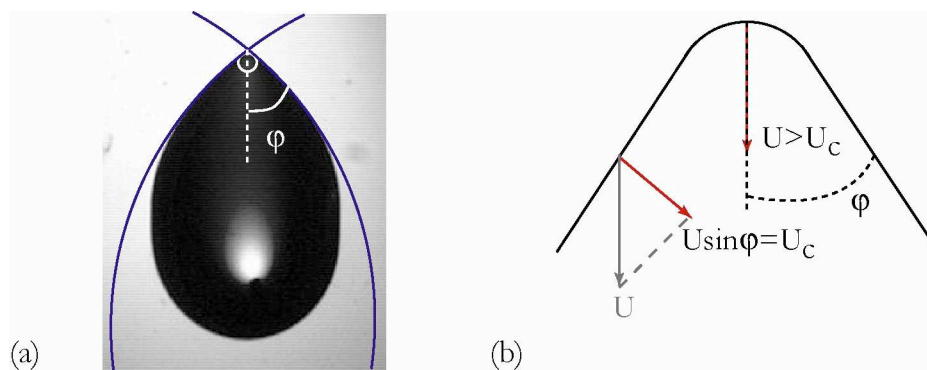


Figure II-15 : (a) Coins avec illustration de la mesure de l'angle d'ouverture du coin φ malgré l'arrondi à l'arrière des gouttes. $\eta=104\ \text{cP}$. (b) Schéma mettant en évidence une vitesse à l'arrière du coin rond supérieure à la vitesse critique.

Bien que cet arrondissement du coin ne semble pas avoir de conséquences sur la forme « grande échelle » du coin, il pose un problème de fond. Dans les sections précédentes, nous avons vu que l'inclinaison de la ligne de contact permet de réduire la vitesse de la ligne de contact et que l'angle s'adapte de façon à maintenir la vitesse normale $U \sin \varphi$, égale à la vitesse critique U_c , alors que les gouttes avancent à une vitesse U supérieure à U_c . Les gouttes évitent ainsi de mouiller le substrat. Cependant, comme le coin est arrondi à l'arrière, la vitesse normale à l'arrière du coin est égale à la vitesse de la goutte et se retrouve supérieure à la vitesse critique de démouillage (cf. Figure II-15b). Le coin devrait alors déposer du liquide sur le substrat. Pourquoi donc n'y a-t-il pas de transition de mouillage forcé en régime de coin, celle-ci ne se produisant que bien plus tard, après formation d'un cusp, sous forme de dépôt de gouttelettes sur le substrat (perlage) ?

II.6.2 Retard à la transition

Avec Jacco SNOEIJER, nous nous sommes intéressés au problème de régularisation de la singularité en coin aux petites échelles [SNOEIJER *et al* (2005)]. Il a repris les équations de STOKES dans l'approximation de lubrification mais cette fois en prenant en compte la courbure de la ligne de contact dans la direction transverse à l'écoulement, juste à l'axe de symétrie de la goutte ($y=0$) :

$$\frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{\partial^2 h}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 h}{\partial y^2} \right) \bigg|_{y=0} = \frac{3Ca}{h^2} \quad (\text{II.22})$$

Il s'agit d'une généralisation de l'expression (I.17), obtenue pour une ligne de contact droite ($\partial^2 h / \partial y^2 = 0$), avec prise en compte cette fois de la courbure transverse de la ligne de contact.

Pour une interface supposée parabolique, le calcul du terme de courbure $\partial^2 h / \partial y^2$ donne :

$$\frac{\partial^2 h}{\partial y^2} \simeq -\frac{h}{xR} \quad (\text{II.23})$$

où $R=1/\kappa_r$ est le rayon de courbure transverse de la ligne de contact. Ainsi, ce terme de courbure introduit des forces capillaires supplémentaires qui commencent à apporter une contribution non négligeable dès que $R \sim x \sim h / \tan \theta_{rs}$. Cela a pour effet de retarder la déstabilisation de la ligne de contact et de décaler la transition de mouillage vers des nombres capillaires plus élevés. Ainsi, les gouttes en coin arrivent à ne pas perler. Notons que pour de petites hauteurs, c'est-à-dire pour $h \ll R \tan \theta_{rs}$, le terme de courbure est négligeable devant le terme visqueux, et la physique reste celle d'une ligne de contact droite.

Par intégration numérique, SNOEIJER obtient une valeur limite du nombre capillaire Ca_c au-delà de laquelle il n'y a plus de solution, et qui détermine la vitesse maximale de démouillage. Le seuil Ca_c augmente avec la courbure κ_r , ce qui implique que les gouttes peuvent éviter de mouiller le solide en augmentant la courbure de leur ligne de contact à l'arrière. On voit donc que pour retarder le dépôt de liquide, une ligne de contact a le « choix » entre s'incliner ou se courber fortement. On comprend donc bien comment la structure de « coin rond » peut survivre sans mouillage forcé : ces deux lignes de contact inclinées et la jonction les reliant sont tous les trois en dessous du seuil de mouillage forcé.

Comparons maintenant quantitativement la valeur théorique du nombre capillaire critique de démouillage Ca_c aux données expérimentales. La valeur numérique de Ca_c est tracée en ligne pleine sur la Figure II-16, et diffère des résultats expérimentaux d'un facteur 2. Cette valeur est en fait extrêmement sensible aux conditions aux limites microscopiques portant sur l'angle de contact de reculée. En effet, par analogie avec le cas d'une ligne de contact droite (discuté au Chapitre I), nous avons au départ imposé un angle de contact égal à l'angle de contact d'équilibre θ_e lorsque l'on atteint une échelle suffisamment petite. De façon surprenante, si au lieu de prendre l'angle d'équilibre de YOUNG pour valeur de l'angle de contact microscopique on diminue cette valeur de 20%, cela rabaisse le nombre capillaire critique d'un

facteur 2. Nous obtenons alors la courbe tracée en pointillés sur la Figure II-16, qui s'ajuste assez bien sur les données expérimentales.

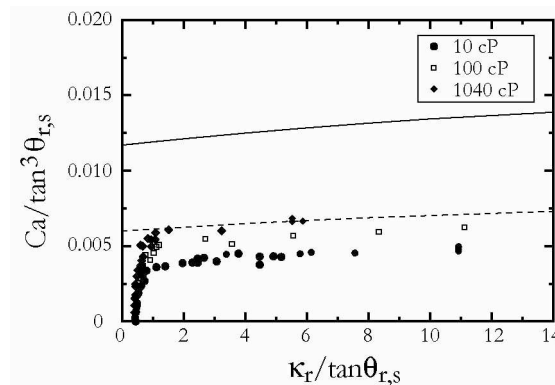


Figure II-16 : Nombre capillaire critique de dé mouillage comparé aux données expérimentales. La ligne en pointillés représente le nombre capillaire critique obtenu avec la condition initiale pour l'angle de contact microscopique $\theta_m = 0,8 * \theta_{r,s}$ au lieu de $\theta_m = \theta_{r,s}$ pour la ligne pleine.

Nombre de prévisions théoriques données par ce modèle de coin auto-similaire dans l'approximation de lubrification décrivent très exactement ce qui est observé expérimentalement (angles d'ouverture du coin, champ de vitesse [RIO (2005), SNOEIJER *et al* (2005)]). Le recalage sur les données induit par une diminution de l'angle de contact microscopique par rapport à l'angle de YOUNG pourrait alors suggérer qu'à grand nombre capillaire, l'angle microscopique diffère de l'angle d'équilibre. D'autres groupes trouvent également des indications qui vont dans ce sens, comme RAME *et al* (2004). Une différence semblable a été rencontrée par HOCKING (2001) dans le cas d'une plaque tirée hors d'un bain. De plus, THIELE *et al* (2001) ont constaté que, même à très faible échelle, les angles de contact diminuaient avec la vitesse. Les résultats présentés ici pourraient donc fournir des informations capitales sur les conditions aux limites microscopiques, qui restent une question fondamentale en ce qui concerne la description du mouillage dynamique.

II.7 Transition vers le cusp

Après avoir effectué une caractérisation détaillée du coin, disons quelques mots à propos du régime de cusp. En dehors d'une simple séparation de régime « à l'œil », observée grâce aux vues de dessus des gouttes, la transition de coin à cusp peut être confirmée grâce au graphique de la courbure transverse de la ligne de contact tracée sur la Figure II-14. En effet, la courbure arrière κ_r diverge à la transition coin/cusp, moment où la courbure de la pointe s'incurve vers l'extérieur.

Quant aux angles d'ouverture de la pointe, remarquons que la transition de coin à cusp se fait pour un angle d'ouverture du coin ϕ de 45° (la totalité du coin forme alors un angle droit), comme on peut le voir sur la Figure II-11 où $\sin \phi \sim 0,7$ à la transition. Ce résultat est relativement général puisqu'il se maintient pour les trois viscosités que nous avons essayées

($\eta=10$ cP, 104 cP et 1040 cP). Une analyse plus précise des résultats conduit à une valeur de l'angle d'ouverture du coin à la transition :

$$\varphi = 47^\circ \pm 2^\circ \sim \pi / 4$$

Au premier abord, cette valeur paraît un peu surprenante comparée à la valeur annoncée par PODGORSKI (2000), qui trouvait une transition pour un angle de 30° . En fait, ses méthodes de visualisations ne lui permettaient pas de distinguer précisément ce qui se passait très près de la pointe des gouttes, et il n'avait pas pu distinguer de régime de cusp, séparé du perlage.

Par contre, il est remarquable de noter que la valeur de φ que nous obtenons pour la transition coin/cusp correspond à celle annoncée par BEN AMAR *et al* (2001), (2003) qui suggère une transition pour $\varphi=\pi/4$. Pourtant, le modèle utilisé dans cet article (point selle avec angle de recul nul) est en contradiction avec la forme conique du coin que nous avons observée. Cet aspect mériterait donc que l'on s'y attarde dans le futur pour éclaircir cette transition.

II.8 Perlage

Nous en venons enfin au régime de perlage. Les autres régimes de gouttes étudiés jusqu'ici (ovale, coin, cusp) étaient stationnaires, mais le perlage lui ne l'est plus à proprement parler. Lorsque les gouttes perlent, elle émettent des gouttes satellites par la pointe et perdent donc de la matière. Mais, comme nous faisons glisser des trains de gouttes sur le substrat, les gouttes empruntent chacune un chemin déjà emprunté par une autre goutte avant elle et qui a donc déjà déposé des satellites sur la plaque. Ainsi, les gouttes perlantes larguent des gouttes satellites par la pointe arrière, mais ingèrent par l'avant les satellites de la goutte précédente, à la manière d'un « Pacman » (cf. Figure II-7). La conservation de la masse est donc assurée.

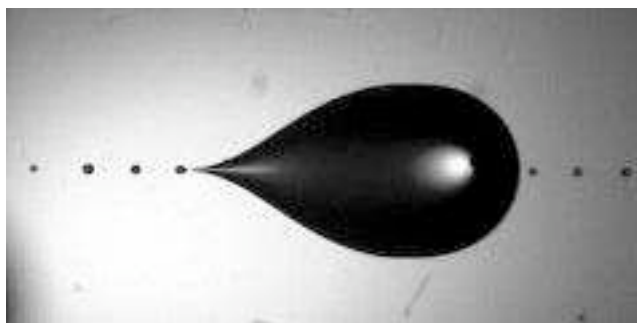


Figure II-17 : Goutte perlante d'huile silicone ($\eta=104$ cP), larguant de petites gouttes satellites derrière elle et en ingérant d'autres par l'avant. L'écoulement se fait de la gauche vers la droite. $Ca=7,19.10^{-3}$.

II.8.1 Transition de perlage

À la transition cusp/perlage, il est étonnant de voir que l'angle d'ouverture de la pointe vue de côté (Ω) n'est toujours pas nul et vaut environ 7° (cf. Figure II-12a). On aurait pu objecter à la transition en coin qu'elle n'est pas à proprement parler une transition de mouillage dynamique puisque le substrat reste sec après le passage de la goutte. Pour la transition de per-

lage, il y a bel et bien dépôt de liquide sur le substrat, alors que l'angle dynamique de recul est toujours non-nul.

Bien que le régime de cusp ne concerne qu'une faible bande de nombre capillaire, l'angle d'ouverture mesuré à la pointe extrême en vue de dessus (ϕ) chute de 45° , à la transition coin/cusp, à environ 30° à la transition cusp/perlage (voir Figure II-11a). PODGORSKI (2001) avait trouvé expérimentalement une transition de perlage pour un angle d'ouverture du coin $\phi = \pi/6$. Nous retrouvons donc bien cette valeur à condition de mesurer l'angle ϕ à la pointe des cusps et non en son point d'inflexion. De plus, en reprenant les idées de LIMAT & STONE sur les solutions auto-similaires du coin, mais en introduisant cette fois une longueur de glissement *ad hoc*, SNOEIJER a montré que la courbe $Ca(\phi)$ atteignait un maximum, qui définit la valeur critique de Ca au-delà de laquelle il devrait y avoir perlage (voir Figure II-18). Cette valeur est attendue pour un angle ϕ d'environ 25° [SNOEIJER *et al* (2006)] et est donc tout à fait compatible avec nos résultats expérimentaux. Malgré ses limites (coin rond), la modélisation du coin par un cône dans lequel on cherche des solutions auto-similaires semble véritablement robuste.

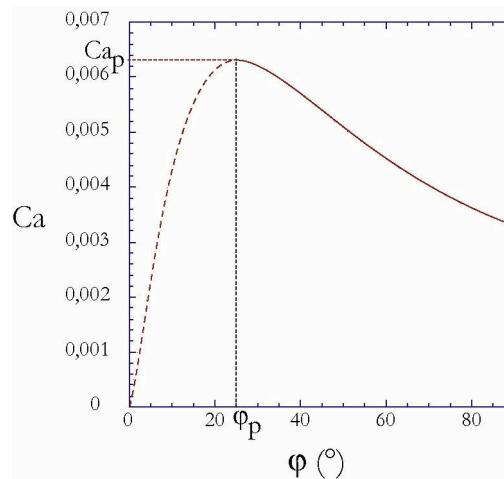


Figure II-18 : Courbe reliant le nombre capillaire à l'angle d'ouverture du coin ϕ , extraite de SNOEIJER *et al* (2006). Les gouttes sont sur la branche de droite. Au fur et à mesure que Ca augmente, l'angle ϕ se referme. Le maximum indique le seuil de perlage attendu pour notre huile silicone de 10 cP.

II.8.2 Gouttes satellites

En régime de perlage, la goutte principale largue de plus petites gouttes derrière elle. La rupture du filet qui se développe à l'arrière des gouttes se fait comme celle d'un filet d'eau sous un robinet qui se rompt en gouttes, et pourrait faire penser à une instabilité de type RAYLEIGH-PLATEAU [LIN & REITZ (1998)].

Juste au-delà du seuil de perlage, les gouttelettes, larguées de façon régulière, sont extrêmement petites (de l'ordre de $250 \mu\text{m}$ pour le diamètre des satellites de la Figure II-7e). Elles sont trop légères pour descendre le long de la plaque et restent alors fixées sur le substrat. Pour des vitesses de descente plus importantes de la goutte principale, la taille des gouttes satellites

augmente et peut éventuellement former une cascade de gouttes de plus en plus petites, comme illustrée sur la Figure II-19. Pour des vitesses encore supérieures, les gouttes satellites deviennent suffisamment grosses pour ne plus rester fixées au substrat et descendre elles aussi le long de la plaque à une vitesse qui dépend de leur volume. Il serait intéressant de mener une étude systématique sur la statistique de taille des gouttes satellites émises par la goutte principale, éventuellement en comparaison avec la largeur du filet qui se déstabilise à l'arrière de la goutte. Cela apporterait certainement des informations précieuses sur la compréhension du régime de perlage.

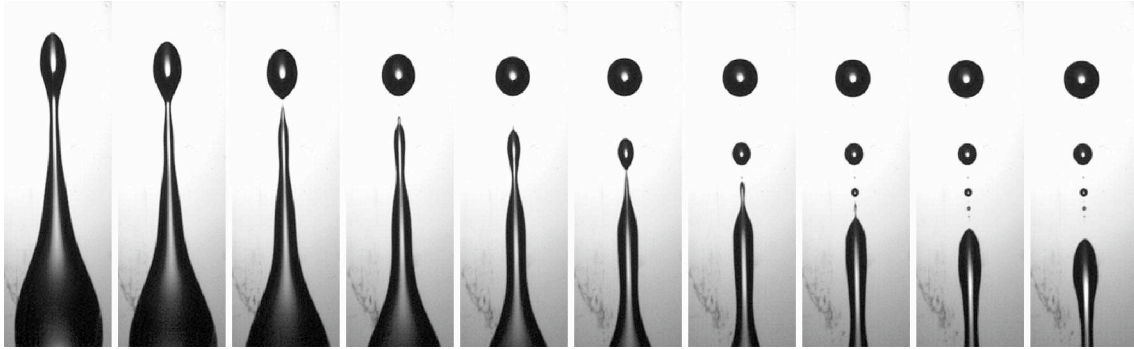


Figure II-19 : Dépôt d'une cascade de gouttelettes satellites en régime perlant.

Temps entre deux images : $1/3$ s. $\eta=104$ cP, $Ca = 15.10^{-3}$.

Les gouttes perlantes développent un filet à l'arrière, bien plus long que la petite pointe qu'on pouvait avoir dans les régimes précédents. On pourrait penser que la composante de la gravité dans le plan de la plaque : $g \sin\alpha$ conditionne la taille du filet qui se développe. C'est cette dernière approche qui est choisie par SNOEIJER *et al* (2006) pour tenter de modéliser la forme des gouttes perlantes.

II.8.3 Largeur du ruisseau arrière

Lors du perlage, les gouttes deviennent beaucoup plus longues qu'elles ne l'étaient pour des nombres capillaires inférieurs au seuil de perlage. Cela est essentiellement dû au développement d'un « ruisseau » à l'arrière de la goutte (voir Figure II-20). Les gouttes restent bien rondes à l'avant et une excroissance grandit à l'arrière. Ces ruisselets s'allongent et s'élargissent avec la vitesse de descente de la goutte.

Nous avons mesuré la largeur w des ruisselets pour différents nombres capillaires, pour l'huile la plus visqueuse (47V1000), car elle permet d'avoir des ruisselets d'épaisseur constante sur une plus grande gamme de nombre capillaire. Dans le cas des huiles moins visqueuses, le ruisseau se déstabilise plus rapidement et n'adopte plus une largeur constante (voir par exemple Figure II-19). Nous avons reporté sur la Figure II-21 la largeur w en fonction du nombre capillaire Ca , pour l'huile 47V1000.

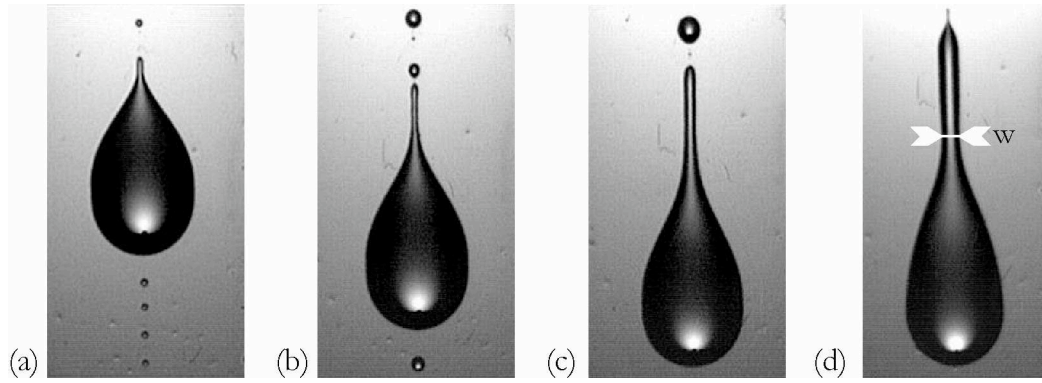


Figure II-20 : Développement du ruisseau à l'arrière des gouttes perlantes pour un nombre capillaire croissant. $\eta=1040$ cP. L'écoulement se fait du haut vers le bas.
(a) $Ca=8,93.10^{-3}$. (b) $Ca=9,92.10^{-3}$. (c) $Ca=11,42.10^{-3}$. (d) $Ca=14,91.10^{-3}$.

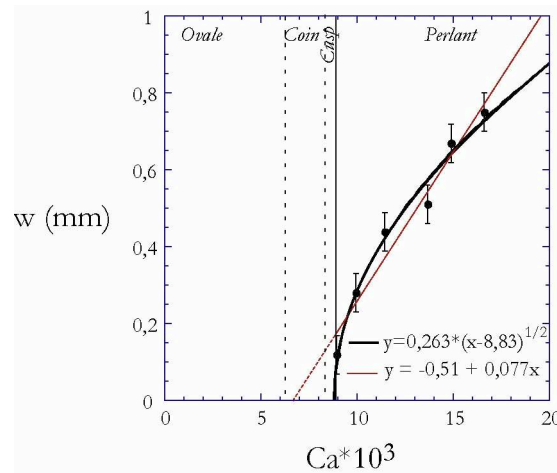
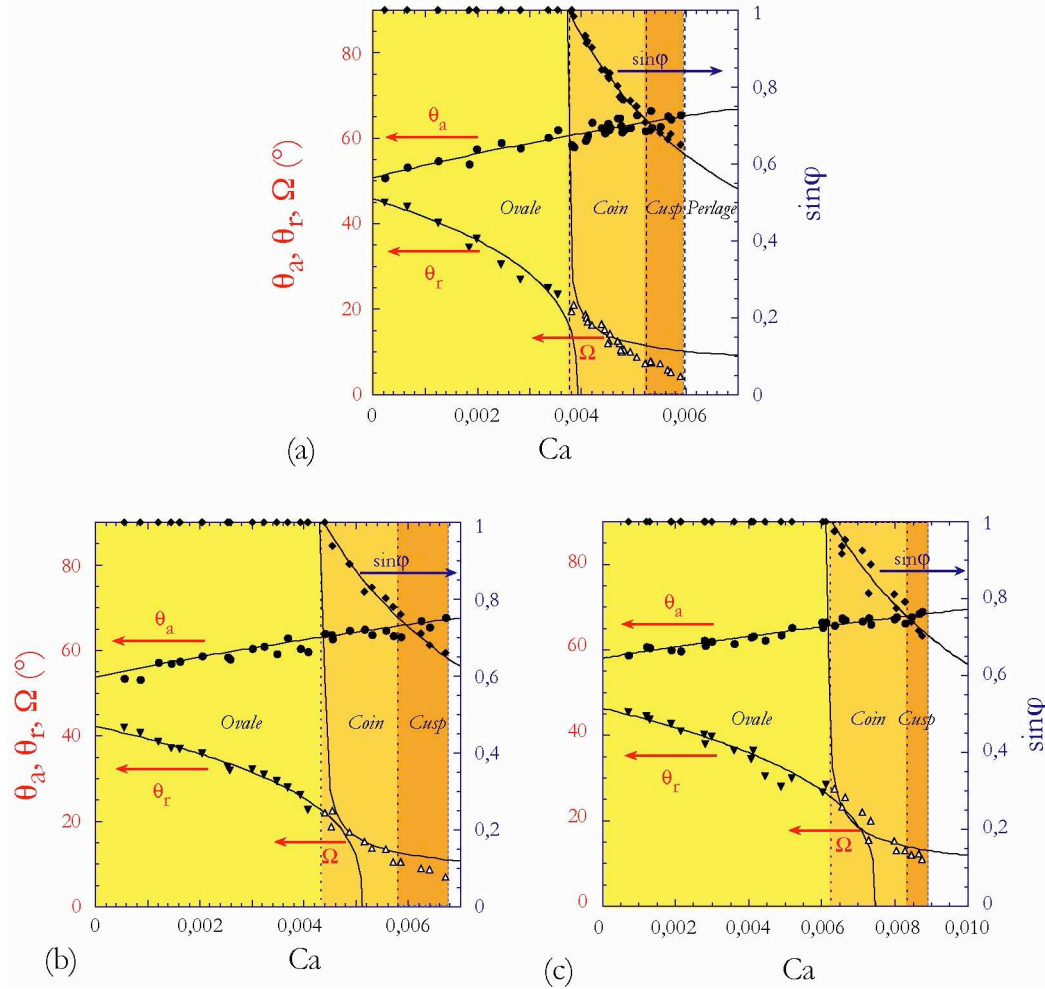


Figure II-21 : Largeur du ruisseau à l'arrière des gouttes perlantes en fonction du nombre capillaire pour l'huile 47V1000 ($\eta=1040$ cP). Le capillaire critique Ca_p au seuil de perlage est déterminé expérimentalement à $8,83.10^{-3}$. La ligne noire épaisse est un ajustement en racine de l'écart au seuil ; la ligne rouge fine est un ajustement par une droite.

Il semblerait que la largeur w des ruisselets augmente avec Ca comme une racine de l'écart au seuil $Ca-Ca_p$, mais il serait nécessaire d'effectuer des expériences complémentaires pour avoir plus de points, et ainsi s'assurer de la forme de la courbe $w(Ca)$. En effet, vu les erreurs sur nos points expérimentaux, un ajustement de la largeur du filet par une droite (avec une largeur de filet non-nulle au seuil de perlage) n'est pas non plus à exclure. Nous réalisons en ce moment des expériences supplémentaires concernant le perlage, en parallèle du développement de la modélisation de la forme des gouttes perlantes et de leur filet par SNOEIJER.

II.9 Conclusions et perspectives

Nous avons exploré en détail la forme que peuvent prendre des gouttes glissant sur un substrat non-mouillant de faible hystérésis. Une grande partie des résultats peut se résumer sur les trois graphiques de la Figure II-22, pour chacune des viscosités essayées ($\eta=10$ cP, 104 cP et 1040 cP). Nous y avons porté les mesures des angles de contact dynamique θ_a et θ_r ainsi que des angles d'ouverture du coin en vue de dessus (φ) et en vue de côté (Ω), et comparé ces données avec quelques lois proposées dans ce manuscrit.



La loi de COX & VOINOV a été portée sur ces trois graphiques et s'ajuste très bien sur nos données d'angles de contact. Rappelons toutefois que les modèles moléculaire-cinétique et linéaire peuvent aussi convenir pour décrire ces angles, mais la loi de COX-VOINOV permet de rendre compte de l'ensemble de nos données avec le même préfacteur logarithmique pour l'avancée et la reculée. Il faut noter que ces comparaisons de données expérimentales aux mo-

dèles ont été faites en y intégrant l'hystérésis de mouillage comme un décalage des courbes. Vu qu'expérience et théorie s'accordent bien, il semblerait que cette méthode de prise en compte de l'hystérésis convienne pour les faibles valeurs d'hystérésis que nous avons. Cela n'était pas évident *a priori* car elle aurait aussi pu provoquer des déformations plus complexes des courbes de mouillage.

Un résultat très important de notre étude est que, contrairement à ce qui était cru jusqu'à maintenant, le coin apparaît pour un angle de contact de reculée non nul ! Il n'est actuellement pas clair si, comme PODGORSKI le pensait, cette transition en coin est effectivement reliée à une transition de mouillage ou non. Mais, si l'on croit à cette idée relativement naturelle, alors nos données indiqueraient que la transition de mouillage forcée devrait se produire à un angle de reculée non nul (transition du premier ordre). Seul le modèle de mouillage de DE GENNES prévoit une telle transition [DE GENNES (1986)]. Cependant, ce modèle est controversé car il ne traite l'interface qu'approximativement, négligeant la courbure de l'interface [EGGERS (2004-b)].

Ce qui est préoccupant est que, d'un côté le modèle de COX & VOÏNOV prévoit correctement la forme de la courbe $\theta(Ca)$ mais est incapable d'expliquer la transition du premier ordre, et de l'autre côté, le modèle de DE GENNES prévoit cette transition du premier ordre, mais ne décrit pas correctement le reste de la courbe, du moins pour l'angle de reculée. Une solution de ce paradoxe pourrait se trouver dans les travaux de GOLESTANIAN & RAPHAËL (2001) et (2003). Ces auteurs ont montré que les hétérogénéités de surface (supposées être reliées à l'hystérésis de l'angle de contact), peuvent augmenter l'angle critique auquel la transition de mouillage forcée se produit. Il devient alors possible d'imaginer que l'approche de COX & VOÏNOV puisse coexister avec une transition du premier ordre à cause de l'hystérésis. Une autre direction possible est de remettre en question l'identification des transitions de forme de gouttes avec les lois de mobilité. L'existence d'une forme donnée est un problème global incluant à la fois des équations d'équilibre de la surface libre et des conditions aux limites à la ligne de contact [DUSSAN V. (1985), BEN AMAR *et al* (2003)]. Une résolution du problème complet au lieu du problème local de la ligne de contact déplacerait peut-être la transition.

Concernant les angles d'ouverture du coin, tout se passe comme l'angle de contact sur les deux lignes de contact inclinées du coin conservait la valeur θ_c , non nulle. En reprenant les idées de PODGORSKI pour la description de l'angle d'ouverture ϕ , et en remplaçant la condition $\theta_r=0$ par $\theta_r=\theta_c$, nous avons obtenu une nouvelle loi :

$$\sin \phi = \left(\theta_{r,s}^3 - \theta_c^3 \right) / \left[9 \ln(b/a) Ca \right]$$

qui décrit bien l'évolution de l'ouverture du coin et que nous avons également tracée sur la Figure II-22. Quant à l'angle d'ouverture Ω en vue de côté, la forme quasi-conique du coin et ses angles d'ouverture non-nuls sont en accord avec le modèle de coin de LIMAT & STONE (2004), mais pas avec celui de BEN AMAR *et al* (2003) qui postule une structure en point selle de l'interface. Toutefois, l'angle de transition $\phi \sim 45^\circ$ entre coins et cusps correspond à la valeur prédite par le modèle de BEN AMAR. Il est donc probable que ce modèle devienne plus significatif aux plus hauts nombres capillaires qui correspondent aux cusps, où la forme concave de la pointe pourrait mieux correspondre à la géométrie de point selle prévue par le modèle.

Un résultat fondamental qui se dégage de l'étude du coin est que la singularité est régularisée à sa pointe : le coin est arrondi ! La continuité observée entre θ_r juste avant la transition en coin et l'angle d'ouverture du coin en vue de côté (Ω) n'est alors en fait pas tellement surprenante. La ligne de contact restant arrondie, l'angle Ω mesuré à l'arrière du coin est encore un angle de contact, et nous ne devrions donc pas faire de distinction entre Ω et θ_r . Par contre, si Ω n'est autre que l'angle de contact θ_r , comment pourrait-il diverger à la transition en coin, divergence qui avait été obtenue par combinaison de l'équation $\sin\phi(Ca)$ et la prédiction de LIMAT & STONE reliant Ω à ϕ ? Il est fort probable que dans la réalité, la divergence obtenue par le modèle conique soit écrantée par la courbure du coin à la pointe. Ce nouveau paradoxe trouverait alors sa solution dans l'arrondi du coin, qu'il faudrait incorporer dans la modélisation pour améliorer les prédictions théoriques sur le régime en coin. Le cône pointu considéré par LIMAT & STONE pourrait par exemple être coupé par un plan parallèle décalé d'une faible distance par rapport à la pointe, ce qui permet d'obtenir un « demi cône arrondi ».

Bien que la courbure du coin semble résoudre bien des questions, elle pose un problème de fond concernant la transition de mouillage. En régime de coin, la vitesse de la ligne de contact à l'arrière du coin (qui est égale à la vitesse de la goutte puisque la ligne de contact n'est pas inclinée par rapport au mouvement de la goutte) est supérieure à la vitesse critique de dé-mouillage. Pourquoi alors un coin ne perle-t-il pas ? En repartant du modèle de coin de LIMAT & STONE et en incluant la courbure transverse à la pointe des gouttes, nous avons montré que cette courbure retarde la transition de mouillage et la décale vers des nombres capillaires plus importants [SNOEIJER *et al* (2005)]. Ainsi, les gouttes retardent leur transition de mouillage à la fois en inclinant la ligne de contact sur les côtés et en la courbant fortement à l'arrière.

Nous avons également commencé à étudier le perlage des gouttes. L'angle de transition $\phi \sim 30^\circ$ pour le perlage correspond à celui déjà trouvé par PODGORSKI (2000) et est proche de la valeur prédite par SNOEIJER *et al* (2006) en reprenant les solutions auto-similaires dans un cône. La largeur des filets qui se développent à l'arrière des gouttes augmente avec le nombre capillaire et son évolution pourrait être en racine de l'écart au seuil de perlage Ca_p , mais demande à être confirmée par des expériences supplémentaires. De nombreuses autres études seraient en effet à mener pour comprendre totalement le perlage. Entre autres, nous effectuons actuellement des mesures des angles ϕ et Ω tout au long de l'arrière des gouttes perlantes, parallèlement au développement de sa modélisation par SNOEIJER. Il serait également intéressant de regarder plus en détail l'espacement et la taille des gouttes satellites déposées sur le substrat en fonction de la vitesse de la goutte principale.

Enfin, il faudrait regarder si l'ensemble des résultats que nous avons obtenus ici est vraiment général et survit au changement de couple liquide/substrat, comme par exemple pour ces gouttes d'eau « spermatozoïdes » s'écoulant sur la couche de protection d'une plaque de plexiglas, et dont le ruisseau à l'arrière est particulièrement développé, sans pour autant que la goutte ne perle encore (photographie sur la Figure II-23) !



Figure II-23 : Goutte d'eau « spermatozoïde » dévalant un plan incliné en Plexiglas recouvert d'un film protecteur commercial de composition non communiquée.

Bibliographie du Chapitre II

- BEN AMAR M., CUMMINGS L. & POMEAU Y., 2001, Singular points on a receding contact line, *C. R. Acad. Sci.*, **329 (IIb)**, p. 277-282
- BEN AMAR M., CUMMINGS L. & POMEAU Y., 2003, Transition of a moving contact line from smooth to angular, *Phys. Fluids*, **15**, p. 2949-2960
- BIKERMAN J.J., 1950, Sliding of drops from surfaces of different roughness, *J. Colloid Sci.*, **5**, p. 349-359
- BLAKE T.D. & RUSCHAK K.J., 1979, A maximal speed of wetting, *Nature*, **282**, p. 489-491
- BLAKE T.D. & RUSCHAK K.J., 1997, Wetting : static and dynamic contact lines, *Liquid Film Coating - Scientific Principles and their Applications*, Éd. Kistler S.F. & Schweitzer P.M., Chapman & Hall, p. 63-97
- COX R.G., 1986, The dynamics of the spreading of liquids on a solid surface. Part 1 : Viscous flows, *J. Fluid Mech.*, **168**, p. 169-194
- DE GENNES P.-G., 1986, Deposition of Langmuir-Blodgett layers, *Colloid Polymer Sci.*, **264**, p. 463-465
- DE GENNES P.-G., HUA X. & LEVINSON P., 1990, Dynamics of wetting : local contact angles, *J. Fluid Mech.*, **212**, p. 55-63
- DELON G., 2006, Nature de la transition d'entraînement d'un film liquide, *Thèse de doctorat, Université de Paris 7, France*, à paraître
- DERJAGUIN B.V. & LEVI S.M., 1964, Film coating theory, *Focal Press*, London.
- DUSSAN V. E.B., 1985, On the ability of drops or bubbles to stick to non-horizontal surfaces of solids, Part 2 : small drops or bubbles having contact angles of arbitrary size, *J. Fluid Mech.*, **151**, p. 1-20
- DUSSAN V. E.B. & CHOW R. T.-P., 1983, On the ability of drops or bubbles to stick to non-horizontal surfaces of solids, *J. Fluid Mech.*, **137**, p. 1-29
- EGGERS J., 2004-a, Hydrodynamic theory of forced dewetting, *Phys. Rev. Lett.*, **93**, p. 094502-1-4
- EGGERS J., 2004-b, Towards a description of contact line motion at higher capillary numbers, *Phys. Fluids*, **16**, p. 3491-3494
- FURMIDGE C.G.L., 1962, Studies at phase interfaces, I. The sliding of liquid drops on solid surfaces and a theory for spray retention, *J. Colloid Sci.*, **17**, p. 309-324
- GOLESTANIAN R. & RAPHAËL E., 2001, Relaxation of a moving contact line and the Landau-Levich effect, *Europhys. Lett.*, **55 (2)**, p. 228-234

- GOLESTANIAN R. & RAPHAËL E., 2003, Roughening transition in a moving contact line, *Phys. Rev. E*, **67**, p. 031603-1-14
- HOCKING L.M., 2001, Meniscus draw-up and draining, *Eur. J. Appl. Math*, **12**, p. 105-208
- KIM H.-Y., LEE H.-J. & KANG B.-H., 2002, Sliding of liquid drops down an inclined solid surface, *J. Colloid Sci.*, **247**, p. 372-380
- KISTLER S.F. & SCHWEITZER P.M., 1997, Liquid film coating – Scientific principles and their technological implications, *Éd. Chapman & Hall*, 783 pages
- LE GRAND N., DAERR A., LIMAT L., 2005, Shape and motion of drops sliding down an inclined plane, *J. Fluid Mech.*, **541**, p. 293-315
- LIMAT L. & STONE H.A., 2004, Three-dimensional lubrication model of a contact line corner singularity, *Europhys. Lett.*, **65**, p. 365-371
- LIN S.P. & REITZ R.D., 1998, Drop and spray formation from a liquid jet, *Annu. Rev. Fluid Mech.*, **30**, p. 85-105
- NGAN C.G. & DUSSAN V. E.B., 1982, On the nature of the dynamic contact angle : an experimental study, *J. Fluid Mech.*, **118**, p. 27-40
- PODGORSKI T., 2000, Ruissellement en conditions de mouillage partiel, *Thèse de doctorat, Université de Paris 6, France*, 186 pages
- PODGORSKI T., FLESSELLES J.-M. & LIMAT L., 2001, Corners, cusps and pearls in running drops, *Phys. Rev. Lett.*, **87**, p. 036102-036105
- POMEAU Y., 2000, Représentation de la ligne de contact mobile dans les équations de la mécanique des fluides, *C. R. Acad. Sci., Mécanique des fluides*, **328 (IIb)**, p. 411-416
- POMEAU Y., 2002, Recent progress in the moving contact line problem : a review, *C. R. Mécanique*, **330**, p. 207-222
- RAME E., GAROFF S. & WILLSON K.R., 2004, Characterizing the microscopic physics near moving contact lines using dynamic contact angle data, *Phys. Rev. E*, **70**, p. 031608-1-9
- RIO E., 2005, Gouttes, flaques et arches sèches : des lignes de contact en présence d'un écoulement, *Thèse de doctorat, Université Paris 6*, 244 pages
- RIO E., DAERR A., ANDREOTTI B. & LIMAT L., 2005, Boundary conditions in the vicinity of a dynamic contact line : experimental investigation of viscous drops sliding down an inclined plane, *Phys. Rev. Lett.*, **94**, p. 0245031-4
- RHODORSIL huiles, *Éd. par Rhône-Poulenc*
- RUIJTERS M.J., BLAKE T.D. & DE CONINCK J., 1999, Dynamic wetting studied by molecular modeling simulations of drop spreading, *Langmuir*, **15**, p. 7836-7847
- SNOEIJER J.H., RIO E., LE GRAND N., & LIMAT L., 2005, Self-similar flow and contact line geometry at the rear of cornered drops, *Phys. Fluids*, **17**, p. 072101-1-12.
- SNOEIJER J., EGGERS J., LIMAT L. & STONE H.A., 2006, Cornered drops and rivulets, *to be published*

- STONE H.A., LIMAT L., WILSON S.K., FLESSELLES J.-M. & PODGORSKI T., 2001, Corner singularity of a contact line moving on a solid surface, *C. R. Physique*, **3**, p. 103-110
- THIELE U., NEUFFER K., BESTEHORN M., POMEAU Y. & VELARDE M.G., 2001, Sliding drops in the diffuse interface model coupled to hydrodynamics, *Phys. Rev. E*, **64**, p. 06160-1-12
- VOĬNOV O.V., 1976, Hydrodynamics of wetting, *Fluid Dyn.*, **11**, p. 714-721

SECONDE PARTIE

ÉTUDE DES MÉANDRES

A PRÈS avoir étudié, dans une première partie, les différents régimes de gouttes en mouillage partiel, nous nous sommes intéressés aux écoulements à débit d'injection supérieur. Lorsque le débit est augmenté, les différents « wagons » du train de gouttes finissent par se rattraper, ce qui permet la formation d'un filet liquide. Sous certaines conditions, il arrive que le ruisseau se déstabilise et forme des méandres.

Ce qui est surprenant, c'est qu'une goutte qui s'écoule sur un substrat solide s'écoule toujours tout droit, sous l'effet de la gravité. Ainsi, on s'attend à ce que les filets d'eau fassent toujours de même et ne puissent s'écouler que tout droit. Les méandres se retrouvent alors souvent attribués à la contamination de la surface, mais il est improbable qu'elle soit l'origine des motifs sinueux réguliers que l'on arrive à obtenir. Pourquoi alors un filet d'eau se met-il ainsi à méandrer ? Quelles sont les conditions requises pour que le méandrage se développe ? Et surtout qu'est-ce qui régit la morphologie de ces filets qui ondulent ?

Nous allons tenter de répondre à ces questions en traitant tout d'abord le cas de méandres en mouillage partiel sur un support incliné, non soumis à l'érosion (contrairement au sol des rivières). Entre autres, nous mettrons en évidence le rôle fondamental de l'hystérésis de mouillage sur la forme de ces petits ruisselets méandrant. Le dernier chapitre est consacré à des méandres en mouillage total, confinés dans une cellule de Hele-Shaw, et sur lesquels nous avons regardé l'influence de la physicochimie. Privés d'hystérésis, les ruisselets arrivent tout de même à méandrer, mais différemment. Ce sera alors l'occasion de comparer les deux types de méandres obtenus.

Chapitre III.

Méandres stationnaires ~ Instabilité d'un filet liquide sur une plaque sans érosion



C E chapitre est consacré à l'étude de méandres sur un plan incliné, et à l'origine de cette instabilité. Une partie des résultats que nous avons obtenus est consultable dans l'article LE GRAND-PTEIRA *et al* (2006), joint dans l'Annexe H. Les quelques investigations sur l'effet de la viscosité, ainsi que le ruissellement sur le substrat commercial RainX ont bénéficié de l'aide de Stéphane LEGRAND, qui a mené ces expériences au cours d'un stage de troisième année de l'E.S.P.C.I.

III.1 Introduction

Le mot « méandre » provient du grec *Maiandros*, qui désigne un fleuve de Phrygie (actuellement en Turquie) montrant nettement cet effet, comme on peut le voir sur la Figure III-1b. L'intérêt de la communauté scientifique pour les méandres est venu surtout de la géophysique, pour tenter de comprendre les formes sinueuses des rivières [LEOPOLD & WOLMAN (1960), GORYCKI (1973)]. Il est aujourd'hui admis que le mécanisme de ces méandres fait intervenir l'érosion (à l'extérieur des virages) et le dépôt de sédiments sur le flanc intérieur [LIVERPOOL & EDWARDS (1995)]. Mais, les méandres ne sont pas l'apanage des surfaces érodables et peuvent aussi exister en l'absence d'érosion. En effet, il n'est pas rare d'observer des méandres sur le pare-brise d'une voiture par temps de pluie par exemple, sur les poêles ou le long d'un évier lorsque l'on fait la vaisselle (cf. Figure III-1a). Ce motif est en fait plus général puisque DRENCKHAN *et al* (2004) ont récemment identifié des méandres réguliers de solutions de surfactants, confinés dans une cellule de Hele-Shaw, mimant les ondulations de bords de Plateau dans les mousses. Ces méandres, en mouillage total, feront l'objet du Chapitre IV.

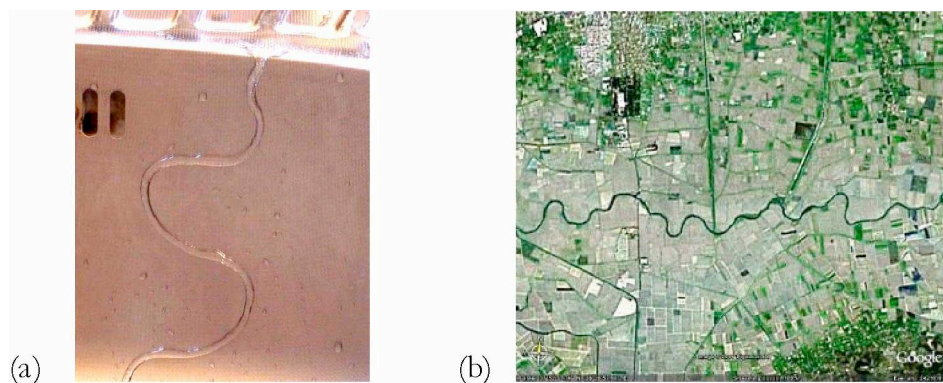


Figure III-1 : Méandres au quotidien. (a) Méandre d'eau sur la paroi verticale d'un évier en inox alvéolé. (b) Vue aérienne de la rivière *Maiandros* en Turquie (Google Earth).

Étonnamment, les méandres sans érosion n'ont été l'objet que de relativement peu d'études et demeurent un problème ouvert. CULKIN et NAKAGAWA ont effectué les premiers travaux expérimentaux importants sur les filets liquides descendant le long d'une plaque inclinée, et notamment sur les méandres [CULKIN (1982), CULKIN & DAVIS (1984), NAKAGAWA &

SCOTT (1984)]. NAKAGAWA a identifié quatre régimes d'écoulement, selon le débit imposé. Aux débits les plus faibles, le liquide s'écoule sous forme de gouttes, régime que nous avons déjà étudié dans la première partie du manuscrit. Pour des débits supérieurs, des méandres stationnaires se forment ; puis à débits encore plus importants, le ruisseau devient instable : le filet principal oscille et se divise en donnant naissance à de nombreux sous-filets. Enfin, aux débits les plus grands, le filet se restabilise en un filet droit dont la largeur n'est plus constante et prend une forme de feuilles de sauges [NAKAGAWA (1992), MERTENS *et al* (2004) et (2005)]. Il est surprenant de noter que NAKAGAWA ne voit jamais d'écoulement en filet droit de largeur constante, alors que ce régime a été répertorié par SCHMUKI & LASO (1990), qui ont également mené des investigations sur les effets de variation de la viscosité et de la tension de surface sur l'écoulement des ruisselets. Comment se fait-il qu'ils n'obtiennent pas les mêmes régimes d'écoulement alors qu'ils observent tous deux l'écoulement d'eau sur un plan incliné ?

D'un point de vue théorique, les analyses de stabilité des filets liquides ne sont pas nombreuses. Certaines négligent même l'écoulement longitudinal et sont principalement centrées sur des modes variqueux (variation de la largeur du ruisseau) et non sinueux (mouvement latéral du ruisseau avec conservation de sa largeur) [DAVIS (1980), SEKIMOTO *et al* (1987), YOUNG & DAVIS (1987), ROY & SCHWARTZ (1999)]. Elles ne concernent donc pas les méandres. Seuls deux articles traitent du seuil de l'instabilité de méandrage : KIM *et al* (2004), et BRUINSMA (1990) qui aborde le problème par analogie avec la statistique de polymères dirigés dans un réseau aléatoire. Pourtant, comprendre le mécanisme de méandrage et ses propriétés est un défi fondamental qui peut avoir des applications dans des domaines variés. Dans les échangeurs de chaleur par exemple, les changements entre les différents régimes d'écoulements peuvent induire d'importantes modifications du transfert de chaleur [GANIC & ROPPO (1980)]. La formation de méandres peut également être indésirable pour des processus d'enduisage [KISTLER & SCHWEITZER (1997)], sauf peut-être pour quelques applications spécifiques. Les méandres peuvent aussi jouer un rôle important dans l'industrie aéronautique, diminuant l'efficacité aérodynamique et contrôlant les motifs de formation de la glace sur les ailes dans des conditions de gel [MARSHALL & ETTEMA (2000)]. Détenir des connaissances sur la stabilité et les caractéristiques des méandres pourrait donc être à terme une aide précieuse pour optimiser certains procédés industriels.

Jusque-là, il n'y a eu aucune étude précise menée sur la morphologie des méandres dans des conditions reproductibles, ni de suggestion de modèle hydrodynamique simple pour tenter d'expliquer le phénomène. Dans ce chapitre, nous avons étudié les seuils du régime de méandre et la forme qu'ils prennent en fonction des paramètres de contrôle : le débit de liquide et l'inclinaison du substrat. Nous proposons quelques interprétations physiques du phénomène, en nous concentrant particulièrement sur l'importance du rôle de l'hystérésis de mouillage.

III.2 Montage expérimental

Pour l'étude du ruissellement de filets liquides sur un substrat non-mouillant, nous avons choisi de travailler avec le liquide le plus commun : l'eau (tension de surface $\gamma=72$ mN/m et viscosité cinématique $\nu=0,9$ mm²/s). Les plaques rigides sur lesquelles nous faisons s'écouler l'eau ont été prises longues (1,20 m de long sur 50 cm de large) de façon à pouvoir rendre

compte d'éventuelles variations de l'écoulement avec la distance à l'injection. L'angle d'inclinaison α de la plaque par rapport à l'horizontale peut être modifié à souhait, entre 0° et 87° (cf. Figure III-2).

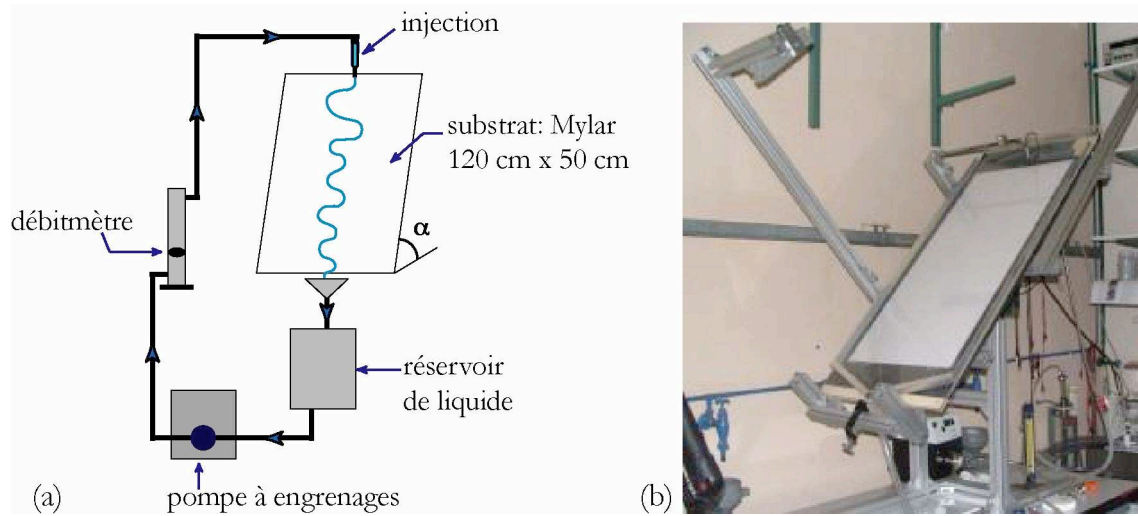


Figure III-2 : Montage expérimental. (a) Schéma du montage. (b) Photographie du dispositif.

L'injection se fait par l'intermédiaire d'une pipette en plastique biseautée, et dont le biseau est accolé au substrat (cf. Figure III-3). L'eau est récupérée au bas de la plaque dans un réservoir et est pompée pour être réinjectée en haut du substrat. Le dispositif fonctionne ainsi en circuit fermé. La constance du débit appliqué étant cruciale pour l'obtention de méandres stables, nous avons utilisé une pompe à engrenages, ISMATEC BVP-Z, qui fournit un débit Q constant (variations du débit inférieures à 1%) et réglable. La valeur du débit est déterminée grâce à un débitmètre de précision de chez « AALBORG ».

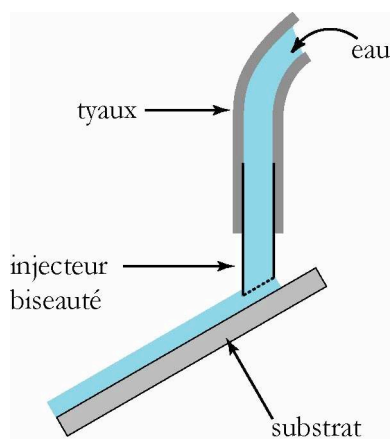


Figure III-3 : Description du système d'injection du liquide sur la plaque inclinée.

Les plaques sont recouvertes par des feuilles de Mylar, marque déposée appartenant à « DUPONT TEIJIN FILMS » et se rapportant à une famille spécifique de feuilles plastiques, faites de résine de polyéthylène téréphtalate (PET). Le Mylar est plaqué par capillarité sur le support

rigide. Ce substrat assure des conditions de mouillage partiel pour l'eau avec un angle statique d'avancée $\theta_{a,s}=70^\circ\pm 2^\circ$ et un angle de reculée $\theta_{r,s}=35^\circ\pm 2^\circ$. De plus, il réduit les problèmes d'électricité statique comparé aux autres plastiques usuels. Des essais avec d'autres substrats n'ont généralement pas été concluants. Soit les méandres ne se forment pas de façon reproductible, comme dans le cas du plexiglas (polyméthacrylate de méthyle, PMMA), soit ils sont très instables car les angles de contact sont trop importants ($\theta_{a,s}=105^\circ\pm 3^\circ$ et $\theta_{r,s}=80^\circ\pm 3^\circ$), comme avec le polypropylène (PP), ou encore on n'arrive même pas à former de filet car il se brise systématiquement en gouttes, comme dans le cas du Téflon (polytétrafluoroéthylène, PTFE). Le Mylar s'est donc montré le plus adapté à l'étude des méandres. Il faut tout de même changer périodiquement l'eau distillée et le substrat en Mylar, car les ruisselets finissent par développer des films de mouillage derrière eux lorsqu'ils se déplacent sur du Mylar vieilli.

Nous disposons de deux paramètres de contrôle : l'inclinaison α de la plaque et le débit Q du liquide injecté. Les séries de mesures que nous allons présenter dans ce manuscrit ont été effectuées à inclinaison constante et en faisant varier le débit sur toute la gamme des méandres, puis en changeant d'inclinaison. Des films et photographies des expériences sont pris grâce à un appareil photo numérique placé à 1 m au-dessus de la plaque de Mylar, perpendiculairement à celle-ci. Les images prises sont donc légèrement déformées par la perspective (cf. Figure III-4a), mais sont redressées numériquement pour leur traitement, par l'intermédiaire du logiciel ImageJ (cf. Figure III-4b).

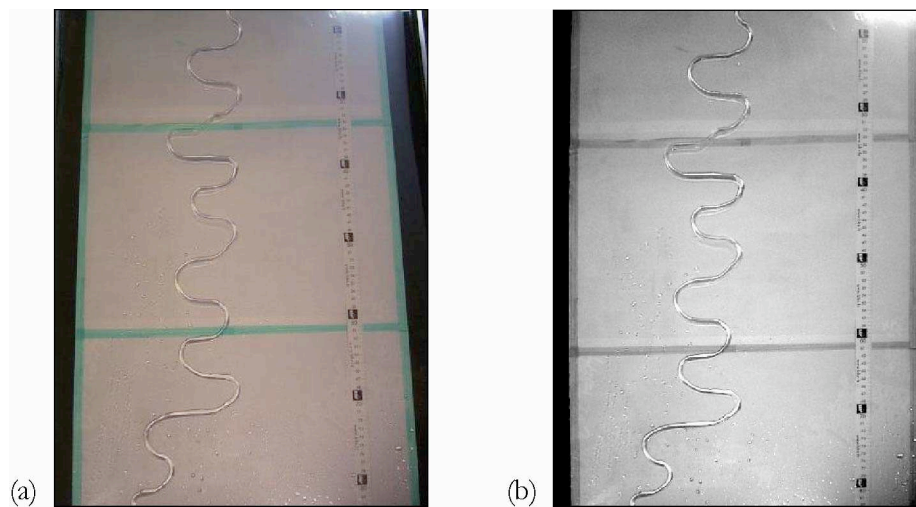


Figure III-4 : Méandre d'eau sur du Mylar pour une inclinaison $\alpha=32^\circ$ et un débit $Q=1,40$ mL/s. (a) Image d'origine, déformée par la perspective. (b) Image redressée (et transformée en niveaux de gris) après application du filtre de redressement d'images du logiciel ImageJ.

III.3 Les différents écoulements rencontrés

Les manipulations reportées dans ce manuscrit ont été effectuées à *débit croissant*. La différence obtenue pour des débits décroissants est détaillée dans la section III.8.

III.3.1 Les régimes à débit croissant

En augmentant le débit pour une inclinaison donnée, nous trouvons cinq régimes d'écoulement. Aux plus faibles débits, l'écoulement se fait en gouttes. Nous avons déjà étudié les écoulements de gouttes au chapitre précédent, pour des gouttes d'huile silicone visqueuses sur un substrat fluoré. En augmentant le débit, on arrive à former un filet liquide. Comme on peut le voir sur la Figure III-5a, le ruisseau formé aux plus bas débits est droit ! Ses variations d'amplitude ne sont au plus que de l'ordre de la largeur w du filet, et sont imputables aux défauts de la plaque de Mylar. Rappelons que NAKAGAWA & SCOTT (1984) ne voyaient pas ce régime, pourtant très commun, et ne notaient qu'un passage direct des gouttes à un filet méandrant.

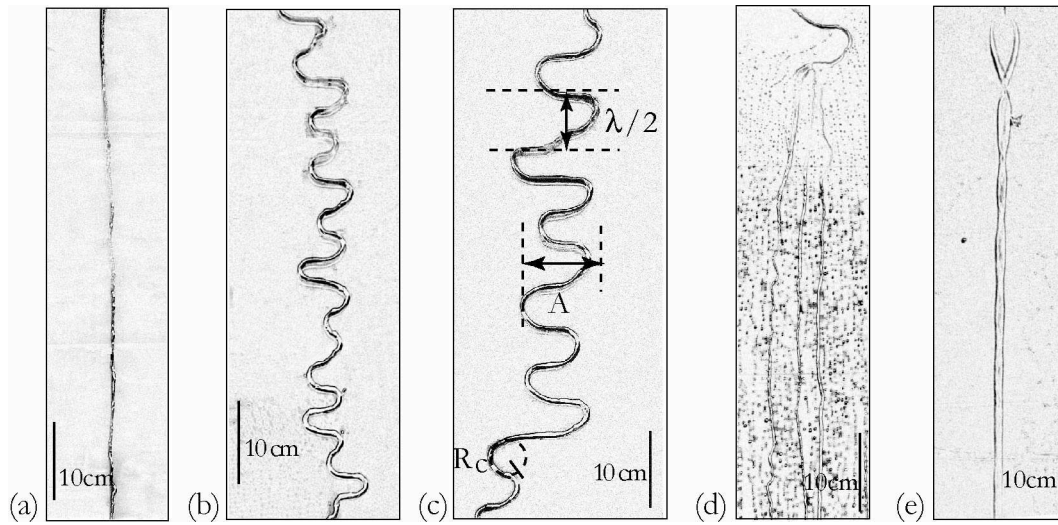


Figure III-5 : Filet d'eau s'écoulant sur une plaque de Mylar pour des débits croissants. $\alpha=32^\circ$. (a) Filet droit, débit $Q=0,50$ mL/s. (b) et (c) Méandres stationnaires, $Q=1,08$ mL/s et $Q=1,40$ mL/s respectivement. (d) Régime instable, $\alpha=80^\circ$, $Q=1,27$ mL/min (e) Restabilisation en feuilles de sauge, $\alpha=80^\circ$, $Q=10,2$ mL/s.

Au-delà d'un premier débit critique Q_{c1} , dépendant de l'inclinaison de la plaque, la solution en filet droit n'est plus stable et le ruisseau change radicalement de comportement en se mettant à faire des méandres (cf. Figure III-5b et c). La frontière filet droit/méandres est très bien marquée (pour l'eau en tout cas) les méandres ayant une amplitude de l'ordre du centimètre au seuil, pour des ruisselets de largeur millimétrique. La particularité de ces méandres est qu'après un transitoire de mise en place, ils adoptent une forme stationnaire, bien définie et particulièrement stable. Le liquide continue bien évidemment de s'écouler à l'intérieur du filet, mais extérieurement, celui-ci apparaît comme figé sur la plaque.

Si l'on continue d'augmenter le débit au-delà d'un deuxième débit seuil Q_{c2} , les méandres n'arrivent plus à se stabiliser. À l'image de l'embout libre d'un tuyau d'arrosage [DE LANGRE (2001)], le filet balaye indéfiniment la plaque de gauche à droite et de droite à gauche, sans jamais trouver de position d'équilibre. Dans ce régime, le filet principal se sépare en plusieurs sous-filets (cf. Figure III-5d), brisures déjà étudiées par SCHMUKI & LASO (1990). Enfin, à des débits bien plus élevés (de l'ordre de dix fois le seuil d'apparition des ruisselets instables),

le filet se restabilise et redevient droit (voir Figure III-5e). Sa largeur n'est par contre pas constante et présente une structuration qui fait penser à une feuille de sauge [CLANET & PODGORSKI (non publié), NAKAGAWA (1992), MERTENS *et al* (2004) et (2005)].

III.3.2 Développement des méandres

Revenons plus particulièrement sur le régime de méandres et sur la manière dont ils se développent. Des perturbations (défauts de surface, mouvements d'air, ...) créent de petits virages, de taille typique comparable à la largeur w des ruisselets, qui s'amplifient latéralement et vers le bas (voir Figure III-6). Il n'a pas été observé d'emplacement systématique où débutent les premiers virages des méandres. Les premières boucles peuvent se former indifféremment tout près de l'injection, tout en bas de la plaque, ou n'importe où entre ces deux extrémités. La vitesse typique de croissance des méandres est de l'ordre de 1 mm/s, c'est-à-dire qu'elle est bien plus faible que celle de l'écoulement du fluide dans le filet qui vaut typiquement 1 m/s.

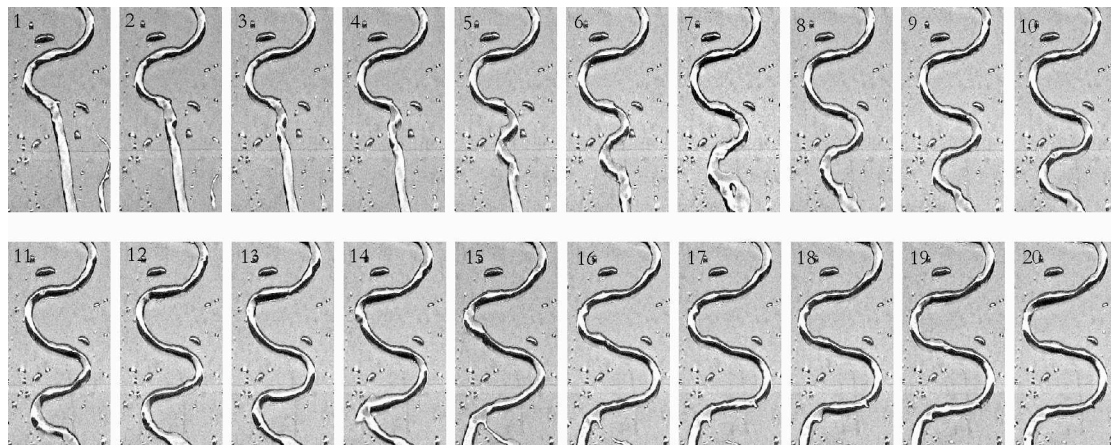


Figure III-6 : Formation d'un virage d'eau distillée sur du Mylar. L'écoulement se fait du haut vers le bas. Inclinaison de la plaque $\alpha=32^\circ$ et débit $Q=1,19$ mL/s. Les images sont séparées par un intervalle de temps de 1/3 s.

Une fois le premier virage amorcé, les méandres se « propagent » toujours vers l'aval, en ce sens que la partie supérieure reste fixée et que de nouveaux virages se développent juste en dessous de la boucle initiale. Afin d'observer la mise en place des méandres sur toute la longueur de la plaque, nous avons pris des séquences d'images des filets à intervalles réguliers (voir extraits en Figure III-7). On peut y voir le développement des méandres se propager vers le bas de la plaque au cours du temps.

Si la première boucle n'avait pas été située tout en haut de la plaque, une nouvelle déstabilisation aurait également fini par se créer quelque part en amont. Cette nouvelle boucle se développe elle aussi et crée de nouveaux virages en dessous d'elle, qui vont inévitablement finir par atteindre le motif précédent, et le détruire pour en créer un nouveau. Nous n'avons pas constaté de vitesse caractéristique très bien définie pour le déplacement du front de méandres, mais l'ensemble d'un motif de méandre met entre 10 minutes et deux heures pour s'installer sur toute la longueur de la plaque.

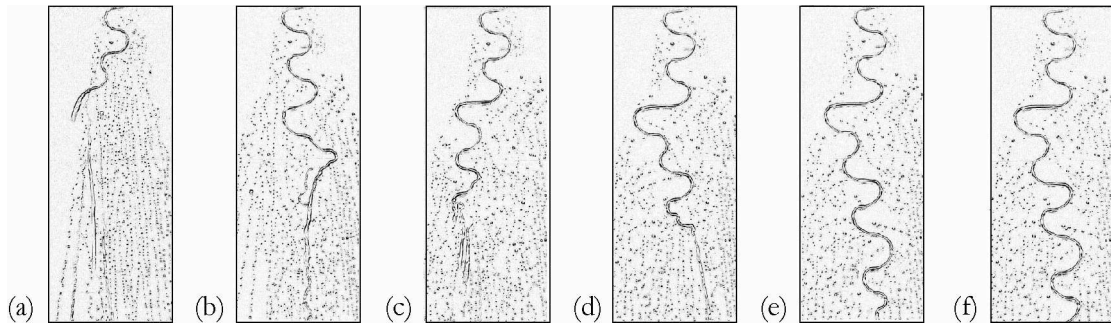


Figure III-7 : Séquence d'images montrant la mise en place d'un méandre. Temps entre deux images : 1 min. $\alpha=32^\circ$, $Q=1,21$ mL/s.

III.3.3 Stabilité des méandres stationnaires

Une fois leur forme stationnaire atteinte, les méandres ne bougent plus et sont particulièrement stables. Nous avons photographié un méandre stationnaire toutes les deux minutes pendant 12 heures, puis à nouveau 12 heures plus tard et le méandre n'a absolument pas bougé pendant ces 24 h (voir Figure III-8). La seule différence que l'on constate entre les deux images, prises à 12 heures d'intervalle, concerne les gouttes déposées par le filet liquide sur le substrat lors de la mise en place du méandre. Ces gouttes, n'étant plus alimentées une fois que le méandre a trouvé son chemin, se sont évaporées dans les 12 heures en laissant le méandre seul sur la plaque. Les méandres sont donc très stables dans le temps. Ils résistent aussi très bien aux vibrations mécaniques (tapes sur le substrat, secousses données dans le bâti du dispositif, courants d'air, ...). Par contre, il est crucial que le débit Q imposé soit particulièrement constant car la forme adoptée par les méandres est fortement liée au débit (voir section III.5.3), ce qui fait qu'ils peuvent être facilement cassés par de faibles variations de débit.

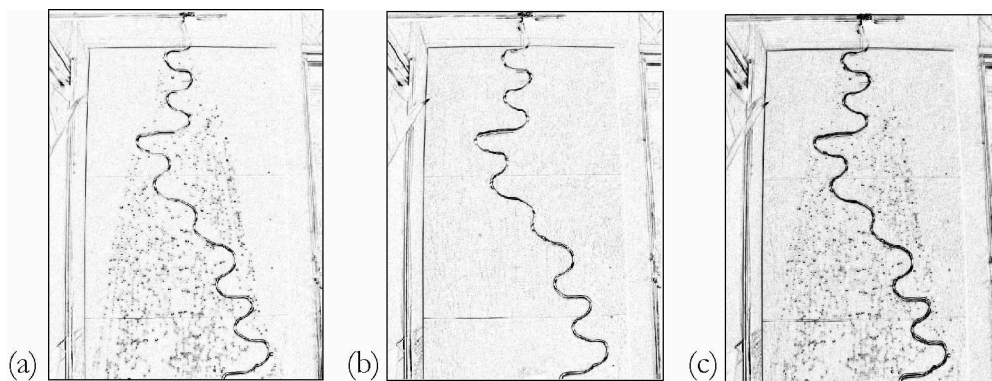


Figure III-8 : Illustration de la stabilité des méandres stationnaires. $\alpha=32^\circ$, $Q=1,19$ mL/s. Un même méandre pris au temps (a) $t=0$ et (b) $t=12$ h. (c) Produit des images (a) et (b) montrant que le méandre n'a pas bougé.

III.4 Seuils de méandrage

III.4.1 Détermination des seuils

Afin de bien caractériser le domaine d'existence des méandres stationnaires, j'ai relevé les valeurs des débits d'apparition (Q_{c1}) et de disparition (Q_{c2}) en fonction de l'inclinaison α de la plaque sur laquelle s'écoule le liquide. Le premier seuil se définit très clairement puisqu'il s'agit du passage d'une configuration rectiligne à un méandrage d'amplitude centimétrique (pour plus de détails, voir l'amplitude des méandres en fonction du débit à la Figure III-13a). Il est également possible de déterminer précisément le deuxième seuil car le filet se brise alors en sous-filets multiples et n'arrive même plus à stabiliser un seul virage. Les résultats obtenus sont contenus dans la Figure III-9. Les deux seuils s'abaissent avec l'inclinaison α de la plaque. Les valeurs atteignent presque un plateau pour des inclinaisons supérieures à 45° , alors qu'elles augmentent fortement aux petites inclinaisons α .

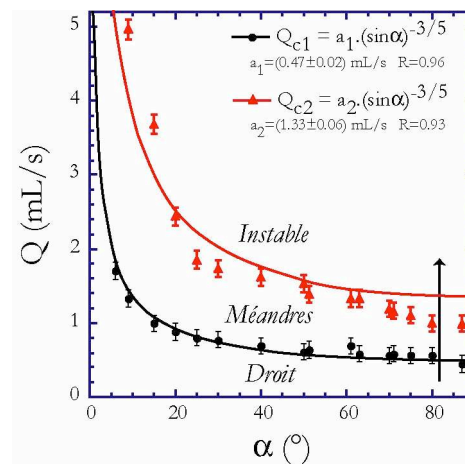


Figure III-9 : Seuils du régime de méandres stationnaires en fonction de l'inclinaison α de la plaque par rapport à l'horizontale. Les valeurs sont déterminées par augmentation du débit pour une inclinaison donnée.

Les courbes des deux seuils (seuil de méandres et seuil de filet instable) ont à peu près la même forme, avec simplement un facteur multiplicatif plus élevé pour le seuil supérieur. Nous avons ajusté les valeurs par une loi de puissance en sinus de l'inclinaison, et les seuils suivent une loi en $\sin^{-3/5} \alpha$. Ce résultat est proche de celui prédit par BRUINSMA (1990) qui proposait une loi en $\tan^{-3/5} \alpha$. Nous n'avons pas encore d'explication pour la loi du deuxième seuil, mais par contre, nous avons réussi à expliquer la loi de puissance du seuil de méandrage par de simples arguments hydrodynamiques, que nous allons détailler ci-dessous.

III.4.2 Interprétation physique du seuil de méandrage

III.4.2.1 Forces en jeu

Nous avons élaboré un modèle pour comprendre la dépendance du seuil de déclenchement des méandres avec l'inclinaison. Pour cela, nous avons équilibré les forces agissant sur le filet liquide. Il faut prendre en compte (voir schéma sur la Figure III-10a) :

- la gravité F_g , qui fait s'écouler le liquide vers le bas de la plaque,
- les forces d'inertie, F_i , qui tendent à accroître les virages des méandres,
- les forces d'accrochage sur le substrat, F_h , qui sont réactives, et donc stabilisantes dans le cas présent de la croissance des méandres,
- et enfin, les forces de tension de surface agissant le long des filets (tension de ligne T_γ) et résultant en une force F_γ s'opposant à la courbure du ruisseau et donc qui le stabilisent également.

Comme nous nous intéressons ici à une déstabilisation latérale du filet droit, la gravité n'intervient donc pas dans ce bilan. L'instabilité de méandrage pourra se développer lorsque l'inertie, qui est la seule force déstabilisante, dominera les forces stabilisantes (accrochage sur le substrat et tension de surface).

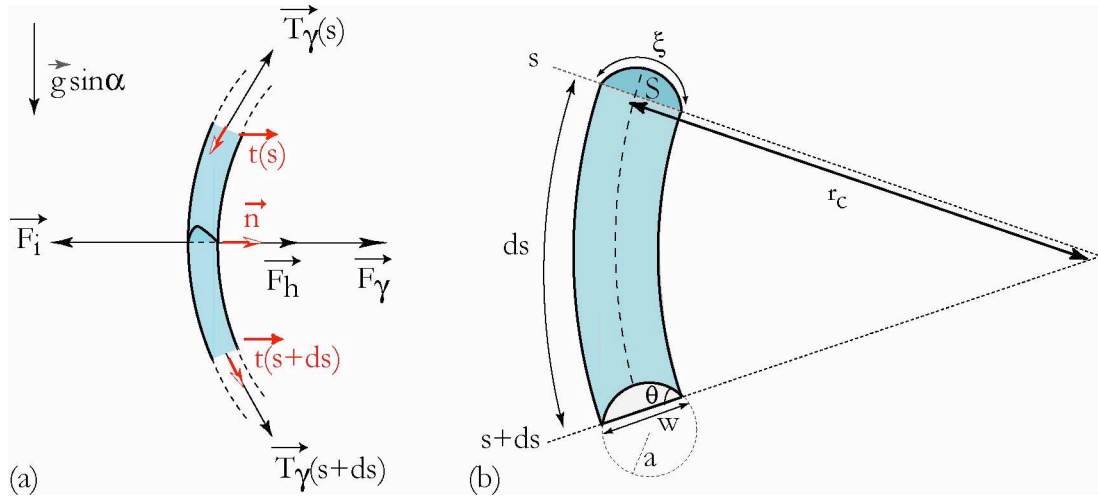


Figure III-10 : (a) Forces s'exerçant sur une portion de virage d'un filet liquide, dans le plan du substrat. (b) Notations pour le calcul de la force de tension de ligne T_γ qui s'exerce normalement sur une portion de méandre de rayon de courbure $r_c > a$.

Exprimons toutes ces forces, s'exerçant sur une portion de méandre de section S et de longueur ds (cf. Figure III-10b). Les forces d'inertie s'écrivent simplement :

$$\boxed{d\vec{F}_i = -\rho S \frac{v^2}{r_c} ds \vec{n}} \quad (\text{III.1})$$

où ρ est la masse volumique, v la vitesse quadratique moyenne du liquide dans le filet, r_c le rayon de courbure *initial* de la perturbation, et \vec{n} le vecteur unitaire normal au ruisseau, orienté

vers l'intérieur de la courbe (voir Figure III-10a). Ces forces sont les seules forces déstabilisantes de ce bilan et agissent normalement à la ligne de contact.

Les forces d'accrochage proviennent de la dissymétrie des méandres : l'angle de contact n'est pas le même sur le côté interne et externe des virages (cf. rappels dans la section I.3.4). Elles ont une résultante dans le plan du substrat, perpendiculairement à la ligne de contact, et dont la valeur maximale est donnée pour les angles statiques d'avancée et de reculée :

$$\left(d\vec{F}_h \right)_{\max} = \gamma \left(\cos \theta_{r,s} - \cos \theta_{a,s} \right) ds \vec{n} \quad (\text{III.2})$$

où $\theta_{a,s}$ et $\theta_{r,s}$ sont respectivement les angles statiques d'avancée et de reculée. Ces forces tendent donc à redresser le filet et s'opposent au développement du méandre.

Mais la tension de surface n'agit pas seulement perpendiculairement au filet. Elle agit aussi longitudinalement, ce qui fait que nous attendons une tension de ligne exercée par le reste du filet sur la portion de méandre considérée :

$$T_\gamma = C(\theta) \gamma w \quad (\text{III.3})$$

qui tend également à redresser le ruisseau (cf. Figure III-10a). $C(\theta)$ désigne une constante qui dépend de l'angle de contact moyen θ de notre portion de cylindre incurvée. Son calcul est complexe car il prend en compte la tension de surface eau/air γ , les termes de surface non-mouillée, et des termes de pression. Pour un filet courbe, cette tension de ligne se traduit par une contribution transverse $d\vec{F}_\gamma$:

$$d\vec{F}_\gamma = T_\gamma \vec{t}(s+ds) - T_\gamma \vec{t}(s) = T_\gamma ds \frac{d\vec{t}}{ds} = T_\gamma ds \frac{\vec{n}}{r_c} \quad (\text{III.4})$$

où \vec{t} représente le vecteur tangent au filet dans la base de FRENET définie par (\vec{n}, \vec{t}) , tel que représentée sur la Figure III-10a. On a finalement :

$$d\vec{F}_\gamma = C(\theta) \gamma \frac{w}{r_c} ds \vec{n} \quad (\text{III.5})$$

Détaillons à présent l'expression de la tension de ligne T_γ et donc en fait de $C(\theta)$. La tension exercée par le reste du méandre sur la portion considérée est égale à l'opposée de la résultante des forces exercées sur la portion que l'on aurait fictivement isolée. Considérons donc les forces s'exerçant sur la section S de la portion de filet isolée, située à l'abscisse curviligne s . Deux forces s'exercent sur S : des forces de pression et de tension superficielle. En négligeant la courbure longitudinale du ruisseau, les forces de pression sont égales à :

$$-S(p - p_{\text{atm}}) \vec{t}(s) = -S \frac{\gamma}{a} \vec{t}(s) \quad (\text{III.6})$$

où p représente la pression dans le filet, et p_{atm} la pression atmosphérique. La surface S peut s'exprimer en fonction de la largeur du filet w et de l'angle de contact θ uniquement :

$$S = \frac{w^2}{4 \sin \theta} \left(\frac{\theta}{\sin \theta} - \cos \theta \right) \quad (\text{III.7})$$

Comme la largeur w et le rayon a de la section S sont reliés par $w=2a \sin \theta$, la contribution des forces de pression devient :

$$-\frac{1}{2} \left(\frac{\theta}{\sin \theta} - \cos \theta \right) \gamma w \vec{t}(s) \quad (\text{III.8})$$

Quant à la contribution de la tension superficielle, elle contient elle-même deux parties :

- (i) l'interface eau/air donne un terme $\gamma \xi \vec{t}(s)$, où ξ représente la longueur de l'interface eau/air, normalement à la ligne de contact, et $\xi=2\theta a$
- (ii) la partie eau/substrat donne un terme correspondant à la différence d'énergie surfacique entre substrat sec et mouillé :

$$w(\gamma_{SL} - \gamma_{SG}) \vec{t}(s) = -w \gamma \cos \theta \vec{t}(s) \quad (\text{III.9})$$

La partie de tension superficielle contribue donc par un terme :

$$\left(\frac{\theta}{\sin \theta} - \cos \theta \right) \gamma w \vec{t}(s) \quad (\text{III.10})$$

Il est remarquable que la participation des forces de pression soit exactement la moitié, en norme, de celle des forces de tension superficielles. Au final, en additionnant les forces exprimées en (III.8) et (III.10), on obtient la résultante exercée sur la portion de méandre isolée :

$$\frac{1}{2} \left(\frac{\theta}{\sin \theta} - \cos \theta \right) \gamma w \vec{t}(s) \quad (\text{III.11})$$

La tension de ligne T_γ exercée par le reste du filet sur la portion considérée est l'opposée de la tension exercée sur la portion de méandre isolée, et s'écrit donc :

$$\boxed{\vec{T}_\gamma(s) = T_\gamma \vec{t}(s) = -\frac{1}{2} \left(\frac{\theta}{\sin \theta} - \cos \theta \right) \gamma w \vec{t}(s)} \quad (\text{III.12})$$

On retrouve bien que la tension de ligne est une force tangente au filet et proportionnelle à γw , la constante de proportionnalité $C(\theta)$, définie à l'équation (III.3), ayant pour expression :

$$\boxed{C(\theta) = \frac{1}{2} \left(\frac{\theta}{\sin \theta} - \cos \theta \right)} \quad (\text{III.13})$$

Ainsi, la force $d\vec{F}_\gamma$ résultante s'écrit :

$$d\vec{F}_\gamma = C(\theta) \gamma \frac{w}{r_c} ds \vec{n} = \frac{1}{2} \left(\frac{\theta}{\sin \theta} - \cos \theta \right) \gamma \frac{w}{r_c} ds \vec{n} \quad (\text{III.14})$$

III.4.2.2 Condition nécessaire (et suffisante ?) de méandrage

Par soucis de simplicité, posons :

$$F = \|\mathrm{d}\vec{F}\| / \mathrm{d}s \quad (\text{III.15})$$

L'instabilité pourra se développer lorsque la seule force déstabilisante (l'inertie F_i) dominera la somme des deux forces stabilisantes (la tension de ligne et des forces d'accrochage) $F_\gamma + F_h^{\max}$, c'est-à-dire lorsque :

$$F_i - F_\gamma \geq F_h^{\max} > 0 \quad (\text{III.16})$$

Tant que F_i est inférieure à F_γ , l'équation (III.16) n'a pas de solution, et le filet reste droit. Autrement dit, une condition nécessaire pour l'obtention de méandres est donc que l'on ait $F_i \geq F_\gamma$, soit :

$$\rho \frac{Q^2}{S} > \gamma C(\theta) w \quad (\text{III.17})$$

Remarquons que cet équilibre a l'avantage de faire s'éliminer les rayons de courbure initiaux r_c .

Si le terme d'accrochage peut être négligé, alors l'équation (III.17) est une condition nécessaire et suffisante de méandrage. Dans le cas où l'accrochage ne serait pas négligeable, l'expression (III.16) se réécrit :

$$\rho \frac{Q^2}{S} \geq \gamma C(\theta) w + \gamma (\cos \theta_{r,s} - \cos \theta_{a,s}) r_c \quad (\text{III.18})$$

Toutefois, si le rayon de courbure initial, r_c , varie comme la largeur w du filet (ce qui paraît raisonnable vu ce que l'on voit expérimentalement), alors la totalité du membre de droite serait proportionnelle à γw . Ainsi, même sans négliger l'accrochage sur le substrat, le seuil de méandrage devrait toujours suivre une relation du type :

$$\rho \frac{Q_{cl}^2}{S} \propto \gamma w \quad (\text{III.19})$$

Nous nous sommes donc intéressés plus particulièrement à la dépendance du seuil de méandrage avec les paramètres de contrôle, plutôt qu'à sa valeur exacte. Nous avons donc cherché à vérifier si la loi d'échelle donnée par notre modélisation est correcte.

Pour terminer le travail et obtenir une loi $Q_{cl}(\alpha)$, il reste à exprimer S et w en fonction du débit Q . Supposons que l'écoulement à l'intérieur du ruisseau est de type Poiseuille (nous reviendrons sur la pertinence de cette hypothèse dans la section III.7). La vitesse quadratique moyenne peut donc être reliée à la largeur w du filet par la relation :

$$v \propto w^2 \frac{g \sin \alpha}{\nu} \quad (\text{III.20})$$

où ν est la viscosité cinématique. En effet, celle-ci est égale à la vitesse moyenne à un simple facteur de proportionnalité près, dépendant de la forme exacte de la surface libre. En utilisant

ensuite la conservation du débit $Q=Sv$, et $S \propto w^2$, nous obtenons $Q \propto (g/v)w^4 \sin \alpha$. On en déduit la loi de puissance donnant le seuil de début de méandrage :

$$Q_{cl} \propto \left(\frac{\gamma}{\rho} \right)^{4/5} \left(\frac{v}{g} \right)^{3/5} \sin^{-3/5} \alpha \quad (\text{III.21})$$

Ainsi, grâce à ce simple modèle hydrodynamique prenant en compte l'inertie et la capillarité, on retrouve la proportionnalité en sinus de l'inclinaison à la puissance $-3/5$ qui a été tracée sur la Figure III-9. Cette loi d'échelle s'ajuste très bien aux données expérimentales. La loi du seuil de méandrage avec l'inclinaison n'avait, à notre connaissance, jamais encore été déterminée expérimentalement, ni retrouvée grâce à une modélisation hydrodynamique simple. Il faut tout de même reconnaître qu'une puissance du sinus en $-1/2$ au lieu de $-3/5$ est également en accord avec nos résultats. Expérimentalement, nous avons en fait plutôt un exposant $-0,55 \pm 0,05$.

Le calcul complet avec préfacteur, obtenu à partir de l'équation (III.17) et donc en négligeant l'hystérésis, ne redonne pas les valeurs expérimentales du seuil mais prévoit un facteur 5 trop bas (cf. Annexe D). Afin de quantifier l'importance de l'hystérésis sur le seuil, nous avons déterminé les ordres de grandeur des différentes forces qui s'exercent sur une portion de méandre, dans des conditions typiques pour le seuil. Le terme d'accrochage F_h^{\max} est constant, alors que les termes d'inertie et de tension de ligne croissent avec la courbure $1/r$ des virages (cf. équation (III.16)). En approximant la section du filet par une portion de disque d'angle de contact θ , nous avons vu que la section S du filet s'écrivait : $S = (\theta - \sin \theta \cos \theta) w^2 / (4 \sin^2 \theta)$. En prenant $\theta_{a,s} = 70^\circ$ et $\theta_{r,s} = 35^\circ$, $\theta = \theta_{\text{moy}} = (\theta_{a,s} + \theta_{r,s})/2 = 52,5^\circ$, $\gamma = 70 \text{ mN/m}$, $\rho = 1 \text{ kg/L}$, $Q \sim 1 \text{ mL/s}$ et $w \sim 4 \text{ mm}$, on trouve les ordres de grandeur suivants :

$$\begin{cases} F_h \sim 35 \text{ mN/m} \\ F_i \sim \frac{350}{r_c(\text{mm})} \text{ mN/m} \\ F_\gamma \sim \frac{75}{r_c(\text{mm})} \text{ mN/m} \end{cases} \quad (\text{III.22})$$

Comme l'inertie et la tension de ligne dépendent du rayon de courbure initial, nous l'avons séparé de l'estimation des forces. Expérimentalement, le rayon initial est de l'ordre du millimètre. Le terme d'accrochage est donc le plus faible des trois, mais n'est toutefois pas totalement négligeable.

La loi ne découlant que d'un équilibre entre inertie et tension de ligne, ne donne donc probablement qu'une valeur du seuil inférieure à la réalité et donc qu'une condition nécessaire au méandrage (les méandres ne pouvant pas se développer en dessous de ce seuil), mais pas suffisante. Notre modèle prévoit tout de même correctement la dépendance du seuil avec l'inclinaison du substrat en donnant la bonne loi de puissance. L'hystérésis ne devrait probablement pas être négligée, ce qui relèverait la valeur prédite du seuil et permettrait certainement d'obtenir une description encore plus quantitative des expériences.

III.5 Morphologie des méandres

III.5.1 Origine de la stationnarité des méandres

Avant d'étudier la forme finale des méandres, on peut se poser la question de leur stationnarité. Pourquoi, une fois que les méandres se sont déclenchés, finissent-ils par atteindre une forme stationnaire et ne continuent-ils pas à croître indéfiniment ?

Nous avons vu à la section III.4.2.1 que les forces d'accrochage F_h étaient constantes et s'opposaient au développement des méandres. Au contraire, les forces d'inertie et la tension de ligne sont proportionnelles à l'inverse du rayon de courbure des ruisselets. Au départ, quand une petite perturbation se crée, elle s'accroît car elle a un très faible rayon de courbure (de l'ordre du millimètre), ce qui permet à l'inertie de dominer la capillarité et l'accrochage. Par contre, plus la perturbation s'amplifie, plus le rayon de courbure des filets augmente, ce qui diminue l'inertie et les forces de tension de ligne. Les forces d'accrochage finissent donc par être suffisamment fortes pour dominer la tension de ligne, mais surtout contrebalancer l'inertie. C'est ainsi que les méandres finissent par se stabiliser et atteindre une forme stationnaire.

III.5.2 Forme locale des méandres

Afin de rendre compte de la forme des méandres stationnaires, nous avons mesuré sur chaque virage de différents méandres obtenus pour divers débits Q et inclinaisons α , les grandeurs suivantes : l'amplitude A , la « demi-longueur d'onde » $\lambda/2$ et le rayon de courbure R_c au sommet des courbes (voir Figure III-11). La notation avec un R majuscule sera réservée exclusivement à la forme *finale* atteinte par les méandres, par opposition par exemple au rayon r_c qui désignait le rayon de courbure de la perturbation *initiale* des méandres. Nous obtenons les valeurs locales de A et de $\lambda/2$ directement en relevant les positions des sommets des virages sur les photographies de méandres (dont la perspective est préalablement corrigée grâce au logiciel ImageJ) et en regardant la différence d'abscisse et d'ordonnée de deux virages consécutifs. La valeur du rayon de courbure local est obtenue en ajustant la forme du méandre par un cercle (cf. Figure III-11). Le rayon du cercle osculateur donne alors la valeur du rayon de courbure.

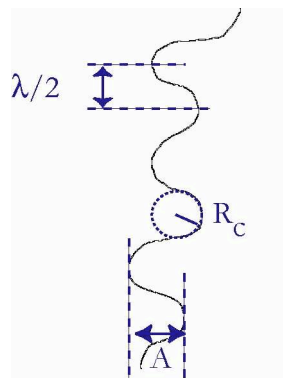


Figure III-11 : Schéma de méandre montrant les caractéristiques locales relevées : amplitude A , demi-longueur d'onde $\lambda/2$ et rayon de courbure au sommet R_c .

Nous avons relevé A , $\lambda/2$, et R_c sur chaque virage de nombreux méandres obtenus pour une grande gamme d'inclinaisons : $\alpha = 6^\circ, 9^\circ, 20^\circ, 32^\circ, 41^\circ, 51^\circ, 61^\circ, 70^\circ, 80^\circ$, et 87° . En traçant un histogramme des valeurs relevées, nous sommes parvenus à déterminer la distribution des grandeurs locales. Comme nous n'avons qu'au mieux que 25 virages par méandre, et donc que 25 mesures de A , λ et R_c , cela ne donne que peu de valeurs pour tracer l'histogramme. Afin d'augmenter la statistique, nous avons pris en compte l'ensemble des méandres traités, tous débits et toutes inclinaisons confondus, sur un même histogramme. Il est possible de superposer toutes les distributions rattachées à un unique méandre si la forme des distributions est indépendante du méandre considéré (la valeur moyenne et l'écart-type peuvent toujours dépendre des paramètres de contrôle Q et α). Nous avons tracé sur la Figure III-12, les grandeurs :

$$\frac{X - \langle X \rangle}{\sigma}$$

où X désigne A , $\lambda/2$ ou R_c , $\langle X \rangle$ est la valeur moyenne de X sur les virages du méandre dont X a été extrait, et σ représente l'écart type de ce même méandre. Cette méthode d'inclusion de l'ensemble des méandres permet d'avoir la distribution de A , λ et R_c avec des histogrammes contenant un peu plus de 1700 valeurs, et donc avec une bien meilleure statistique qu'avec les 25 valeurs maximum obtenues sur un seul méandre.

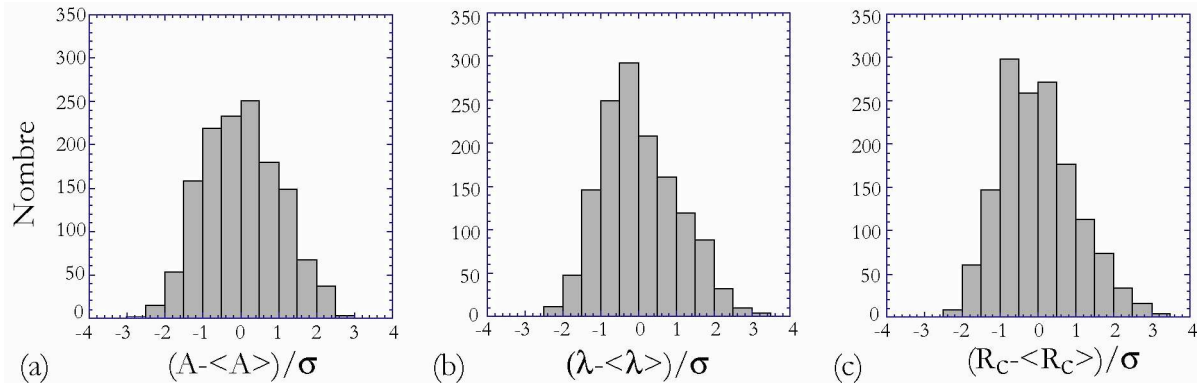


Figure III-12 : Distribution des grandeurs caractéristiques locales des méandres, tous paramètres α et Q confondus. (a) Amplitude. (b) Longueur d'onde. (c) Rayon de courbure aux sommets.

On obtient des distributions en cloche pour les trois grandeurs. Les valeurs locales de A , λ et R_c suivent donc une distribution statistique, et les paramètres prennent une valeur dans la cloche, avec une probabilité fonction de la forme de la distribution. Compte tenu de la forme des distributions, nous nous sommes intéressés à l'évolution des valeurs moyennes de A , λ et R_c en fonction des paramètres de contrôle : Q et α .

Nous allons voir que ces moyennes (prises sur les virages d'un méandre) ont un comportement bien défini et suivent des lois de puissance en débit et en $\sin \alpha$, contrairement aux valeurs locales qui sont distribuées statistiquement. Nous pouvons donc distinguer le comportement local (statistique) des méandres du comportement global, qui suit des lois bien définies, comme nous allons le voir dans la section suivante.

III.5.3 Évolution des grandeurs moyennes $\langle R_c \rangle$, $\langle \lambda \rangle$ et $\langle A \rangle$

III.5.3.1 Données brutes

Intéressons nous donc aux valeurs moyennes de l'amplitude, de la longueur d'onde et du rayon de courbure au sommet des virages, pour une configuration donnée (un débit et une inclinaison). Si l'on trace ces valeurs moyennes sur la gamme d'existence en débit des méandres, pour toutes les inclinaisons étudiées, on obtient la série de courbes de la Figure III-13.

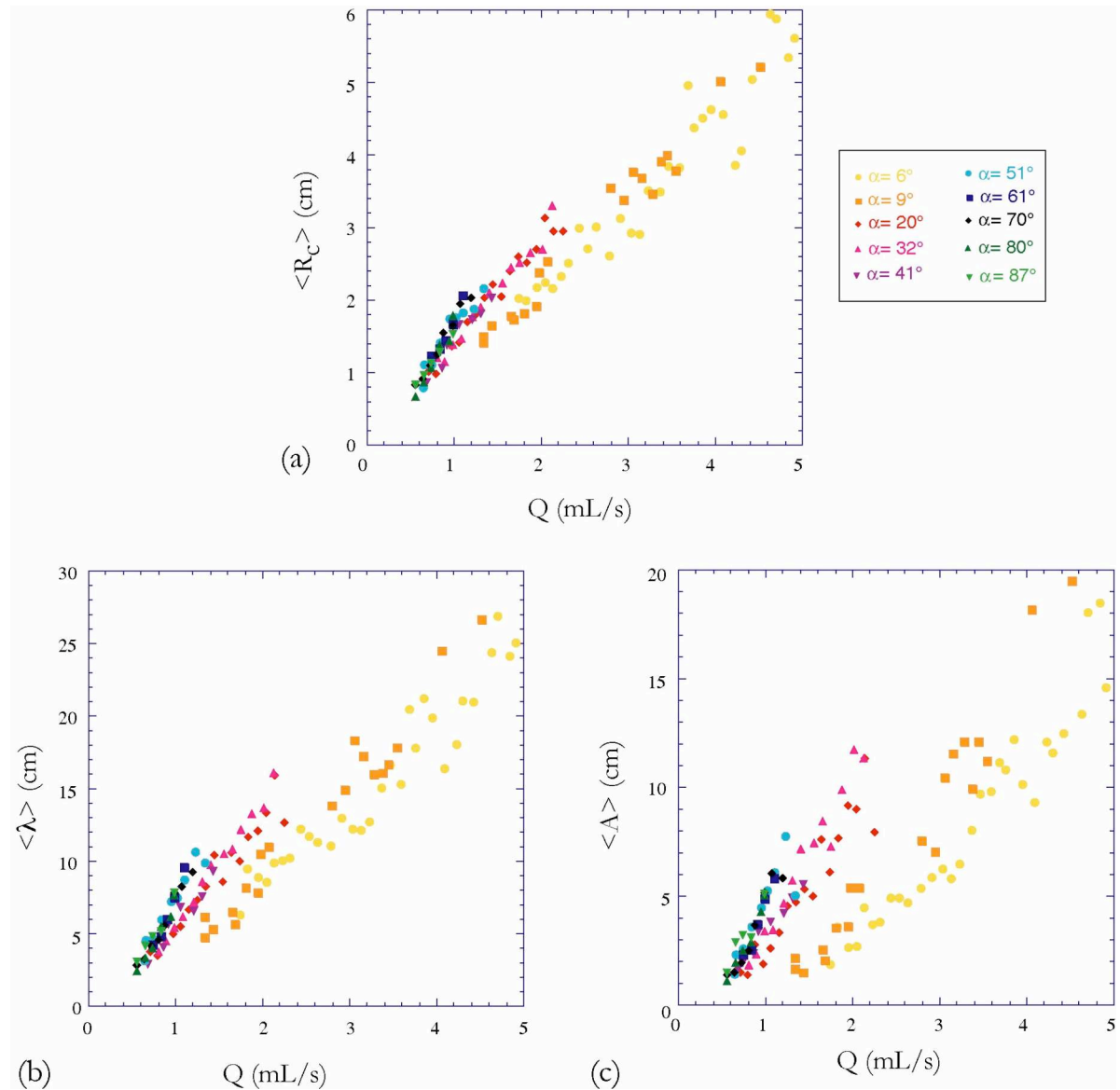


Figure III-13: Données brutes des moyennes sur les virages d'un méandre. (a) Rayon de courbure moyen au sommet des virages. (b) Longueur d'onde moyenne. (c) Amplitude moyenne.

Les trois paramètres augmentent de façon monotone avec l'inclinaison α de la plaque et le débit Q . On remarque qu'à la transition régime droit/méandres, l'amplitude, la longueur d'onde et le rayon de courbure sont non-nuls, et de l'ordre du centimètre. La transition est donc du premier ordre, ce qui confirme que le seuil de méandrage est bien marqué, et donc facilement déterminé « à l'oeil ». Par ailleurs, les domaines d'existence des méandres sont plus importants pour des plaques peu inclinées, comme nous avons pu le constater lors de l'étude des seuils de méandrage (cf. Figure III-9). Essayons d'utiliser notre compréhension du méandrage pour expliquer la variation de $\langle A \rangle$, $\langle \lambda \rangle$ et $\langle R_c \rangle$ avec le débit Q et l'inclinaison α .

III.5.3.2 Lois d'échelle pour $\langle R_c \rangle$, $\langle A \rangle$ et $\langle \lambda \rangle$

III.5.3.2.1 Rayon de courbure moyen $\langle R_c \rangle$

La forme des méandres devrait à nouveau être donnée par l'équilibre entre l'inertie, la tension de ligne et l'accrochage sur le substrat :

$$\rho \frac{Q^2}{S} \frac{1}{R_c} - C(\theta) \gamma_w \frac{1}{R_c} = \gamma (\cos \theta_{r,s} - \cos \theta_{a,s}) \quad (\text{III.23})$$

Le rayon de courbure R_c est ici le rayon *final* atteint pour la forme stationnaire des méandres. À nouveau, la gravité ne joue pas de rôle dans l'équilibre latéral aux sommets des virages des méandres, et n'est donc toujours pas prise en compte ici. Les calculs d'ordres de grandeur des forces à l'équation (III.22) ont montré que la capillarité et l'inertie étaient les deux forces dominante pour de faibles rayons de courbure de l'ordre du millimètre, comme c'est le cas pour le seuil de méandrage. Les forces d'inertie et de tension de ligne décroissant avec le rayon de courbure, l'accrochage sur le substrat devient la force dominante pour les rayons de courbure atteints par les méandres stationnaires (de l'ordre de 1 à 6 centimètres). Comme la tension de ligne est négligeable devant l'inertie (voir les ordres de grandeur à l'équation (III.22)), les deux forces dominantes sont dorénavant l'accrochage et l'inertie.

Les méandres stationnaires peuvent donc être modélisés par un équilibre accrochage/inertie :

$$\rho \frac{Q^2}{S} \frac{1}{R_c} = \gamma (\cos \theta_{r,s} - \cos \theta_{a,s}) \quad (\text{III.24})$$

où R_c est le rayon de courbure *final* atteint par le méandre considéré. Nous pouvons en déduire une loi d'échelle sur le rayon de courbure en supposant à nouveau un écoulement de Poiseuille :

$$v \propto w^2 \frac{g \sin \alpha}{v} \quad (\text{III.25})$$

et en utilisant la conservation du débit, $Q = Sv$, avec la surface $S \propto w^2$, c'est-à-dire que :

$$Q \propto w^4 \frac{g \sin \alpha}{\nu} \quad (\text{III.26})$$

On trouve alors que le rayon de courbure est proportionnel au débit à la puissance 3/2 et à la racine carrée de $\sin \alpha$:

$$\langle R_c \rangle \propto \frac{\rho}{\gamma(\cos \theta_{r,s} - \cos \theta_{a,s})} \left(\frac{g}{\nu} \right)^{1/2} \cdot Q^{3/2} \sqrt{\sin \alpha} \quad (\text{III.27})$$

Cette loi d'échelle a été testée sur nos données en traçant $\langle R_c \rangle / \sqrt{\sin \alpha}$ en fonction du débit Q (voir Figure III-14), et le modèle s'ajuste tout à fait bien à nos résultats expérimentaux. En y regardant de plus près, on remarque que certains groupes de données (pour des inclinaisons fixées) semblent avoir une pente légèrement différente de celle proposée. Ces petits écarts pourraient provenir du fait que l'on a négligé le terme capillaire par rapport au terme d'inertie et au terme d'accrochage. La partie capillaire ajouterait une contribution au rayon de courbure proportionnelle à $-Q^{1/4} \sin^{-1/4} \alpha$. Cette contribution supplémentaire a plus de poids aux faibles inclinaisons et aux faibles débits, et entraîne une diminution du rayon de courbure final R_c , ce qui va bien dans le sens du décalage observé sur la Figure III-14.

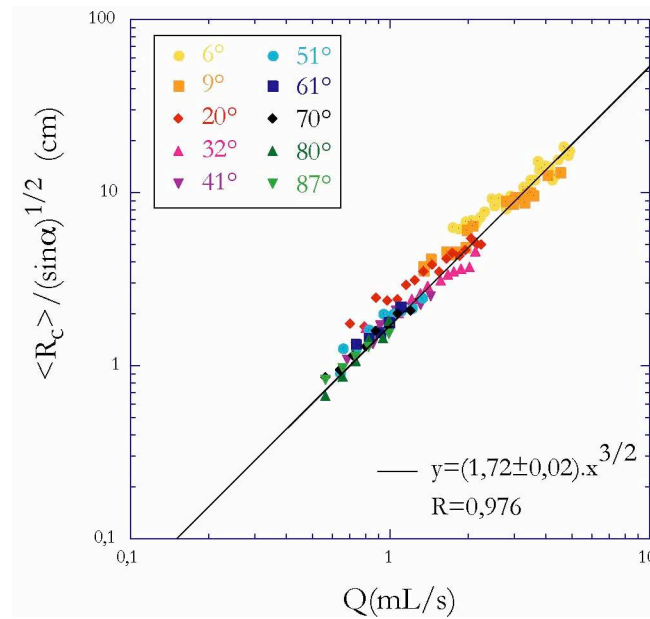


Figure III-14 : Comparaison des données expérimentales du rayon de courbure moyen $\langle R_c \rangle$ avec le modèle équilibrant inertie et accrochage sur le substrat.

Un autre point qui pourrait expliquer le petit écart entre la loi prédite et les valeurs expérimentales est la réduction de la pente effective par la sinuosité Σ (rapport de la longueur curviligne totale l' du méandre à la distance l entre ses deux extrémités) :

$$\Sigma = \frac{l'}{l} \quad (\text{III.28})$$

Une sinuosité qui vaut 1 correspond au filet droit, et plus le méandre fait de courbes, plus la sinuosité augmente. Pour un filet droit qui descend une hauteur Δh en parcourant une longueur l , la composante de la gravité qui s'exerce sur le filet vaut $g \sin \alpha$ avec $\alpha = \Delta h / l$. Lorsqu'il méandre, le filet descend cette même hauteur Δh en une longueur $l' > l$. La gravité effective est alors $g \sin \alpha'$, où $\sin \alpha' = \Delta h / l'$. En introduisant la sinuosité Σ , la gravité devient :

$$\frac{g \sin \alpha}{\Sigma} \quad (\text{III.29})$$

au lieu du $g \sin \alpha$ dans l'équation (III.27), donnant le rayon de courbure des méandres. Un filet qui méandre voit donc sa pente moyenne réduite (et donc la gravité effective) par rapport à un filet droit. Étant donné que la sinuosité Σ augmente avec Q et α [NAKAGAWA & SCOTT (1984)], les exposants du débit et de l'inclinaison devraient être inférieurs à ceux qui sont présentés dans l'équation (III.27), ce qui ramènerait davantage les différentes séries de points sur une même courbe maîtresse. Néanmoins, ces corrections sont faibles et l'essentiel du comportement des méandres est capté par notre modèle.

III.5.3.2.2 Longueur d'onde et amplitude moyenne

Voyons comment évoluent les deux autres grandeurs caractéristiques des méandres : la longueur d'onde $\langle \lambda \rangle$ et l'amplitude $\langle A \rangle$. Nous pouvons nous attendre à ce que la « longueur d'onde » moyenne des méandres, $\langle \lambda \rangle$, suive les mêmes lois que le rayon de courbure. En effet, si les méandres étaient idéalement constitués de demi-cercles suivis par des segments de droites horizontaux, $\langle \lambda \rangle$ et $\langle R_c \rangle$ devraient être reliés par la relation :

$$\langle \lambda \rangle = 4 \langle R_c \rangle \quad (\text{III.30})$$

La loi $\langle \lambda \rangle \propto Q^{3/2} \sqrt{\sin \alpha}$ est comparée aux résultats expérimentaux sur la Figure III-15a, et elle reproduit très bien nos données.

Concernant l'amplitude, nous n'avons pas vraiment réussi à trouver, pour l'instant, ce qui détermine l'amplitude des méandres et donc ce qui permettrait de la modéliser. Toutefois, vu qu'à la fois le rayon de courbure et la longueur d'onde suivent les mêmes lois d'échelle, nous avons essayé de voir si cette loi n'était pas universelle et ne s'appliquerait pas pour les trois grandeurs $\langle A \rangle$, $\langle \lambda \rangle$ et $\langle R_c \rangle$. La courbe de $\langle A \rangle / (\sin \alpha)^{1/2}$ en fonction du débit est reportée sur la Figure III-15b. De nouveau, cette loi d'échelle décrit correctement l'évolution constatée expérimentalement, même si des écarts notables apparaissent aux faibles débits. L'évolution des grandeurs caractéristiques de la morphologie des méandres est donc dictée par une même loi de puissance universelle :

$$(\langle A \rangle, \langle \lambda \rangle, \langle R_c \rangle) \propto Q^{3/2} \sqrt{\sin \alpha} \quad (\text{III.31})$$

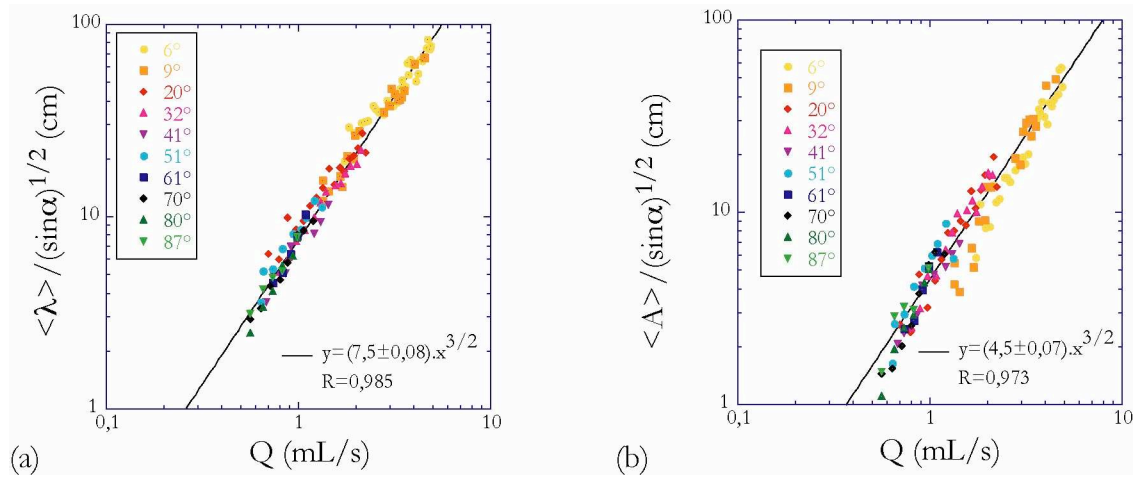


Figure III-15 : Loi d'échelle en fonction du débit pour (a) la longueur d'onde moyenne des méandres, (b) l'amplitude moyenne.

Nous disposons dorénavant des lois d'évolution en fonction des paramètres de contrôle Q et α de chacune des grandeurs $\langle A \rangle$, $\langle \lambda \rangle$, et $\langle R_c \rangle$, indépendamment. Cependant, ces trois grandeurs devraient être fortement reliées les unes aux autres si elles suivent bien les mêmes lois d'échelle. Nous allons donc tenter d'explorer le lien entre les trois grandeurs.

III.6 Les méandres comme fonction : une approche mathématique

III.6.1 La sinusoïde

Il serait particulièrement pratique de pouvoir décrire les méandres par une fonction. Les méandres ayant une forme sinueuse, la première fonction qui vient à l'esprit et qui pourrait correspondre à leur forme est une sinusoïde (voir Figure III-16a) :

$$y(x) = \frac{\langle A \rangle}{2} \sin(kx + \varphi) = \frac{\langle A \rangle}{2} \sin\left(\frac{2\pi}{\langle \lambda \rangle} x + \varphi\right) \quad (\text{III.32})$$

La courbure aux sommets ($1/R_c = y''$ et $y' = 0$) d'une telle courbe est reliée à la longueur d'onde et à l'amplitude de la sinusoïde par la formule :

$$\langle \lambda \rangle = \pi \sqrt{2 \langle A \rangle \langle R_c \rangle} \quad (\text{III.33})$$

Nous pouvons quantifier la ressemblance de nos méandres avec une sinusoïde en comparant la valeur de la longueur d'onde moyenne $\langle \lambda \rangle$, mesurée directement sur les photographies des méandres, à celle attendue, c'est-à-dire à $\pi \sqrt{2 \langle A \rangle \langle R_c \rangle}$, où $\langle A \rangle$ et $\langle R_c \rangle$ sont mesurées indépendamment de λ . Sur la Figure III-16b, nous avons tracé le rapport entre la valeur de $\langle \lambda \rangle$ mesurée et celle attendue pour une sinusoïde, en fonction du débit appliqué. On voit clairement que la sinusoïde ne convient absolument pas. La valeur moyenne du rapport

$\langle \lambda \rangle / \pi \sqrt{2 \langle A \rangle \langle R_c \rangle}$ est très éloignée de 1 puisqu'elle vaut 0,62. En fait, cela n'est pas tellement surprenant car en regardant la forme que prennent les méandres sur les diverses photographies prises, on se rend compte que les méandres ne ressemblent pas tant à une sinusoïde qu'à une série d'arcs de cercles suivis de segments de droite.

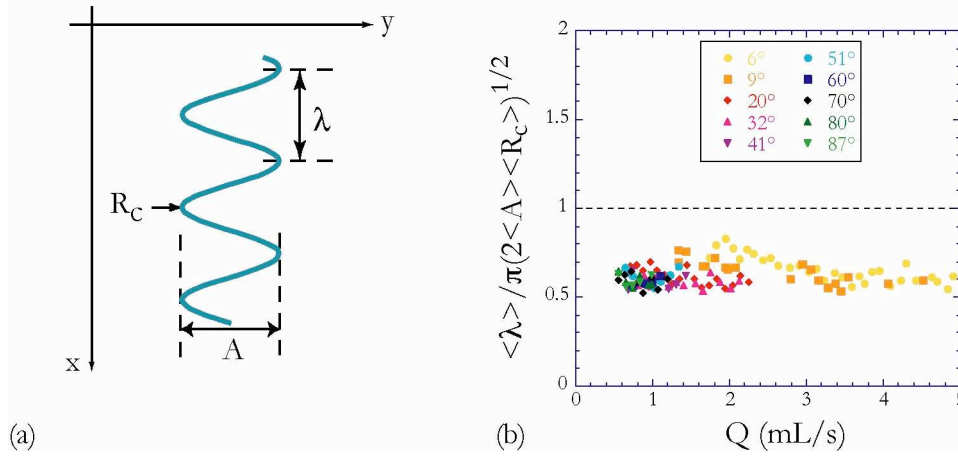


Figure III-16 : (a) Schéma de la sinusoïde. (b) Comparaison de $\langle \lambda \rangle$ mesuré à la valeur attendue si les méandres avaient une forme de sinusoïde : $\pi \sqrt{2 \langle A \rangle \langle R_c \rangle}$.

III.6.2 Suite de demi-cercles

Supposons que les méandres se comportent comme une suite de demi-cercles qui s'enchaînent, comme illustré sur la Figure III-17a. Cette forme implique deux relations sur $\langle A \rangle$, $\langle \lambda \rangle$ et $\langle R_c \rangle$:

$$\begin{cases} \langle \lambda \rangle = 4 \langle R_c \rangle & \text{(III.34)} \\ \langle A \rangle = 2 \langle R_c \rangle & \text{(III.35)} \end{cases}$$

Pour comparer à nos données, nous avons tracé les rapports $\langle \lambda \rangle / (4 \langle R_c \rangle)$ et $\langle A \rangle / (2 \langle R_c \rangle)$, où les valeurs moyennes désignent toujours une moyenne sur l'ensemble des virages d'un méandre. Les résultats correspondants sont tracés sur la Figure III-18. Concernant le lien entre longueur d'onde et rayon de courbure, il est à peu près correct et cette forme en suite de demi-cercles semble mieux décrire les méandres qu'une sinusoïde puisque la valeur moyenne du rapport $\langle \lambda \rangle / (4 \langle R_c \rangle)$ vaut 1,05 (cf. Figure III-18a). Malgré le regroupement des points aux environs de l'unité, on décèle une tendance à l'augmentation de ce rapport, pour chaque série à inclinaison donnée. On observe alors une dispersion de points assez importante autour de la valeur moyenne, avec un écart type de 0,12.

Le lien entre l'amplitude et le rayon de courbure est traduit sur la Figure III-18b. On peut voir que la modélisation en demi-cercles qui s'enchaînent marche mal puisqu'on observe sur la une grande dispersion du rapport $\langle A \rangle / (2 \langle R_c \rangle)$, dont les valeurs sont de plus bien au-dessus de 1 pour la plupart, alors qu'elles auraient dû se regrouper autour de l'unité. La valeur moyenne et l'écart type de ce rapport valent respectivement 1,20 et 0,35.

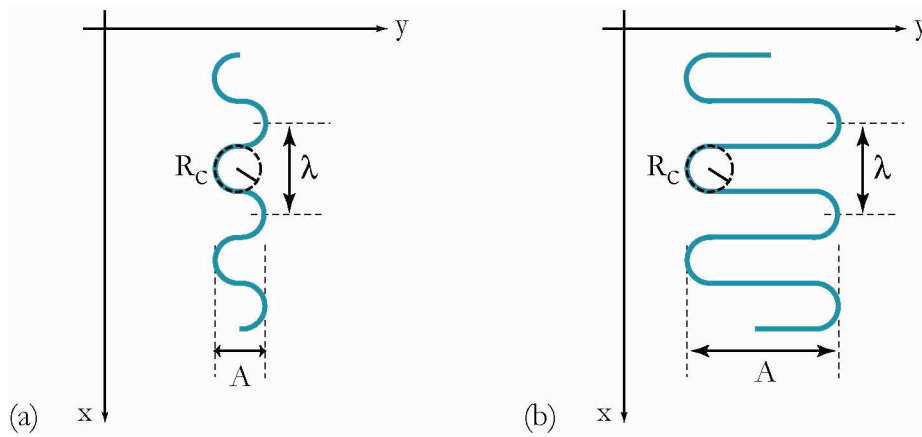


Figure III-17 : (a) Forme idéale d'un méandre, constitué de demi-cercles et de segments horizontaux. (b) Les demi-cercles sont reliés par un segment de droite de longueur $A - 2R_c$.

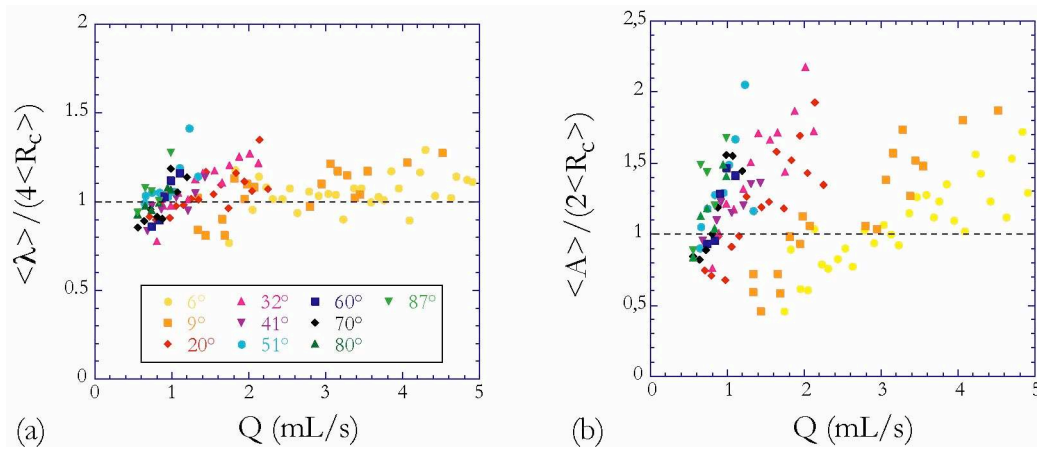


Figure III-18 : Comparaison entre les valeurs mesurées et les valeurs attendues pour un modèle des méandres en suite de demi-cercles. (a) Longueur d'onde. (b) Amplitude.

Pour améliorer la description mathématique, on pourrait laisser la liberté aux méandres de parcourir des segments horizontaux de longueur $A - 2R_c$ entre deux virages (cf. Figure III-17b). Cette forme refléterait plus la forme que nous observons en réalité, mais soulève un nouveau problème fondamental : celui de la sélection de l'amplitude des méandres. En effet, rien ne contraint le méandre à arrêter son chemin horizontal pour faire un virage et repartir dans l'autre sens, et nous n'avons donc aucune indication sur l'amplitude des méandres. Par ailleurs, $\langle \lambda \rangle / (4 \langle R_c \rangle)$ reste identique au cas sans parcours horizontaux supplémentaires, et est tout de même visiblement supérieur à l'unité.

Nous avons donc tenté d'affiner notre description en permettant aux ruisselets de ne parcourir qu'une partie des demi-cercles et de poursuivre ensuite leur chemin sur des segments de droites inclinés d'un angle ϕ par rapport à l'horizontale. Rien qu'en regardant à l'œil, cette

forme semble en effet la plus appropriée pour décrire les méandres (voir par exemple la Figure III-20a).

III.6.3 Arcs de cercles et segments inclinés

Considérons une forme en arc de cercle prolongée par la tangente en ce point, donc par un segment de droite incliné par rapport à l'horizontale d'un angle que l'on notera ϕ (voir Figure III-19a). Cette géométrie impose le lien suivant entre les différents paramètres du méandre :

$$\langle \lambda \rangle = 2 \langle A \rangle \tan \phi + 4 \langle R_c \rangle \frac{1 - \sin \phi}{\cos \phi} \quad (\text{III.36})$$

Dans la mesure où les segments sont faiblement inclinés par rapport à l'horizontale, c'est-à-dire que ϕ est petit, on peut linéariser l'expression précédente pour obtenir l'expression plus simple, à l'ordre 1 en ϕ :

$$\boxed{\langle \lambda \rangle = 2 \langle A \rangle \phi + 4 \langle R_c \rangle (1 - \phi)} \quad (\text{III.37})$$

Cette nouvelle forme supposée des méandres n'apporte en fait qu'une correction en $2(\langle A \rangle - 2 \langle R_c \rangle)\phi$ par rapport à la description précédente faite de demi-cercles suivis par des segments horizontaux ($\phi=0$) et pour laquelle nous avons $\langle \lambda \rangle = 4 \langle R_c \rangle$.

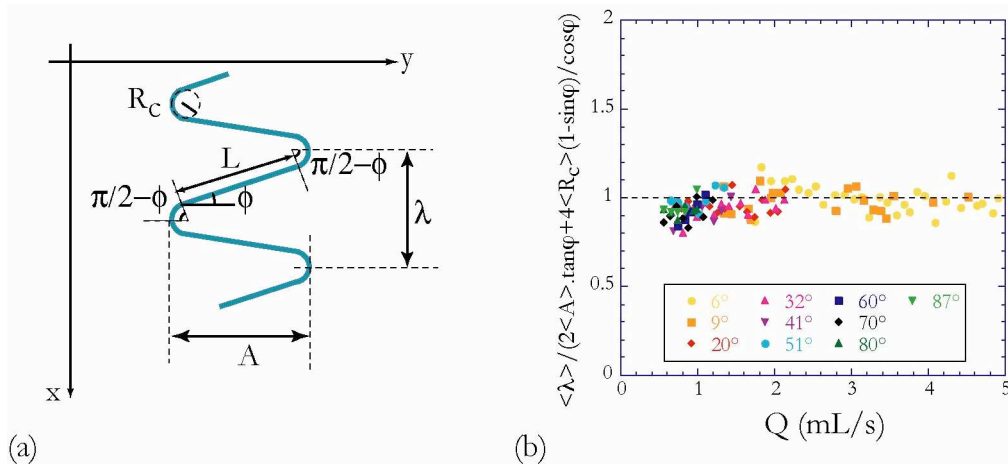


Figure III-19 : (a) Schéma de la forme en arcs de cercles et segments inclinés. (b) Comparaison entre $\langle \lambda \rangle$ mesurée et la valeur attendue par le modèle « arc puis pente ».

La valeur de ϕ qui s'est avérée la plus adaptée pour reproduire la forme des méandres, c'est-à-dire la valeur pour laquelle le rapport $\langle \lambda \rangle / \langle \lambda \rangle_{th}$ est le plus proche de 1 (avec $\langle \lambda \rangle_{th}$ donnée par l'équation (III.36)), est un angle $\phi=17^\circ$, que nous avons pris identique pour toutes les inclinaisons de substrats et tous les débits appliqués. Cette valeur unique de ϕ paraît convenir pour l'ensemble des méandres, à plus ou moins 2° près. Comme on peut le voir sur la Figure III-19b, la forme « arc de cercle et segment incliné » décrit très bien le comportement

moyen du méandre. En effet, la valeur moyenne est à 1,00 et nous avons nettement réduit la dispersion des points autour de cette valeur moyenne, puisque l'écart-type est retombé à 0,06. Surtout, il n'y a plus de d'augmentation systématique des courbes avec le débit Q pour une inclinaison α fixée, contrairement à ce que nous avons trouvé à la Figure III-18 pour la description des méandres sans chemin oblique

Pour vérifier plus directement l'apparition de cette valeur spécifique de $\phi=17^\circ$, nous avons extrait la distribution de l'angle $\phi=\pi/2-\phi$ que forment les méandres par rapport à la verticale. À partir d'une photographie d'un méandre (cf. Figure III-20a), nous pouvons extraire le squelette $y(x)$ donnant la position (x,y) de chaque point constituant la ligne centrale du méandre (cf. Figure III-20b) et donc sa dérivée $y'(x)$ (cf. Figure III-20c). Les divergences de la dérivée correspondent aux parties rectilignes du méandre, et dy/dx s'annule aux sommets des virages du méandre. En prenant l'arctangente de la dérivée, on obtient la distribution de l'angle ϕ . Nous aurions pu espérer utiliser la même méthode pour remonter à la courbure du méandre en calculant la dérivée seconde $y''(x)$, mais malheureusement la dérivée première est trop bruitée pour cela.

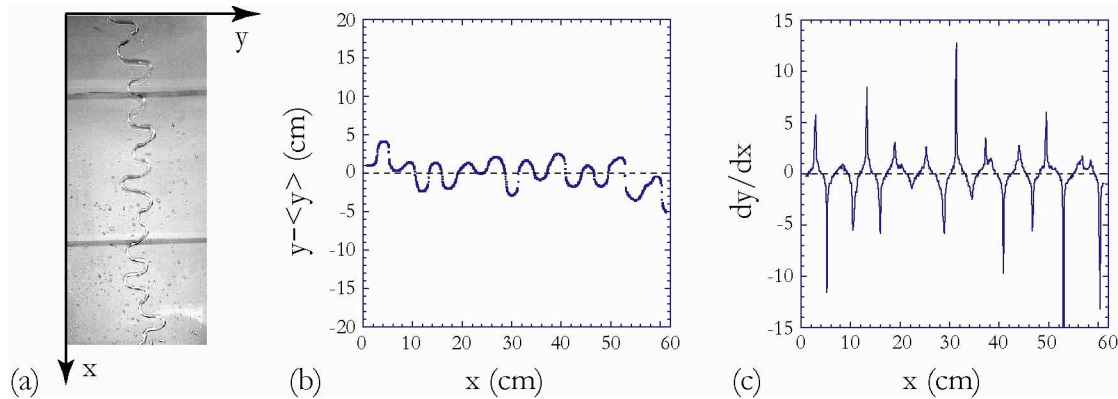


Figure III-20 : (a) Photographie d'un méandre stationnaire, $\alpha=32^\circ$, $Q=1,08$ mL/s. L'écoulement se fait du haut vers le bas. (b) Squelette du méandre, échantillonné sur 1024 points. (c) Dérivée du méandre dy/dx en fonction de x .

Nous avons reporté sur la Figure III-21 des distributions typiques de l'angle ϕ . Cet angle s'annule aux sommets des virages et est maximal dans les lignes droites. La courbe en pointillés marque la valeur $\phi=\pm 72^\circ$ par rapport à la verticale, c'est-à-dire $\phi=\pm 17^\circ$ par rapport à l'horizontale. Cette valeur semble correspondre à peu près à la moyenne des maxima de ϕ et n'a pas l'air de changer sensiblement avec le débit. Il y aurait ainsi un angle d'inclinaison ϕ des parties rectilignes des méandres qui serait identique pour tous les méandres, ou du moins faiblement variable avec le débit Q et l'inclinaison du substrat α .

Remarquons enfin que l'expression $\langle \lambda \rangle = 2 \langle A \rangle \phi + 4 \langle R_c \rangle (1 - \phi)$ est compatible avec une loi de puissance identique pour les trois grandeurs $\langle \lambda \rangle$, $\langle A \rangle$ et $\langle R_c \rangle$, tel que cela a été suggéré à la section III.5.3.2. Les préfacteurs des lois de puissance, trouvés empiriquement par ajustement des lois de puissance sur nos mesures, impliquent d'ailleurs une valeur de 17° pour l'angle ϕ , identique à celle que nous avons proposée plus haut.

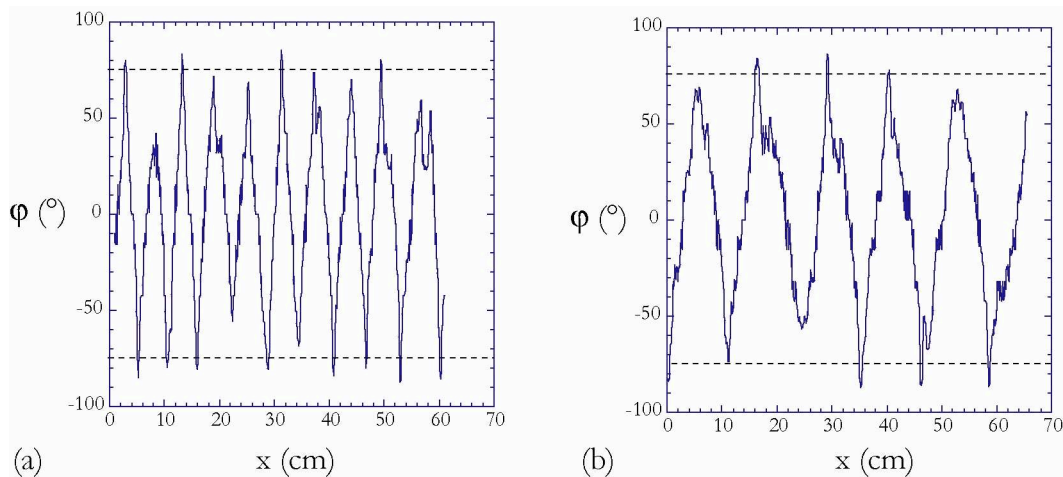


Figure III-21 : Distribution de l'angle φ par rapport à la verticale pour une inclinaison du substrat $\alpha=32^\circ$ pour (a) $Q=1,08$ mL/s et (b) $Q=1,75$ mL/s.

III.7 Étude de la vitesse au sein des méandres

Afin de voir, entre autres, si l'hypothèse de l'écoulement de Poiseuille utilisée dans nos modèles de méandres est fondée, nous avons examiné le champ de vitesse dans les filets en injectant des gouttes de colorant (bleu de méthylène) au sein des ruisselets⁸. La vitesse moyenne est obtenue en filmant l'avancée du colorant à 30 images par seconde, à l'aide d'une caméra placée à environ 1 m des ruisselets. En relevant la position du front de colorant au cours du temps (voir Figure III-22a et Figure III-25a), on déduit la distance curviligne parcourue par le colorant, dont la dérivation donne la vitesse moyenne dans le filet.

Le lecteur pourrait se demander pourquoi nous n'avons pas plutôt mesuré la vitesse via la largeur du filet et la conservation du débit ($Q=Sv$). La mesure de la largeur des ruisselets n'est pas très commode dans le cas des méandres car elle n'est pas constante le long des filets : les méandres sont plus larges dans les zones rectilignes que dans les virages où ils s'affinent. Nous avons préféré employer la même technique de mesure pour les filets droits et les méandres.

Comme nous l'avons vu sur la Figure III-9, plus l'inclinaison α est faible, plus la plage de débit sur laquelle nous pouvons obtenir des méandres est grande. Nous avons donc choisi d'effectuer nos mesures de vitesse pour une inclinaison $\alpha=9^\circ$, présentant également l'avantage de générer des filets larges, qui seront moins perturbés par l'injection d'une goutte de colorant.

III.7.1 Vitesse moyenne dans le filet droit

III.7.1.1 Mesure de la vitesse

En régime droit, le colorant avance avec une vitesse constante dans le temps (voir Figure III-22b où la position du front de colorant est linéaire avec le temps). Il est donc possi-

⁸ Mieux vaut travailler en circuit ouvert, pour que les particules de colorant non-dissoutes, ou qui se seraient recristallisées, ne passent pas dans la pompe et ne l'endommagent.

ble de rattacher *une* vitesse moyenne d'écoulement à un couple de paramètres de contrôle Q et α . Le débit Q a été varié entre la limite de rupture en gouttes et le seuil de méandrage. La vitesse moyenne augmente avec le débit entre 26 cm/s et 56 cm/s. Le nombre de Reynolds résultant est alors de l'ordre de 500 ($Re = w v / \nu$ avec $w \sim 1$ mm, $\nu \sim 50$ cm²/s, et $v \sim 10^{-6}$ mm²/s).

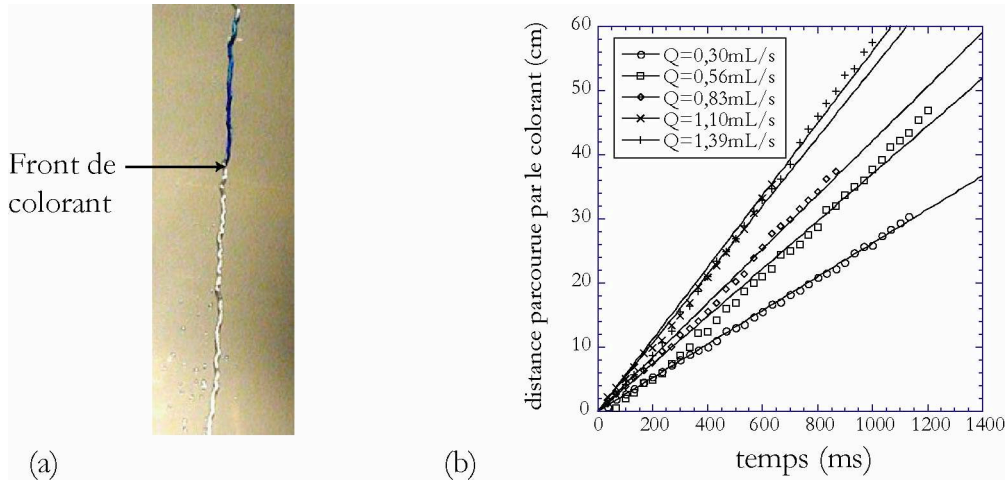


Figure III-22 : Vitesse dans les filets droits. (a) Front de colorant en régime droit. (b) Distance parcourue par le colorant au cours du temps. La pente donne la vitesse moyenne de l'écoulement dans les ruisselets, et vaut, pour les débits croissants : 26,2 cm/s, 37,0 cm/s, 42,1 cm/s, 53,3 cm/s et 56,0 cm/s.

III.7.1.2 Modélisation de l'écoulement par un Poiseuille

Comparons maintenant les vitesses obtenues expérimentalement par avancée du front de colorant avec le modèle de Poiseuille. Il nous faut d'abord modéliser la forme du ruisseau. Nous supposons qu'il s'agit d'un morceau de cylindre de rayon a , coupé par un plan selon sa longueur (cf. description sur la Figure III-23). On note alors θ l'angle de contact entre cette portion de cylindre et le plan de coupe, w la largeur du filet et H sa hauteur maximale.

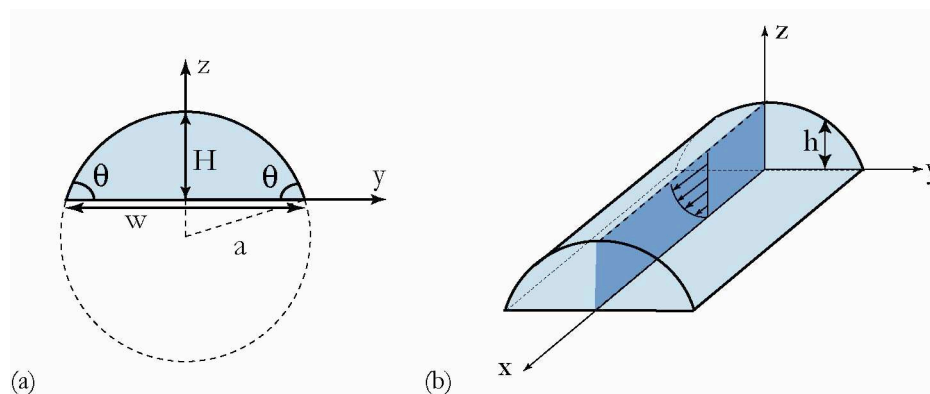


Figure III-23 : Modélisation des ruisselets comme des portions de cylindre. (a) Vue en coupe de face d'un filet. (b) Vue en trois dimensions.

On fait l'hypothèse que l'écoulement dans un tel cylindre est sécable en tranches de hauteur $h(y)$ et de largeur dy , dans lesquelles la vitesse est celle d'un écoulement de Poiseuille dans un film infini de même hauteur h . Ce type de calcul peut aussi être trouvé par exemple dans les articles de PODGORSKI *et al* (1999) ou BANKOFF (1971). La vitesse est donc uniquement selon l'axe x et est donnée par la relation :

$$v(y, z) = v_x(y, z) = z \left(h(y) - \frac{z}{2} \right) \cdot \frac{g \sin \alpha}{\nu} \quad (\text{III.38})$$

On en déduit la vitesse moyenne dans le filet :

$$\langle v \rangle = \frac{\int_{-w/2}^{w/2} \int_0^{h(y)} v_x(y, z) dy dz}{\int_{-w/2}^{w/2} \int_0^{h(y)} dy dz} \quad (\text{III.39})$$

Après calculs, le résultat final donne :

$$\langle v \rangle = F(\theta) \frac{g \sin \alpha}{3\nu} H^2 \quad (\text{III.40})$$

où $F(\theta)$ est un facteur de forme, dépendant uniquement de l'angle de contact θ :

$$F(\theta) = \frac{\left(\frac{15}{4} \theta - 3\theta \sin^2 \theta - \frac{13}{4} \cos \theta \sin \theta - \frac{1}{2} \cos^3 \theta \sin \theta \right)}{(1 - \cos \theta)^2 (\theta - \cos \theta \sin \theta)} \quad (\text{III.41})$$

On trouve donc la même vitesse que pour un film liquide de hauteur H au facteur $F(\theta)$ près, qui provient de la géométrie en portion de cylindre considérée.

De même, on peut calculer le débit Q :

$$Q = \int_{-w/2}^{w/2} \int_0^{h(y)} v_x(y, z) dy dz = \tilde{F}(\theta) \frac{g \sin \alpha}{3\nu} H^4 \quad (\text{III.42})$$

avec $\tilde{F}(\theta) = F(\theta)(\theta - \cos \theta \sin \theta) / (1 - \cos \theta)^2$. Enfin, des équations (III.40) et (III.42) donnant $\langle v \rangle(H)$ et $Q(H)$, on peut en déduire la relation $\langle v \rangle(Q)$ en éliminant la hauteur H :

$$\langle v \rangle = \left(\Gamma(\theta) \frac{g \sin \alpha}{3\nu} Q \right)^{1/2} \quad (\text{III.43})$$

avec le facteur de forme Γ :

$$\Gamma(\theta) = F(\theta) (1 - \cos \theta)^2 / (\theta - \cos \theta \sin \theta) \quad (\text{III.44})$$

Pour fixer les idées, cette fonction $\Gamma(\theta)$ a été tracée sur la Figure III-24a. Le seul paramètre de cette relation théorique entre la vitesse moyenne de l'écoulement dans le filet et le débit Q est l'angle de contact θ .

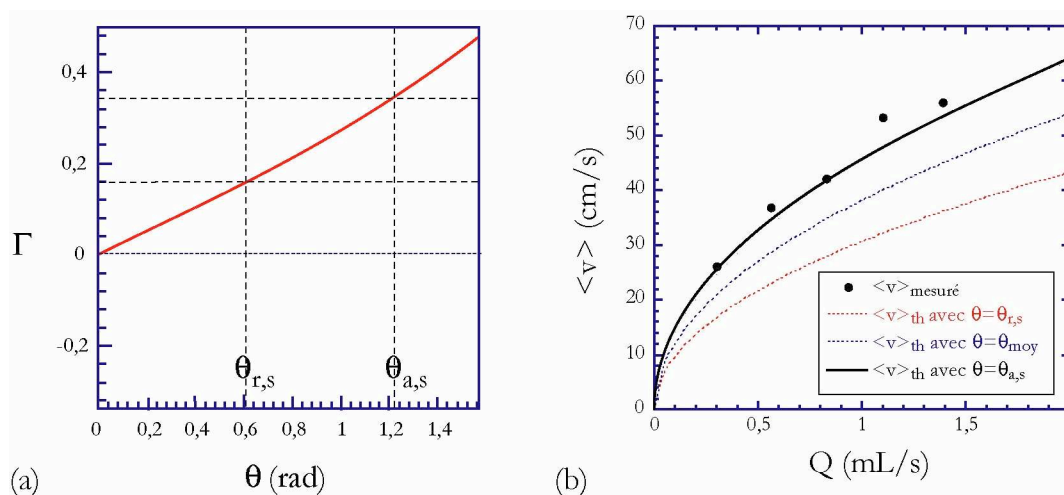


Figure III-24 : (a) Variation du facteur de forme Γ différenciant la relation entre $\langle v \rangle$ et Q pour une portion de cylindre d'angle de contact θ et un film mince de même hauteur maximale H . (b) Comparaison de $\langle v \rangle$ mesurée dans un filet droit par injection de colorant et du modèle de vitesse en Poiseuille par tranches dans un cylindre, pour différentes valeurs de l'angle de contact.

Nous avons comparé cette relation prédite pour la vitesse moyenne à la vitesse mesurée par injection de colorant dans les filets droits. Comme on peut la voir sur la Figure III-24b, nos résultats expérimentaux sont tout à fait correctement prédits par le modèle de Poiseuille dans les tranches d'un cylindre d'angle de contact θ , pour $\theta = \theta_{a,s}$. À titre de comparaison, nous avons également tracé en pointillés, les valeurs attendues de la vitesse moyenne pour $\theta = \theta_{r,s}$ et pour un angle moyen $\theta = (\theta_{r,s} + \theta_{a,s})/2$. Le fait que l'angle de contact soit égal à l'angle d'avancée sur les deux bords d'un filet droit paraît tout à fait raisonnable pour des expériences menées par augmentation de débit. Un positionnement identique de l'angle de contact à sa valeur seuil d'avancée avait été constaté par RIO dans le cas d'une étude à débit croissant de la forme de zones sèches formées dans un film d'huile s'écoulant sur un plan incliné [RIO (2005)]. Il serait évidemment mieux d'avoir une confirmation de l'angle de contact par une mesure directe sur nos filets droits, ce que nous envisageons de faire dans un travail futur.

La proximité entre les mesures expérimentales de vitesse et le modèle de Poiseuille, obtenue sur la Figure III-24b, valide les calculs de seuil basés sur la stabilité du filet droit, vus à la section III.4.2.

III.7.2 Vitesse moyenne dans les méandres

III.7.2.1 Mesure de la vitesse moyenne

Analysons maintenant le cas de filets qui méandrent. Nous reportons ici les premiers résultats d'une étude en vitesse pour les méandres, vitesse définie tangentiellement au parcours courbe. Sur la Figure III-25, on peut voir l'avancée du front de colorant pour divers débits en régime de méandres. Les résultats préliminaires permettent déjà de montrer que le passage en configuration méandre fait chuter de manière importante la vitesse moyenne dans le filet liquide

(d'un facteur proche de 2), jusqu'à des valeurs semblables à celles obtenues pour les plus bas débits du régime droit (cf. Figure III-25b). La vitesse moyenne passe ainsi de plus de 56 cm/s à seulement une trentaine de centimètres par seconde. Si le débit est augmenté, en régime de méandres, la vitesse moyenne augmente légèrement, mais très peu comparé à l'augmentation constatée en régime droit. Il serait intéressant de développer davantage cette amorce d'étude de la vitesse pour déterminer précisément la vitesse au seuil du régime instable.

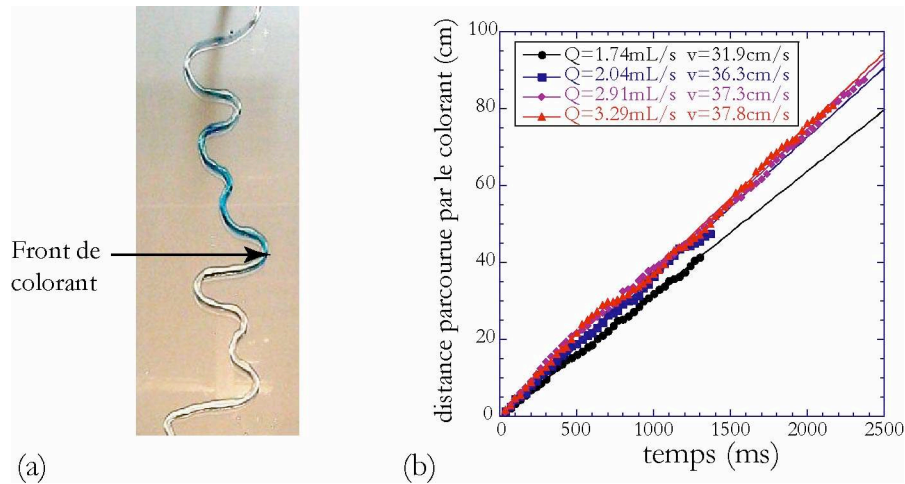


Figure III-25 : Vitesse moyenne de l'écoulement dans les méandres. (a) Avancée du colorant dans un méandre. (b) Distance (curviligne) parcourue par le colorant au cours du temps. La pente des courbes donne la vitesse moyenne de l'écoulement.

III.7.2.2 Modélisation de la vitesse dans les méandres

Voyons ce que devient notre modélisation en Poiseuille pour les méandres. Le modèle de Poiseuille est très bien adapté pour les filets droits et prévoit une vitesse moyenne qui croît comme la racine carrée du débit. Or, nous venons de voir que le changement de forme de filet droit à méandres entraîne une chute importante de la vitesse, alors que le débit continue d'être augmenté. Le modèle de Poiseuille, tel qu'utilisé pour le filet droit, n'est donc plus applicable pour les méandres puisqu'il ne prévoit pas de chute mais une augmentation continue de la vitesse avec le débit.

Toutefois, l'approximation de l'écoulement de Poiseuille pourrait toujours donner une description correcte de l'écoulement moyen dans les méandres, à condition de se rappeler que la sinuosité Σ réduit l'effet de la gravité en $g \sin \alpha / \Sigma$, et par là-même réduit la vitesse moyenne. À la section III.6.3, nous avons remarqué que les méandres se comportaient comme des arcs de cercles joints par des segments de droite, inclinés d'un angle $\phi = 17^\circ$ par rapport à l'horizontale. En négligeant la contribution des virages par rapport aux segments inclinés de ϕ , on peut approximer $\Sigma = l / r$ par $1 / \sin \phi$ (voir Figure III-26a). La projection de l'accélération de la gravité, le long des parties rectilignes devient donc $g \sin \alpha \sin \phi$, c'est-à-dire qu'elle est réduite d'un coefficient $\sin \phi$ par rapport au filet droit. En introduisant ainsi grossièrement la sinuosité à travers ce facteur $\sin \phi$ dans le modèle de Poiseuille dans des tranches d'un cylindre, nous obtenons une vitesse moyenne théorique :

$$\langle v \rangle = \left(\Gamma(\theta) \frac{g \sin \alpha \sin \phi}{3v} Q \right)^{1/2} \quad (\text{III.45})$$

Cette valeur théorique de la vitesse moyenne dans les méandres a été comparée aux données expérimentales (cf. Figure III-26b). On retrouve le bon ordre de grandeur, pour des angles de contact entre $\theta_{a,s}$ et θ_{moy} . L'accord entre les expériences et la modélisation de la vitesse moyenne par celle d'un écoulement de Poiseuille est donc prometteur, compte tenu des approximations que nous avons faites ici : introduction grossière de la sinuosité et forme du ruisselet en portion de cylindre symétrique alors que les méandres ne sont en réalité plus symétriques. Ils ont plutôt un angle de contact $\theta_{a,s}$ sur l'extérieur des virages et $\theta_{r,s}$ sur l'intérieur, que l'on approxime ici par un cylindre d'angle de contact $\theta_{moy} = (\theta_{a,s} + \theta_{r,s})/2$.

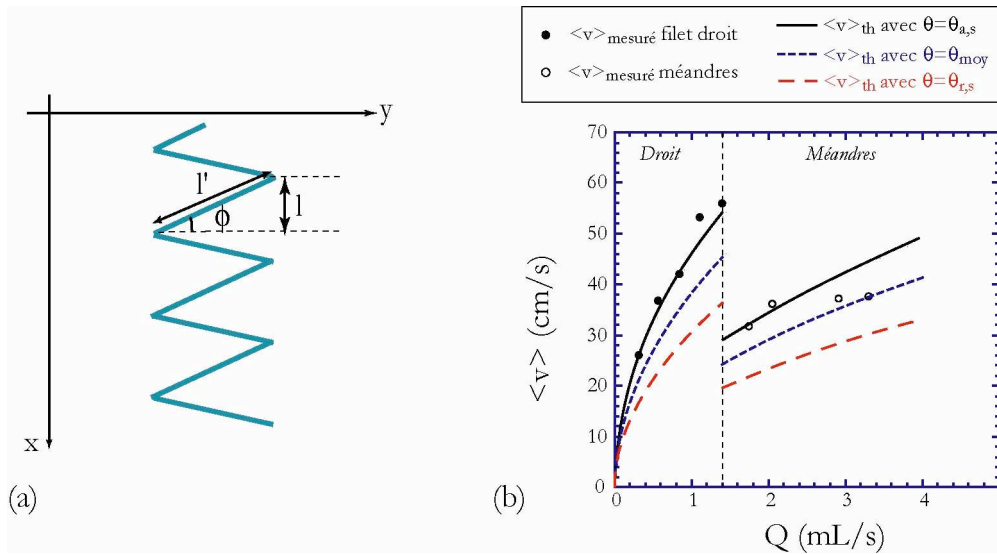


Figure III-26 : (a) Sinuosité $\Sigma = l'/l$ approximée par $1/\sin\phi$. (b) Comparaison des données expérimentales de la vitesse moyenne et du modèle de Poiseuille avec correction de la sinuosité par introduction d'un facteur $\sin\phi$ dans l'effet de la gravité.

III.7.2.3 Retour sur le rayon de courbure : test du préfacteur

Profitons d'avoir réussi à décrire à peu près le champ de vitesse moyen à l'intérieur des méandres pour vérifier si notre modélisation du rayon de courbure par un équilibre inertie/forces d'accrochage donnerait non seulement la bonne loi de puissance (cf. section III.5.3.2.1), mais aussi le bon préfacteur. Reprenons l'équilibre inertie/accrochage sur le substrat :

$$\rho S \frac{\langle v^2 \rangle}{R_c} = \gamma (\cos \theta_{r,s} - \cos \theta_{a,s}) \quad (\text{III.46})$$

Pour un film liquide en écoulement sur un plan incliné, $\langle v^2 \rangle$ et $\langle v \rangle^2$ sont indépendantes de l'épaisseur du film et sont reliées par la relation :

$$\langle v^2 \rangle = \frac{6}{5} \langle v \rangle^2 \quad (\text{III.47})$$

On peut alors espérer que dans notre portion de cylindre, le facteur entre le carré de la vitesse RMS et la vitesse moyenne au carré sera proche de 6/5. La section S de la portion de cylindre peut se calculer en fonction de l'angle de contact θ et de la hauteur maximale H :

$$S = H^2 (\theta - \cos\theta \sin\theta) / (1 - \cos\theta)^2 \quad (\text{III.48})$$

Les équations (III.40) reliant $\langle v \rangle$ à H et (III.43) reliant $\langle v \rangle$ à Q permettent d'obtenir le rayon de courbure en fonction du débit, avec cette fois le préfacteur complet. Notons qu'il convient de remplacer $g \sin\alpha$ par $g \sin\alpha \sin\phi$ (avec $\phi=17^\circ$) dans les équations, pour rendre compte du fait que les méandres ne descendent pas le long de la ligne de plus grande pente. Nous prendrons également $\theta = \theta_{\text{moy}} = (\theta_{a,s} + \theta_{r,s})/2$ car c'est la valeur qui reflète le mieux la forme des méandres approximatés par des portions de cylindres. On trouve au final la relation :

$$\langle R_c \rangle = \frac{6}{5} \frac{\rho}{\gamma(\cos\theta_{r,s} - \cos\theta_{a,s})} \left(\frac{g \sin\phi}{3v} \Gamma(\theta_{\text{moy}}) \right)^{1/2} \cdot Q^{3/2} \sqrt{\sin\alpha} \quad (\text{III.49})$$

Nous avons testé cette loi, qui n'a plus aucun paramètre ajustable, sur nos mesures de rayons de courbure moyens des méandres (cf. Figure III-27). L'accord entre les mesures et la valeur prédite est remarquable, et même presque surprenant vu les quelques approximations utilisées dans la modélisation. Les points incertains du modèle sont notamment (i) la valeur probablement non exacte du facteur 6/5 reliant la vitesse RMS à la vitesse moyenne, et correcte uniquement dans le cas d'un film infini, (ii) l'introduction « à la louche » de l'effet de la sinuosité sur la gravité effective résultante, grâce au facteur $\sin\phi$, et enfin (iii) la modélisation de la forme du méandre par un cylindre d'angle de contact θ_{moy} , alors que les méandres deviennent dissymétriques avec les angles $\theta_{a,s}$ d'un côté et $\theta_{r,s}$ de l'autre.

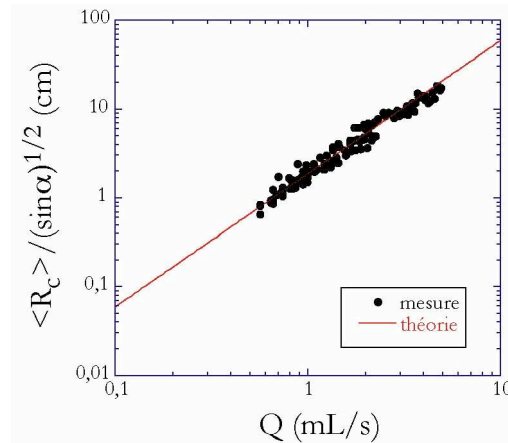


Figure III-27 : Comparaison des mesures de $\langle R_c \rangle$ au modèle provenant de l'équilibre inertie/accrochage sur le substrat, avec modélisation de la vitesse par un écoulement de Poiseuille dans des tranches d'une portion de cylindre d'angle de contact $(\theta_{\text{moy}} = \theta_{a,s} + \theta_{r,s})/2$. Il n'y a pas de paramètre ajustable pour ce modèle.

III.7.3 Vitesse locale : non-uniformité sur la largeur des méandres

Les considérations sur la vitesse que nous avons faites jusque-là portent sur la moyenne sur la section des ruisselets, qui est la partie importante de la vitesse pour la modélisation des méandres. Nous nous sommes tout de même intéressés à la vitesse locale du colorant le long des méandres. Pour cela, nous avons eu recours à une caméra rapide (500 images par seconde) qui permet de filmer les mouvements rapides du colorant. On remarque tout d'abord que le colorant ne remplit pas toute la largeur des filets, mais laisse une « zone morte » sur les bords internes des méandres (cf. Figure III-28a). Il arrive de plus que le colorant remonte l'écoulement dans ces zones mortes et tourbillonne dans le plan du substrat (cf. Figure III-28b). Ces recirculations avaient déjà été repérées par WALKER (1985), sans trop de détail. Du colorant peut ainsi être piégé plusieurs secondes dans le filet en tourbillonnant, et donc demeurer coincé même après que tout le reste du colorant a totalement évacué le reste du méandre.

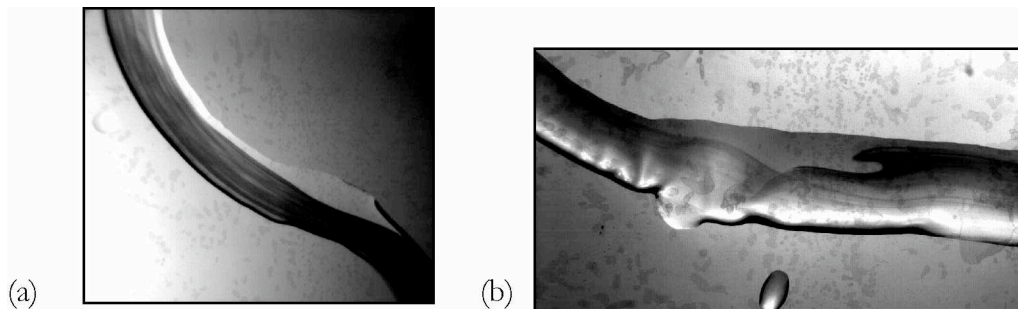


Figure III-28 : Particularités du champ de vitesse, $\alpha=29^\circ$, $Q=1,22$ mL/s. (a) Mise en évidence d'une zone morte (le colorant ne pénètre pas dans les parties internes des méandres) et d'un défaut d'accrochage sur le substrat avec augmentation résultante de la taille de la zone morte. L'écoulement se fait de haut en bas. (b) Recirculation. L'écoulement principal se fait de gauche à droite, un écoulement secondaire à contre-sens se met en place, sous la forme d'une vague qui déferle.

Nous avons vérifié que ces tourbillons de recirculation ne provenaient pas de rotations du liquide, générées en amont de l'injecteur. Pour cela, nous avons bourré l'embout de l'injection par du coton afin de briser d'éventuelles turbulences ou rotations déjà existantes avant l'injection. L'ajout de coton ne modifie en rien les méandres : les seuils demeurent identiques, et les valeurs de $\langle A \rangle$, $\langle R_c \rangle$ et $\langle \lambda \rangle$ sont également inchangées. L'adjonction de colorant dans un méandre pour lequel l'injecteur est rempli de coton révèle toujours la présence de recirculations en certains points. Ces tourbillons ne proviennent donc pas de l'injection. Par contre, nous avons noté que, de façon générale, les recirculations étaient particulièrement marquées lorsque le filet s'accroche anormalement sur des défauts de la surface (cf. Figure III-28a où la largeur du méandre devient anormalement grande et donnera lieu à une recirculation dans l'excroissance).

III.8 Débit décroissant - Hystérésis en débit

Jusque-là, nous n'avons travaillé qu'à débit croissant, mais y a-t-il une différence si l'on mène plutôt les expériences à débit décroissant ? A-t-on les mêmes régimes, aux mêmes seuils, ou y a-t-il une modification du comportement des ruisselets ?

III.8.1 Résultats expérimentaux

Si le débit est diminué à partir d'un filet qui est instable, alors le seuil entre filet instable et méandre est retrouvé, inchangé par rapport au cas de manipulations à débit croissant. Par contre, ce n'est pas du tout le cas pour le seuil méandres/filet droit (cf. Figure III-29).

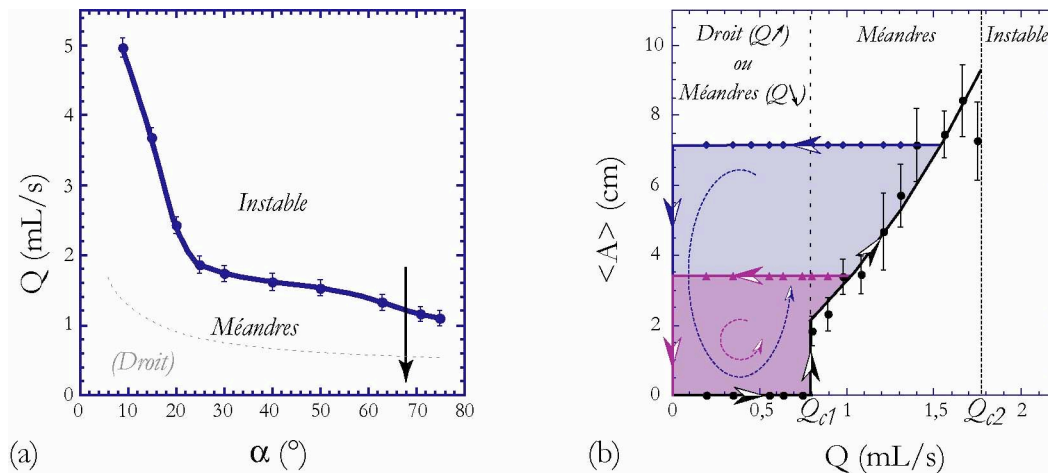


Figure III-29 : (a) Diagramme d'état à débit décroissant. Le seuil filet droit/méandres, n'existant qu'à débit croissant, est indiqué en grisé. (b) Cycles d'hystérésis de l'amplitude moyenne, obtenus en procédant par débit croissant puis décroissant.

Partons d'un méandre stationnaire, établi par débit croissant, et diminuons le débit. Contrairement au cas croissant, où la forme des méandres est fortement dépendante du débit, les méandres ne changent plus de forme lorsque le débit est diminué. Bien sûr, le filet s'amincit tout de même⁹, et ce jusqu'à un débit quasi-nul pour lequel le filet repasse directement à un régime de goutte-à-goutte. Nous pouvons tracer le diagramme d'état des filets pour les débits décroissants (cf. Figure III-29a). Contrairement à ce qui est vu à débit croissant, on ne trouve donc jamais de filet droit lorsqu'on procède à débit décroissant, ce qui explique probablement le désaccord sur l'existence de ce régime droit dans les articles expérimentaux pionniers [NAKAGAWA & SCOTT (1984), SCHMUKI & LASO (1990)]. La très forte hystérésis en débit peut être représentée par le cycle en amplitude tracé sur la Figure III-29b.

⁹ L'amincissement des méandres diminue fortement les reflets de la lumière sur les ruisselets. Cela pourrait être exploité pour diminuer les changements importants de luminosité qui apparaissent le long des méandres et ainsi faciliter l'extraction automatique de leur forme par un logiciel de traitement d'image.

III.8.2 Origine physique de l'hystérésis en débit

Lorsqu'on décroît le débit pendant le régime de méandres, les méandres restent totalement stables, sans changer de forme jusqu'à des débits quasi-nuls. Cette très forte hystérésis en débit est due aux forces d'accrochage sur le substrat qui sont réactives, et agissent vers l'extérieur du virage lors de la décroissance du débit, s'opposant alors à la réduction des méandres. Pour les grands virages des méandres stationnaires, les forces d'accrochage arrivent à équilibrer sans problème la capillarité (qui n'est pas très forte puisque les courbures sont grandes), même si les forces d'inertie finissent par tendre vers zéro. Les méandres arrivent ainsi à conserver leur forme jusqu'à des débits quasi-nuls, et finissent par se briser en gouttes, sans repasser par un régime en filet droit.

III.9 Influence de perturbations et de la viscosité

III.9.1 Débat sur l'origine des méandres : fluctuations en amont de l'injection, dues à la pompe, ou non ?

Je voudrais ici lever le doute sur un point récemment soulevé : certains pensent que les méandres ne sont qu'un artefact dus *uniquement* aux fluctuations de débit induites par la pompe. N'ayant pas vu de méandres avec une solution aqueuse de glycérol ($\eta=5$ cP) injectée depuis un bac à niveau constant et ayant réussi à les restituer en excitant acoustiquement un filet droit à l'aide d'un haut-parleur de 20 W à une fréquence de 300 Hz, MERTENS *et al* concluent (de façon erronée) que les méandres sont entièrement causés par des perturbations en amont de l'injection [MERTENS *et al* (2004) et (2005)]. Selon eux, les méandres peuvent être supprimés, en maintenant le débit constant, par exemple en injectant simplement le fluide à l'aide d'un bac de grande dimension, placé en hauteur.

Bien que le modèle de pompe que nous avons utilisé (pompe à engrenage) soit spécialement prévu pour délivrer un débit constant avec des pulsations très faibles (moins de 1%), nous avons tout de même modifié l'injection de notre montage, afin de dissiper tout malentendu. Avec l'aide de Stéphane LEGRAND (en stage de l'E.S.P.C.I.), la pompe a été supprimée et remplacée par un bac à niveau constant placé en hauteur (le niveau est maintenu constant par débordement). Une vanne de précision, incluse dans le débitmètre, permet de faire varier le débit. Le résultat est sans appel : nous avons bien obtenu des méandres, et de surcroît retrouvé exactement les mêmes méandres qu'avec la pompe, c'est-à-dire mêmes seuils de méandrage et même morphologie ($\langle A \rangle$, $\langle R_c \rangle$ et $\langle \lambda \rangle$). La Figure III-30 montre une comparaison de l'amplitude et de la longueur d'onde moyennes des méandres avec et sans pompe. Les deux configurations donnent bien les mêmes résultats, le léger décalage entre les points avec et sans pompe provenant de la petite différence d'inclinaison du substrat avec laquelle les mesures ont été effectuées (23° pour les mesures sans pompe et 20° pour les mesures avec pompe). L'existence de méandres même en l'absence de pompe est confortée par de nombreux articles expérimentaux, tous réalisés avec des bacs suspendus en hauteur, et dans lesquels les auteurs rapportent tous l'existence d'un régime de méandres [CULKIN (1982), NAKAGAWA & SCOTT

(1984), WALKER (1985), SCHMUKI & LASO (1990)]. L'interprétation de MERTENS *et al*, consistant à attribuer les méandres uniquement aux fluctuations de la pompe, paraît donc erronée.

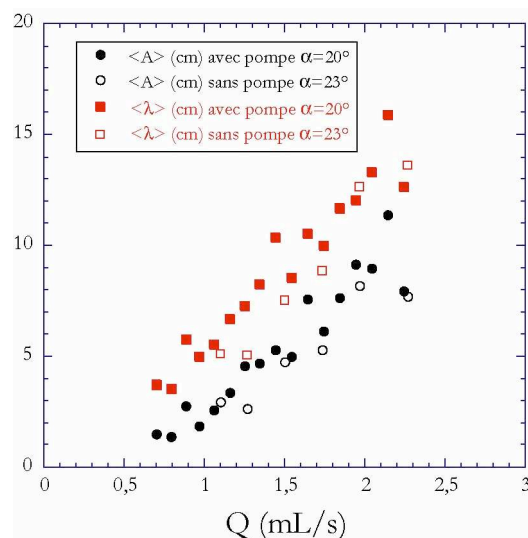


Figure III-30 : Comparaison de l'amplitude et de la longueur d'onde des méandres avec pompe (symboles pleins) et sans pompe (symboles creux). L'inclinaison est de $\alpha = 23^\circ$ pour les expériences sans pompe, contre $\alpha = 20^\circ$ avec pompe.

Enfin, une dernière évidence montrant qu'un filet n'a pas besoin de pulsations d'une pompe pour former des méandres est qu'à l'image de la goutte présentée à la Figure II-23, nous avons réussi à produire (pour certains revêtements) des gouttes possédant une longue queue à l'arrière et dont le filet, solidaire de la goutte, peut lui aussi méandrer (cf. Figure III-31) ! La tête de la goutte descend tout droit et ce n'est que le filet qui la suit qui méandrer. Le méandre reste fixe par rapport au substrat et la queue de la goutte ne fait que s'écouler le long du chemin sinueux tracé. Il n'est donc plus ici question de pompe pour ces gouttes, et pourtant ... elles méandrent !

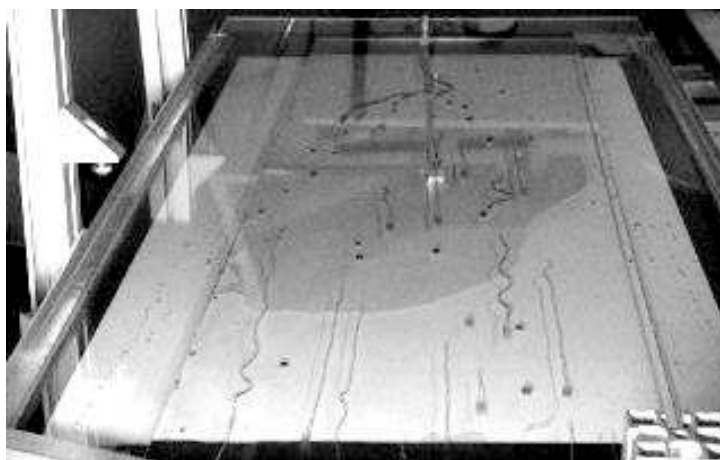


Figure III-31 : Gouttes d'eau « spermatozoïdes » dont la queue se met à méandrer sur un substrat recouvert du produit commercial RainX (PDMS).

III.9.2 Perturbations d'un filet droit en aval de l'injection – Déclenchement de méandres

III.9.2.1 Cas de l'eau

Nous avons cherché à provoquer des méandres en perturbant des ruisselets droits d'eau, soit en faisant vibrer contre le substrat une tige introduite dans le ruisselet et qui vient taper perpendiculairement à la plaque, soit en faisant directement osciller l'injection latéralement. Dans le cas de l'eau distillée (le cas de liquides plus visqueux est discuté dans la section suivante), aucune perturbation n'a réussi à déclencher le moindre méandre, même en perturbant des filets à la limite du seuil de méandrage. Les mouvements de la tige dans le filet ne génèrent au plus qu'un faible déplacement des ruisselets qui restent alors coincés dans leur nouvelle position par l'hystérésis de mouillage (accrochage sur le substrat), mais ces nouvelles perturbations ne se développent pas et ne forment donc pas de méandres. Quant au déplacement direct de l'injection, lorsque le mouvement est de faible amplitude, le filet reste droit. Pour des oscillations d'amplitude plus importante, le filet se rompt mais reprend tout droit juste après, sans jamais réussir à commencer la moindre boucle de méandre. Le seuil de nos méandres d'eau est donc déterminé sans ambiguïté, par une simple augmentation du débit imposé par la pompe (à inclinaison donnée).

III.9.2.2 Effet de la viscosité

D'où provient alors la différence entre nos résultats et ceux de MERTENS *et al* (2004) et (2005) ? Nous avons travaillé principalement avec de l'eau ($\eta=1$ cP), alors qu'ils ont utilisé un mélange eau/glycérol environ 5 fois plus visqueux. SCHMUKI et LASO (1990) ont déjà constaté que la viscosité diminuant l'amplitude des méandres et augmentant les temps caractéristiques des transitoires, ce qui rendait le seuil droit/méandres difficile à distinguer au-delà de 20 cP (seul le régime droit pouvait être vu dans ce cas). Cela pourrait expliquer pourquoi MERTENS *et al* ne voient pas de méandres dans leurs expériences. Il faut aussi préciser que le substrat de MERTENS *et al* est différent du nôtre, ce qui pourrait également modifier les conditions de méandrage. L'hystérésis n'étant pas communiquée dans leurs articles, il est difficile de discuter davantage ce point.

Afin de nous rendre compte par nous-même des changements induits par la modification de la viscosité du liquide, nous avons perturbé des fluides plus visqueux que l'eau. Pour cela, nous avons ajouté du glycérol dans de l'eau, en proportions plus ou moins importantes, afin de faire varier la viscosité. En dessous de 5 cP, nous obtenons des méandres, ressemblants aux méandres d'eau, et les perturbations de filets droits ne génèrent pas de méandres. Par contre, les comportements commencent à se modifier fortement pour des viscosités de l'ordre de 7 cP (55% de glycérol en volume). Il devient alors possible de déclencher des méandres à partir d'un filet droit perturbé, par exemple en soufflant dessus, pour forcer un léger déplacement latéral du ruisselet en un point (voir Figure III-32). Une fois la perturbation, elle s'amplifie et se propage, donnant naissance à des méandres stationnaires. Sans perturbation, le filet reste totalement droit. Les petites perturbations qui suffisaient à déclencher naturellement les méan-

dres de fluides peu visqueux (défauts de surface par exemple), ne sont plus suffisantes ici et il faut perturber davantage le filet. Ce déclenchement extérieur de méandres visqueux rejoint l'observation effectuée par MERTENS *et al* (2005), qui ont initié des méandres par excitation acoustique. Le comportement des ruisselets visqueux semble donc assez différent du comportement peu visqueux que nous avons étudié dans ce manuscrit et a conduit MERTENS *et al* à conclure, de façon erronée, que les méandres n'étaient qu'un artefact généré par la pompe.

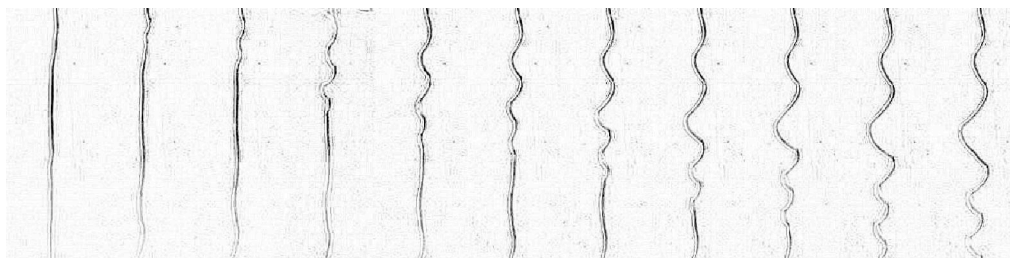


Figure III-32 : Perturbation d'un filet droit de viscosité 7 cP s'écoulant sur du Mylar. L'écoulement se fait de haut en bas. Le haut du filet est perturbé puis, une fois la perturbation initiée, elle s'amplifie et se développe toute seule, formant des méandres stationnaires d'amplitude croissante. Les images sont espacées de 3 s.

Notons une différence supplémentaire par rapport aux méandres non-visqueux : leur forme finale est différente car leur amplitude et leur longueur d'onde croissent le long de la plaque (voir Figure III-33a). Ce phénomène n'apparaît pas pour des liquides de viscosité inférieure à 5 cP pour lesquels l'amplitude est constante d'un virage à l'autre. Les méandres visqueux s'amplifient fortement tout le long de la plaque et il est probable que l'on observe en fait un état d'amplification de l'instabilité qui finirait par saturer à des distances supérieures à la longueur de notre plaque (cf. Figure III-33b). L'évolution du taux de croissance des méandres demande à être approfondie, par une étude détaillée des méandres selon la viscosité du liquide.

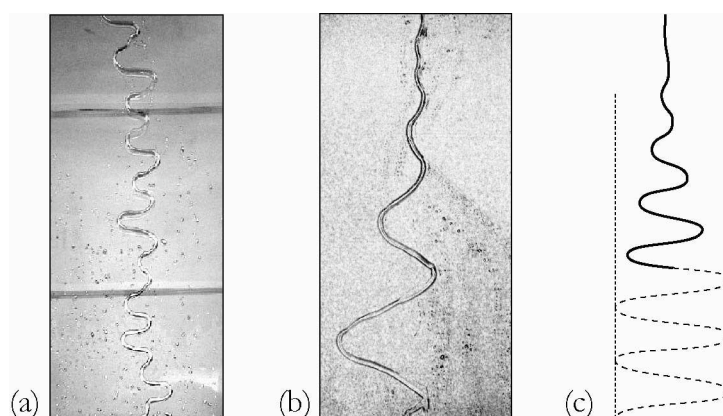


Figure III-33 : (a) Méandre d'eau sur du Mylar. Il n'y a pas d'amplification du motif. (b) Amplification des méandres pour un mélange eau-glycérol de viscosité $\eta=7$ cP. (c) Saturation supposée des méandres visqueux à une distance supérieure à la longueur de notre substrat.

III.10 Conclusion – Discussion

Reprenons l'ensemble des résultats présentés dans ce chapitre en discutant les principaux points. Dans le problème du méandrage, quatre forces entrent en jeu : la gravité, les forces d'inertie, la tension de ligne, et enfin les forces d'accrochage sur le substrat. La gravité (F_g) n'intervient pas directement dans la croissance latérale de l'instabilité sinueuse de méandrage, ni au niveau de l'équilibre latéral des forces au sommet des virages. Elle intervient toutefois par l'intermédiaire de la vitesse de l'écoulement, car c'est la gravité qui en est le moteur. L'inertie (F_i) est toujours dirigée vers l'extérieur des courbes, et est donc déstabilisante pour les filets droits. À l'inverse, la tension de ligne (F_γ) s'oppose à la courbure des filets et donc tente de les linéariser. Quant à l'accrochage sur le substrat (F_h), il s'agit d'une force réactive qui s'oppose aux mouvements. Elle va donc, selon les cas, empêcher les méandres de croître et essayer de les retenir dans une configuration droite, ou les empêcher de redevenir droits si le débit est diminué, et maintenir les méandres tels qu'ils sont. L'accrochage sur le substrat pourra donc jouer soit dans un sens, soit dans l'autre et est la source de la très forte hystérésis en débit observée.

III.10.1 Création des méandres – Seuil de méandrage

Les méandres peu visqueux se créent par amplification d'une petite perturbation (défauts du substrat, ...) qui se traduit par une déviation du ruisseau par rapport au filet droit, dont le rayon de courbure est millimétrique. Les perturbations ne s'amplifient qu'à condition que l'inertie domine la tension de ligne et l'accrochage sur le substrat, ce qui impose une valeur seuil au-delà de laquelle les méandres peuvent se développer. Étant donné que l'inertie et la tension de ligne sont inversement proportionnelles au rayon de courbure, elles dominent l'accrochage sur le substrat tant que le rayon de courbure reste petit (ce qui est le cas à la genèse des méandres). L'inertie fait alors croître les méandres qui se développent latéralement et vers l'aval.

L'équilibre inertie/capillarité nous a permis de déduire une loi de puissance pour le seuil des méandres, qui est bien vérifiée expérimentalement (cf. Figure III-9). Le calcul du préfacteur de cette loi de puissance, obtenu en écrivant l'équilibre inertie/tension de ligne et en supposant un écoulement de Poiseuille dans une portion de cylindre d'angle de contact $\theta_{\text{moy}} = (\theta_{a,s} + \theta_{r,s})/2$, ne redonne toutefois pas les valeurs expérimentales du seuil, mais prévoit un facteur 5 trop bas (voir détails du calcul en Annexe D). Pour une description complète du seuil, avec préfacteurs, l'accrochage sur le substrat ne doit pas être négligé par rapport à la tension de ligne l'équilibre des forces. Le seuil de méandrage est alors donné par la relation :

$$\rho \frac{Q_{c1}^2}{S} = \gamma \left[C(\theta)w + (\cos \theta_{r,s} - \cos \theta_{a,s}) r_c \right] \quad (\text{III.50})$$

Si, comme on semble le voir dans les expériences, le rayon de courbure initial r_c suit la même évolution que la largeur w des méandres, alors la loi de puissance en $\sin^{-3/5} \alpha$ proposée à la section III.4.2 reste inchangée. Par contre, le préfacteur se trouve modifié par l'hystérésis de mouillage : le seuil augmente avec l'hystérésis.

III.10.2 Rôle de l'hystérésis de mouillage dans la stationnarité des méandres

Une fois les méandres déclenchés, ils se mettent à croître, ce qui fait diminuer l'inertie et la tension de ligne car ces forces sont inversement proportionnelles au rayon de courbure du filet. Les forces d'accrochage sont par contre indépendantes de la courbure du filet. Elles se mettent alors rapidement à dominer la tension de ligne et deviennent surtout suffisamment fortes pour contrecarrer l'inertie. L'amplification des méandres se trouve alors stoppée par l'hystérésis de mouillage et les ruisselets arrêtent de se développer pour prendre une forme stationnaire. Remarquons que sans l'hystérésis de mouillage, les méandres ne pourraient pas être stationnaires.

Les forces d'accrochage seront probablement mobilisées de façon maximale lorsque les méandres auront atteint leur forme stationnaire, avec les angles de contact égaux à $\theta_{a,s}$ sur le flanc externe et à $\theta_{r,s}$ sur le flanc interne : $F_h = F_h^{\max} = \gamma (\cos \theta_{r,s} - \cos \theta_{a,s})$. Des mesures de profils de méandres, réalisées par NAKAGAWA & SCOTT (1984), semblent aller dans ce sens. Nous projetons d'effectuer des mesures plus quantitatives pour vérifier la valeur des angles de contact.

III.10.3 Morphologie des méandres stationnaires

Lorsque les méandres ont atteint leur forme finale, les deux forces dominantes sont les forces d'accrochage sur le substrat (stabilisantes ici) et l'inertie (déstabilisante). L'équilibre de ces deux forces a permis de proposer une loi de variation du rayon de courbure avec le débit, qui reproduit bien nos résultats expérimentaux. La même loi de puissance, en $Q^{3/2} \sqrt{\sin \alpha}$, semble également être suivie par l'amplitude et la longueur d'onde moyennes des méandres, ce que nous avons résumé dans la Figure III-34.

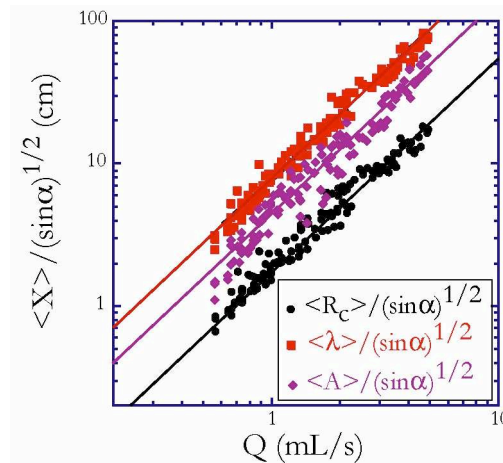


Figure III-34 : Loi de puissance commune pour l'amplitude, la longueur d'onde et le rayon de courbure moyen des méandres.

Concernant le rayon de courbure, nous disposons même d'une loi complète sans paramètre ajustable, qui reproduit très bien les mesures de $\langle R_c \rangle$ qui ont été faites. Pour cela, nous avons modélisé l'écoulement dans les ruisselets par un Poiseuille, hypothèse qui a été confirmée par nos mesures de vitesse au sein des filets (effectuées par injection de colorant et suivi de son avancée au cours du temps). La vitesse moyenne dans les filets droits s'est avérée correspondre à celle attendue pour un écoulement de Poiseuille, et semble également être le cas en régime de méandres (à condition de prendre en compte la sinuosité des filets). La modélisation de l'écoulement semble donc correcte et donne une description complète du rayon de courbure avec Q et α .

D'autre part, nous avons vu que les méandres pouvaient être correctement décrits par une forme en arcs de cercles reliés par des parcours obliques inclinés d'un angle ϕ par rapport à l'horizontale, impliquant la relation :

$$\langle \lambda \rangle = 2 \langle A \rangle \phi + 4 \langle R_c \rangle (1 - \phi)$$

L'angle ϕ semble être identique pour tous les débits et inclinaisons (ou peu variable avec Q et α), de l'ordre de 17° . Dans la description de l'amorçage des méandres, nous proposons que ceux-ci se produisent lorsque l'inertie est suffisamment forte pour dépasser la tension de ligne et l'accrochage, et ainsi amplifier les perturbations. Pourquoi alors n'y a-t-il pas de nouvelles déstabilisations des parties droites joignant deux virages d'un méandre ?

Comme vu dans la section III.7, la vitesse au sein des méandres chute fortement à la transition régime droit/méandres (probablement à cause d'une réduction de la gravité effective le long du ruisselet du fait qu'il ne s'écoule plus selon la ligne de plus grande pente). Surtout, elle demeure inférieure à la vitesse atteinte à la transition entre le régime droit et les méandres. Une fois en méandres, la vitesse dans les filets devient donc trop faible pour que l'inertie puisse dominer les forces stabilisantes (tension de ligne et accrochage sur le substrat) et entraîner l'amplification de perturbations. Ainsi, les parcours obliques joignant deux virages d'un méandre restent stables. Par contre, d'éventuelles parties du ruisselet qui n'auraient pas encore développé de méandres sont instables puisque la vitesse d'écoulement y est suffisamment importante pour que l'inertie puisse jouer son rôle amplificateur des perturbations.

Notre modélisation des méandres a donc bien avancé, mais elle comporte tout de même quelques lacunes. Tout d'abord, nous n'avons pas encore compris pourquoi les méandres suivent cette structure en arcs de cercles et parcours obliques. De plus, même si l'on suppose que cette structure est bien la bonne, il nous manque toujours le mécanisme qui sélectionne la longueur $\langle A \rangle - 2 \langle R_c \rangle$ des parcours obliques. L'équilibre inertie/accrochage nous donnant $\langle R_c \rangle$, nous pourrions avoir l'amplitude moyenne $\langle A \rangle$ si nous savions ce qui détermine la longueur de ces parcours, la forme arcs de cercles et segments de droites inclinés donnant enfin $\langle \lambda \rangle$.

III.10.4 Rôle de la gravité sur la forme des méandres

Jusque-là, nous avons un peu mis la gravité de côté, celle-ci n'intervenant qu'à travers la vitesse de l'écoulement, puisque nous ne nous intéressions qu'à la déstabilisation du sommet d'un virage ou à leur équilibre. Cependant, la gravité pourrait permettre d'expliquer quelques formes constatées sur les méandres.

Cette force pourrait en effet permettre d'expliquer comment les ruisselets basculent d'un virage à un autre et éclairer le mode de sélection d'un angle ϕ pour les parcours obliques. Aux points d'inflexion, qui marquent le passage d'un virage à l'autre des méandres, la courbure est nulle et donc les forces d'inertie (et de tension de ligne) également. Normalement à la ligne de contact, il ne reste plus en jeu que l'accrochage sur le substrat et la gravité. L'équilibre des forces perpendiculaires au ruisselet donne :

$$\rho g S \sin \alpha \cos \phi = \gamma (\cos \theta_{r,s} - \cos \theta_{a,s}) \quad (\text{III.51})$$

Si le poids est suffisamment fort ($\rho g S \sin \alpha > \gamma (\cos \theta_{r,s} - \cos \theta_{a,s})$), il va pouvoir dépasser l'hystérésis pour un angle ϕ tel que :

$$\cos \phi = \frac{\gamma (\cos \theta_{r,s} - \cos \theta_{a,s})}{\rho g S \sin \alpha} \quad (\text{III.52})$$

qui définit les points d'inflexion des méandres, les filets basculant alors d'un virage au suivant. Si par contre l'hystérésis est toujours supérieure à la gravité, le ruisselet peut devenir horizontal ($\cos \phi = 1$) et il est maintenu sans glisser par les forces d'accrochage sur le substrat. La vitesse de l'écoulement décroît alors et la section du filet augmente jusqu'à ce que le poids devienne à nouveau dominant et fasse à nouveau basculer le méandre vers un nouveau virage.

Nous avons pu observer ces deux scénarios sur les méandres, mais sans réussir à les séparer en fonction des paramètres de contrôle α et Q , les deux cas de figure pouvant même apparaître au sein d'un même méandre (cf. Figure III-35). De plus, nous n'avons pas remarqué particulièrement de dépendance de ϕ avec l'inclinaison α de la plaque, contrairement à ce que prévoit la relation (III.52). Cet effet de la gravité, conditionnant le basculement d'un virage à un autre, est très certainement lié à l'amplitude des méandres, mais son action exacte demande encore à être clarifiée.

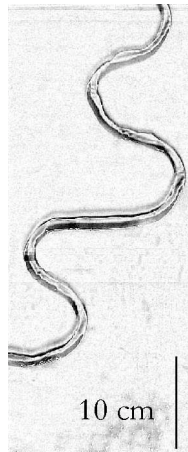


Figure III-35 : Méandre d'eau sur du Mylar présentant à la fois des sorties de virage horizontales et des sorties avec segments inclinés. $\alpha = 6^\circ$, $Q = 3,75 \text{ mL/s}$.

La gravité est probablement à l'origine d'un autre phénomène parfois rencontré : une dissymétrie entre l'amont et l'aval du virage d'un méandre (voir Figure III-36a). En effet, la

gravité n'influe pas dans le même sens avant ou après un virage (cf. Figure III-36b). En amont d'un virage, elle est stabilisante, agissant dans le même sens que l'hystérésis, et contre l'inertie. Par contre, en aval du sommet du virage, la gravité devient déstabilisante, agissant cette fois avec l'inertie, et contre l'hystérésis. Il en résulte une dissymétrie dans la forme de certains virages. Cependant, tous les virages ne montrent pas cette dissymétrie. Là encore, cet aspect mériterait d'être éclairci.

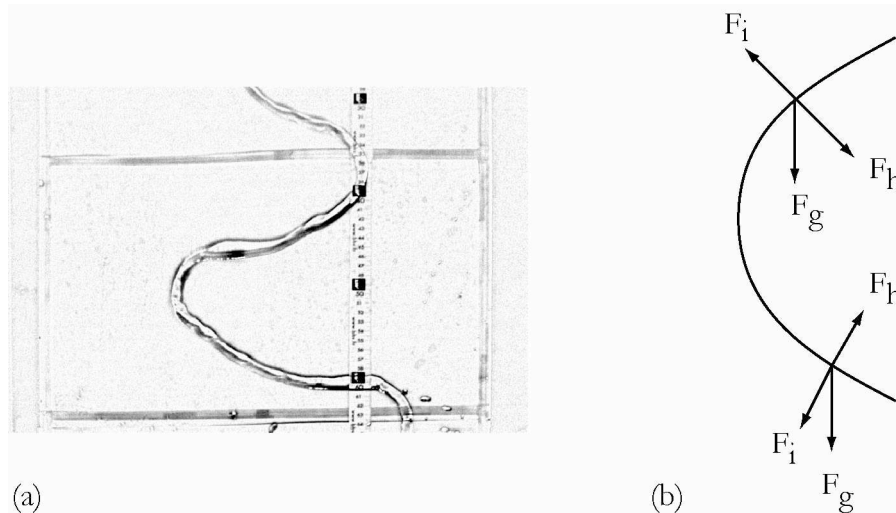


Figure III-36 : Dissymétrie d'un virage. (a) L'écoulement se fait de haut en bas. $\alpha=9^\circ$, $Q=4,51$ mL/s. (b) Orientation des forces d'inertie (F_i), d'hystérésis (F_h) et de gravité (F_g) dans le plan de la plaque. La gravité ne joue pas le même rôle avant ou après le sommet des virages.

III.11 Perspectives

Malgré les avancées nombreuses que nous avons faites dans la compréhension des méandres, leur étude est loin d'être finie et il reste encore beaucoup de pistes à explorer ou à approfondir. Concernant les méandres d'eau tout d'abord, il serait intéressant de mesurer les angles de contact des méandres pour quantifier l'effet des forces d'accrochage sur le substrat et vérifier si elles sont bien mobilisées de façon maximale lorsque les méandres atteignent leur forme stationnaire. Nous pourrions par exemple relever la déviation d'une nappe laser, due à son passage à travers un méandre, ce qui permettrait de remonter au profil des méandres et plus particulièrement aux angles de contact. Cette méthode a déjà été utilisée par RIO (2005) pour reconstruire le profil de gouttes d'huile silicone dévalant un plan incliné non-mouillant. Malheureusement, les quelques essais de projection d'une nappe laser sur les méandres que nous avons effectués n'ont pas été concluants. Les figures de réfraction obtenues sont particulièrement complexes, à cause de la courbure des interfaces dans les virages, mais aussi à cause de perturbations par les ondes de surface qui courent le long des méandres. Il serait donc préférable de se limiter plutôt à l'utilisation d'un spot laser.

L'étude détaillée du champ de vitesse pourrait également apporter des informations précieuses à l'amélioration de la compréhension du méandrage. Les mesures que nous avons

effectuées étaient compliquées par la diffusion du colorant au sein du filet, mais également par le fait que l'écoulement présente des gradients de vitesse importants sur la petite largeur millimétrique des méandres (cf. Figure III-37). La vitesse est bien supérieure sur l'extérieur des virages que sur l'intérieur, et comme intérieur et extérieur s'inversent à chaque virage, le colorant ne cesse de se décaler puis de se rattraper pour se redécaler dans l'autre sens. Nous n'avions donc mesuré que la vitesse moyenne, prise au centre des filets. Une méthode alternative au suivi de colorant pourrait être l'utilisation de la technique de PIV (Particle Image Velocimetry) qui permettrait de cartographier l'ensemble du champ de vitesse dans les méandres. Nous pourrions ainsi obtenir des informations précieuses sur la totalité du champ de vitesse. Couplées avec les mesures d'angles de contact le long des méandres, nous aurions une caractérisation assez complète des méandres.



Figure III-37 : Gradients de vitesse au sein des méandres révélés par injection de bleu de méthylène. Le colorant n'avance pas en front perpendiculaire au méandre, mais il se déplace beaucoup plus rapidement sur l'extérieur des virages que sur l'intérieur.

Les différences importantes constatées dans le comportement de l'écoulement de fluides peu visqueux et de fluides de viscosité supérieure à 7 cP (forme finale et nécessité de forcer ou non le déclenchement des méandres) montre qu'il est évidemment crucial de mener maintenant une étude approfondie de l'effet de la viscosité sur les méandres. Des expériences d'écoulement de solutions aqueuses de glycérol en concentration variable permettraient de comprendre le rôle exacte joué ici par la viscosité.

Enfin, il serait également profitable de changer de substrats afin de faire varier l'hystérésis de mouillage qui crée une force clef dans le mécanisme des méandres stationnaires. L'utilisation de techniques d'électromouillage [QUILLET & BERGE (2001), MUGELE & BARET (2005)] pourrait aussi permettre de regarder l'effet du changement des angles de contact. Quelques expériences préliminaires effectuées sur une plaque de verre enduite de RainX¹⁰, substrat moins hystérétique que le Mylar (environ 15° d'hystérésis contre 35° pour le Mylar), ont en

¹⁰ Le RainX est un produit commercial pour pare-brises, contenant du PDMS et un solvant organique qui s'évapore à l'enduisage, laissant alors une fine couche de PDMS sur le substrat.

effet révélé une influence non nulle de l'hystérésis sur le substrat. En faisant couler des mélanges eau-glycérol sur le RainX (l'eau pure ne s'écoule qu'en gouttes sur ce substrat, formant les « spermatozoïdes » montrés à la section III.9.1), nous avons constaté que les seuils étaient abaissés par rapport au Mylar, ce qui va bien dans le sens prévu par notre modèle du seuil incluant inertie, tension de ligne et forces d'accrochage (III.50).

Il serait également possible de comparer les résultats sur le Mylar et le RainX à un troisième substrat, en travaillant avec des huiles silicone sur le vernis de fluoropolymères FC725 que nous avons utilisé pour l'étude des singularités des gouttes au Chapitre II (il faut noter que les huiles silicone ont une tension de surface est beaucoup plus basse que l'eau, de l'ordre de 20 mN/m). En étudiant la forme de zones sèches dans un film d'huile silicone 5 cP sur du FC725, Julien SEBILLEAU a constaté que des méandres pouvaient bel et bien se former sur ce substrat fluoré (voir Figure III-38). Toutefois, l'hystérésis de mouillage étant très faible (de l'ordre de 5°), les méandres n'arrivent plus à s'accrocher sur le substrat et ne sont plus stationnaires. Nous allons retrouver un phénomène similaire dans la partie suivante consacrée aux ruisselets formés entre deux plaques parallèles en mouillage parfait.



Figure III-38 : Méandres d'huile silicone 5 cP sur une plaque de verre enduite du fluoropolymère FC725. Les filets sont ici formés par rupture d'un film continu dont ils captent le liquide. Inclinaison $\alpha=70^\circ$ et débit $Q=11,8$ mL/s. Vue de trois quarts. Photographie Julien SEBILLEAU.

Bibliographie du Chapitre III

- BANKOFF S.G., 1971, Minimum thickness of a draining film, *Int. J. Heat Mass Transf.*, **14** (12), p. 2143-2146
- BRUINSMA R., 1990, The statistical mechanics of meandering, *J. Phys. France*, **51**, p. 829-845
- CULKIN J.B., 1982, Rivulet meandering, *Thèse de doctorat, Northern University, Illinois, États Unis d'Amérique*
- CULKIN J.B. & DAVIS S.H., 1984, Meandering of water rivulets, *AIChE Journal*, **30**, p. 263-267
- DAVIS S.H., 1980, Moving contact lines and rivulet instabilities. Part 1. The static rivulet, *J. Fluid Mech.*, **98**, p. 225-242
- DE LANGRE E., 2001, Fluides et solides, *Éd. de l'École Polytechnique*, 134 pages
- DRENCKHAN W., GATZ S. & WEAIRE D., 2004, Wave patterns of a rivulet of surfactant solution in a Hele-Shaw cell, *Phys. Fluids*, **16** (8), p. 3115-3121
- GANIC E.N. & ROPPO M.N., 1980, An experimental study of falling liquid film breakdown on a horizontal cylinder during heat transfer, *ASME J. Heat Transf.*, **102**, p. 342-346
- GORYCKI M.A., 1973, Hydraulic drag ; a meander-initiating mechanism, *Geol. Soc. Am. Bull.*, **84**, p. 175-186
- KIM H., KIM J. & KANG B., 2004, Meandering instability of a rivulet, *J. Fluid Mech.*, **498**, p. 245-256
- KISTLER S.F. & SCHWEITZER P.M., 1997, Liquid film coating – Scientific principles and their technological implications, *Éd. Chapman & Hall*, 783 pages
- LE GRAND-PITEIRA N., DAERR A. & LIMAT L., 2006, Meandering rivulets on a plane : a simple balance between inertia and capillarity ?, accepté à *Phys. Rev. Lett.*
- LEOPOLD L.B. & WOLMAN M.G., 1960, River meanders, *Geol. Soc. Am. Bull.*, **71**, p. 769-794
- LIVERPOOL T.B. & EDWARDS S.F., 1995, Dynamics of a meandering river, *Phys. Rev. Lett.*, **75** (16), p. 3016-3019
- MARSHALL J.S. & ETTEMA R., 2000, Rivulet dynamics with variable gravity and wind shear, *Proceedings of the 5th microgravity fluid physics and transport phenomena conference*, p. 1217-1227
- MERTENS K., PUTKARADZE V., VOROBIEFF P., 2004, Braiding patterns on an inclined plane, *Nature*, **430** (8), p. 165
- MERTENS K., PUTKARADZE V., VOROBIEFF P., 2005, Morphology of a stream flowing down an inclined plane. Part 1. Braiding, *J. Fluid Mech.*, **531**, p. 49-58
- MUGELE F. & BARET J.-C., 2005, Electrowetting: from basics to applications, *J. Phys.: Condens. Matter.*, **17**, p. R705-R774

- NAKAGAWA T. & SCOTT J.C., 1984, Stream meanders on a smooth hydrophobic surface, *J. Fluid Mech.*, **149**, p. 89-99
- NAKAGAWA T., 1992, Rivulet meanders on a smooth hydrophobic surface, *J. Multiphase Flow*, **18 (3)**, p. 455-463
- PODGORSKI T., FLESSELLES J.-M. & LIMAT L., 1999, Dry arches within flowing films, *Phys. Fluids*, **11**, p. 845-852
- PODGORSKI T., FLESSELLES J.-M. & LIMAT L., 2001, Corners, cusps and pearls in running drops, *Phys. Rev., Lett.*, **87**, p. 036102-036105
- QUILLET C. & BERGE B., (2001), Electrowetting: a recent outbreak, *Cur. Opin. Coll. Interf. Sci.*, **6**, p. 34-39
- ROY R.V. & SCHWARTZ L.W., 1999, On the stability of liquid ridges, *J. Fluid Mech.*, **391**, p. 293-318
- SCHMUKI P. & LASO M., 1990, On the stability of rivulet flow, *J. Fluid Mech.*, **215**, p. 125-143
- SEKIMOTO K., OGUMA R. & KAWASAKI K., 1987, Morphological stability analysis of partial wetting, *Ann. Phys.*, **176**, p. 359-392
- WALKER J., 1985, The amateur scientist. What forces shape the behavior of water as a drop meanders down a windowpane ? *Am. Sci.*, **253 (sept.)**, p. 132-137
- YOUNG G.W. & DAVIS S.H., 1987, Rivulet instabilities, *J. Fluid Mech.*, **176**, p. 1-31

Chapitre IV.

Méandres mouvants en mouillage total



NOUS avons vu, au chapitre précédent, comment un filet liquide s'écoulant sur une plaque partiellement mouillée peut développer des méandres stationnaires dont la forme est stabilisée grâce à l'hystérésis de mouillage. Que devient alors le méandrage si l'on supprime l'hystérésis de mouillage ? Peut-il toujours y avoir des méandres ? Quels changements cela implique-t-il par rapport au cas avec hystérésis ?

Pour supprimer l'hystérésis, nous nous sommes placés en conditions de mouillage total. Mais lorsqu'un liquide mouille totalement le substrat, il forme un film liquide (voir rappels à la section I.3) et pas un filet liquide. Sans filet, il est donc impossible d'obtenir du méandrage par simple écoulement sur une plaque totalement mouillante. Afin d'essayer d'empêcher le mouillage total et forcer le liquide à former un filet, nous l'injectons entre deux plaques très faiblement espacées (« cellule de Hele-Shaw »). Le liquide forme ainsi un pont reliant les deux plaques, ce qui le contraint à former un filet au lieu de s'étaler en film. Nous espérons alors réussir à obtenir des méandres dans la cellule de Hele-Shaw. Par ailleurs, comme nous restons en mouillage total, il n'y a pas d'hystérésis et donc pas de force d'accrochage du liquide sur le substrat. Nous nous attendons alors à ce que les méandres ne puissent plus être stationnaires. Pour obtenir le mouillage total des plaques de la cellule, nous avons additionné des surfactants à l'eau injectée entre les plaques, ou utilisé des huiles silicones.

L'étude effectuée dans ce chapitre se positionne à la suite de travaux effectués par Wiebke DRENCKHAN dans l'équipe de WEAIRE au « Trinity College » de Dublin. Quelques prémanipulations avaient aussi été effectuées en collaboration avec Florence ELIAS, à l'Université Paris 7. Leur objectif était de reproduire les mouvements d'ondulation des bords de Plateau. Ce chapitre a bénéficié de l'aide précieuse apportée par Marguerite D'OLCE et Vincent MARZLOFF qui, au cours de leurs stages respectifs de D.E.A. de Physique des Liquides et de projet de troisième année de l'E.S.P.C.I., ont contribué à d'importantes avancées sur ce sujet.

IV.1 Historique

ANAND & BEJAN ont été les premiers à s'intéresser à l'instabilité d'un filet d'une solution de surfactant dans une cellule de Hele-Shaw [ANAND & BEJAN (1986)]. À faible débit, grâce aux tensioactifs contenus dans la solution, un film mince (film de savon) forme un pont liquide reliant les deux plaques (voir Figure IV-1a). L'écoulement dans ce film est très faible et la majorité de l'écoulement du liquide se fait le long des plaques, dans les bords de Plateau¹¹ [KOEHLER *et al* 2002]. Usuellement, un bord de Plateau représente une jonction entre trois films dans une mousse ; ici il s'agira du lieu de rencontre de deux films et d'une paroi de la cellule de Hele-Shaw, soit un bord de Plateau externe. En ce qui concerne la structure de l'écoulement, les plaques de la cellule imposent une condition de non-glissement et donc de vitesse nulle à la paroi. Les conditions aux limites sur les deux autres interfaces des bords de Plateau dépendent du caractère rigide ou mobile du surfactant (voir rappels à la section I.2.3). Lorsque le débit est augmenté, la taille des bords de Plateau augmente elle aussi, et ils peuvent

¹¹ Ce nom fut donné en l'honneur de Joseph Antoine Ferdinand PLATEAU (XIX^e siècle), scientifique belge à l'origine des études sur les mousses, s'intéressant plus particulièrement à leur géométrie.

finir par fusionner (cf. Figure IV-1b). À débit encore supérieur, les deux interfaces liquide/air se retrouvent séparées par un film épais (cf. Figure IV-1c).

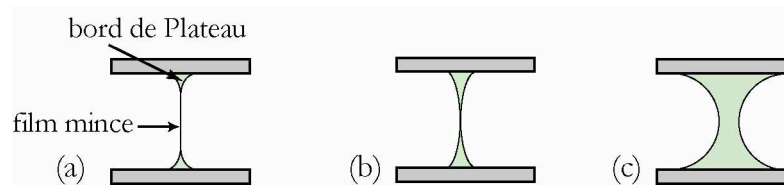


Figure IV-1 : Vue en coupe du filet liquide s'écoulant dans la cellule de Hele-Shaw.

(a) Faible débit, présence de deux bords de Plateau joints par un film mince stabilisé

grâce aux surfactants. (b) Débit un peu plus fort, les bords de Plateau se rejoignent.

(c) A haut débit, les bords de Plateau ont fusionné, il n'y a plus de film mince entre les deux plaques.

ANAND & BEJAN ont injecté une solution de Sulfate de Dodécyle et de Sodium (SDS), à une concentration environ 0,15 fois la concentration micellaire critique, dans une cellule de Hele-Shaw (tension superficielle $\gamma=58,5\pm 2$ mN/m et viscosité $\eta=0,90\pm 0,05$ cP). Ils ont obtenu des méandres en mouillage total, lorsque le débit imposé était suffisamment important. Toutefois, ils ne se sont focalisés que sur la transition filet droit/méandres, et donc ni sur le régime de méandrage proprement dit, ni sur ce qui peut se passer à plus haut débit.

S'intéressant aux ondulations des bords de Plateau, DRENCKHAN *et al* (2004) ont formé des méandres particulièrement réguliers dans une cellule de Hele-Shaw en y injectant une solution de 0,4% de « Fairy liquid », produit à vaisselle commercialisé par PROCTER & GAMBLE (cf. Figure IV-2). Quelques propriétés physicochimiques de ce produit à vaisselle sont résumées dans le Tableau IV-1. Le Fairy est connu pour former des interfaces très rigides (contrairement au SDS) et donc pour imposer un non-glissement sur les faces libres des bords de Plateau [DRENCKHAN *et al* 2004]. Les auteurs se sont particulièrement intéressés à l'évolution de la largeur des ruisselets en fonction du débit et à l'effet de la variation de la distance interplaque.



Figure IV-2 : Produit à vaisselle « Fairy liquid » commercialisé par PROCTER & GAMBLE

PROPRIÉTÉ	RÉSULTAT
Aspect	Liquide vert, translucide
Densité	1,04
Solubilité dans l'eau	Haute
CMC	~ 0,2% en volume
Type d'interface créée	Rigide

Tableau IV-1 : Caractéristiques physicochimiques du « Fairy liquid ». Données extraites de la fiche de données de sécurité [PROCTER & GAMBLE (2005)], et de DRENCKHAN *et al* (2004). CMC mesurée par DRENCKHAN.

DRENCKHAN *et al* ont répertorié cinq régimes d'écoulement, reproduits ici par ordre de débit croissant. (1) Aux plus faibles débits, le filet est droit. Des mesures de la largeur du filet en fonction du débit ont confirmé que l'écoulement était de type Poiseuille, comme attendu en présence d'interfaces rigides. (2) Au-delà d'un débit critique, le filet droit se déstabilise en méandres ascendants de faible amplitude et de très faible vitesse de phase, de l'ordre de quelques millimètres par seconde (voir Figure IV-3a et c). Pour de plus grands débits, (3) l'écoulement est « chaotique », puis (4) le filet se restabilise en méandres descendants, réguliers, de plus grande amplitude et plus grande vitesse de phase que pour les méandres ascendants (voir Figure IV-3b et c). Enfin, (5) l'écoulement est à nouveau désordonné : le filet se sépare en de nombreux sous-filets, fabriquant une quantité importante de mousse.

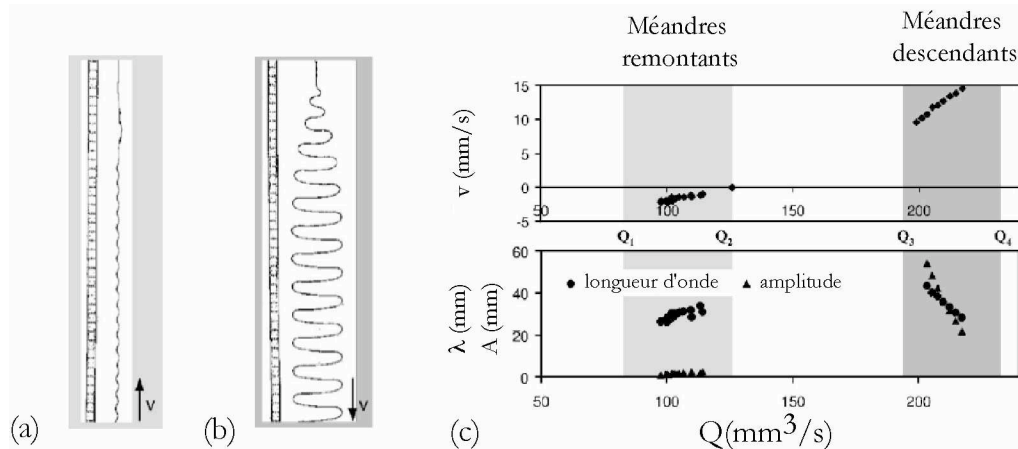


Figure IV-3 : Extraits de DRENCKHAN *et al* (2004). (a) et (b) : Méandres respectivement remontants (faible débit) et descendants (plus haut débit). L'écoulement se fait du haut vers le bas. (c) Évolution de l'amplitude, de la longueur d'onde et de la vitesse de phase des méandres.

Dans leurs expériences, les auteurs ont remarqué un lien entre la longueur d'onde et l'amplitude des méandres descendants ($\lambda^2 \sim Ad$, où d est la distance interplaque), mais l'explication théorique demande à être approfondie. Ils ont également proposé un modèle équilibrant forces d'inertie et tension superficielle, pour déterminer le seuil d'instabilité entre filet droit et méandres. Cependant, le seuil de méandrage prédit par cet équilibre ne correspond pas

aux valeurs observées expérimentalement. De plus, ce modèle ne rend pas compte de la sélection de longueur d'onde observée. Enfin, le rôle des surfactants n'est pas clair. On peut se demander s'ils sont absolument nécessaires au méandrage et si nous ne pourrions pas obtenir les mêmes méandres avec un liquide pur. Il reste donc encore de nombreux points à éclaircir ; c'est pourquoi nous avons repris cette étude.

IV.2 Dispositif expérimental

Afin d'effectuer les expériences, j'ai construit le dispositif illustré sur la Figure IV-4. Différents liquides sont injectés dans la cellule de Hele-Shaw, à des débits variables, pour explorer le méandrage en mouillage total, et tenter d'en comprendre l'origine. Dans tout le chapitre, la cellule est maintenue verticale.

IV.2.1 Cellule de Hele-Shaw

La cellule de Hele-Shaw est constituée de deux plaques de verre de 30 cm de large et 1 m de long, ce qui permet de visualiser l'écoulement sur une grande longueur (cf. Figure IV-4). L'épaisseur du verre est de 0,5 cm pour éviter le voilage des plaques. L'amplitude des méandres de Fairy ne dépassant pas 6 cm [DRENCKHAN *et al* (2004)], une largeur de cellule de 30 cm devrait donc largement suffire pour observer l'ensemble des méandres. Les plaques sont placées en vis-à-vis, séparées par une ou deux lames de microscope accolées, soit par une distance d de 0,95 mm ou 1,9 mm. Le tout est emboîté dans des rails métalliques percés tous les 15 cm pour permettre le maintien des plaques l'une contre l'autre par vissage. Nous utilisons des vis en Nylon afin de ne pas générer d'éclats sur le verre. Une bande de caoutchouc, glissée dans le rail métallique, prévient les chocs. La cellule est maintenue sur une potence en NORCAN. Elle ne contient pas de liquide autre que le filet de solution de surfactant injecté en son sommet.

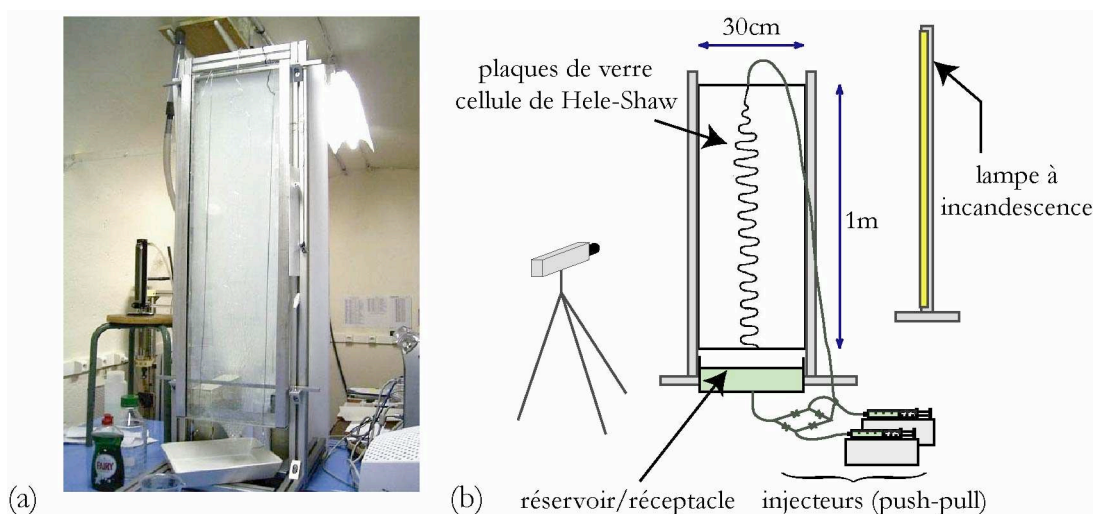


Figure IV-4 : Dispositif expérimental. (a) Photographie du montage. (b) Schéma montrant la méthode d'injection et de visualisation des méandres.

IV.2.2 Système d'injection

L'injection de liquide se fait par le haut de la cellule. Les débits à imposer dans cette expérience étant faibles (moins de 20 mL/min) et le débit devant être contrôlé finement, l'idée d'alimenter le dispositif par un bac à niveau constant placé en hauteur a été abandonnée. Nous avons opté pour l'utilisation de pousse-seringues programmables TECHNICAL & SCIENTIFIC Model 540060, ayant un pas de 0,01 mL/min. L'inconvénient est qu'ils n'acceptent que des seringues de capacité 60 mL au plus, ce qui implique une durée maximale de manipulation de l'ordre de quelques minutes seulement. Cela est très gênant vu qu'avant l'établissement permanent des méandres il y a souvent un régime transitoire de ce même ordre de grandeur. Afin d'injecter les solutions en continu et donc pouvoir observer les régimes permanents, nous avons couplé deux pousse-seringues, montés en « push-pull » (voir détails dans l'Annexe E). L'ensemble du dispositif fonctionne en circuit fermé : le liquide est récupéré en sortie de la cellule dans un réceptacle et aspiré par les pousse-seringues qui le réinjectent ensuite au sommet de la cellule (voir Figure IV-4b).

La buse d'injection au sommet de la cellule doit être suffisamment large pour que le filet qui en sort puisse mouiller les deux parois, mais également suffisamment petite pour s'insérer entre les deux plaques. Nous avons donc utilisé un embout de pipette conique (pipetteman jaune 100 μ L) dont l'extrémité est coupée pour que le diamètre de sortie soit de la taille de l'espacement interplaque.

IV.2.3 Méthode de visualisation

Comme les ruisselets sont transparents, nous les éclairons par derrière avec une lumière la plus homogène possible, placée « à l'infini ». De par leur forme, les bords de Plateau réfractent la lumière et apparaissent alors plus sombres que le reste de la cellule. L'éclairage se fait par une lampe de 185 W, placée à environ 2,5 m derrière la cellule (voir Figure IV-4b). Afin de ne pas avoir trop de variation d'intensité de l'éclairage au cours de la prise d'images des méandres, nous avons préféré utiliser une lampe à incandescence. La géométrie longiligne de la lampe (1 m de long) s'adapte à celle de la cellule et permet d'éclairer cette dernière le plus uniformément possible. Un diffuseur (papier-calque) est également disposé sur la face arrière de la cellule pour homogénéiser davantage l'éclairage.

Les ruisselets sont filmés par une caméra numérique BASLER, placée 2 m devant les plaques, perpendiculairement à celles-ci, et sur laquelle sont adaptés un zoom 12,5-75 mm et une bague allonge de 5 mm. L'ensemble est relié à un ordinateur qui permet de traiter les images à l'aide du logiciel ImageJ.

IV.3 Le « Fairy », pas si féérique que ça...

IV.3.1 Tests au « Fairy liquid » à 0,4%

Nous avons tout d'abord mené des expériences avec du Fairy, dans la lignée de DRENCKHAN *et al.* Nous avons donc testé notre cellule de Hele-Shaw avec une solution à 0,4%

de « Fairy liquid ». La tension superficielle a été mesurée au tensiomètre par la méthode d'arrachement d'un anneau (cf. Annexe A) et la viscosité à l'aide d'un viscosimètre à capillaire (cf. Annexe B) :

$$\gamma = 25,0 \text{ mN / m et } \nu = 0,98 \text{ mm}^2 / \text{s}$$

Les régimes d'écoulement des ruisselets observés correspondent bien à ceux obtenus précédemment par DRENCKHAN *et al* (cf. Figure IV-5). Les filets n'arrivent à être stables que sur une surface déjà mouillée. Quand on injecte le liquide entre les plaques sèches, les écoulements prennent des formes irrégulières dans un premier temps, jusqu'à ce qu'ils aient mouillé les plaques sur toute la surface explorée par les méandres. Afin d'accélérer le processus, la cellule a finalement été entièrement mouillée au préalable avec la solution utilisée.

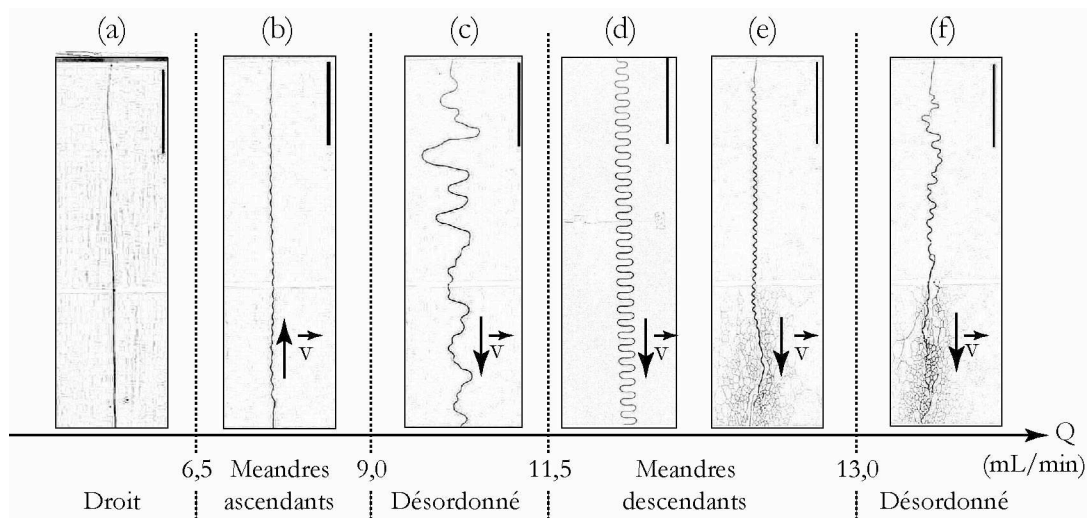


Figure IV-5 : Régimes d'écoulement d'une solution de Fairy à 0,4% dans une cellule de Hele-Shaw dont les plaques sont séparées de 1,9 mm. L'écoulement se fait du haut vers le bas. Les barres noires dans le coin droit représentent 15 cm. Les flèches indiquent le sens de déplacement du motif. (a) Régime droit. $Q=6,0 \text{ mL/min}$. (b) Méandres ascendants de faible amplitude $Q=8,0 \text{ mL/min}$. (c) Régime désordonné $Q=11,0 \text{ mL/min}$. (d) et (e) Méandres descendants à débit respectivement $Q=12,5 \text{ mL/min}$ et $Q=13,0 \text{ mL/min}$. (f) Régime désordonné $Q=14,0 \text{ mL/min}$.

Pour les débits allant jusqu'à $6,5 \text{ mL/min}$, le filet est droit. De $6,5$ à $9,0 \text{ mL/min}$, la configuration droite n'est plus stable et des méandres ascendants de faible amplitude et faible vitesse de phase se mettent en place. De $9,0$ à $11,5 \text{ mL/min}$, l'écoulement devient désordonné, et de $11,5$ à $13,0 \text{ mL/min}$ on retrouve des méandres, descendants cette fois et de vitesse de phase supérieure à celle des méandres ascendants (en valeur absolue). Enfin, au-delà de $13,0 \text{ mL/min}$, l'écoulement redevient à nouveau « chaotique ».

Notons qu'il faut distinguer entre la vitesse de l'écoulement au sein du ruisseau (U) et celle du déplacement du motif de méandres (vitesse de phase v). Nous comptons la vitesse de phase positivement quand les méandres se déplacent dans le même sens que l'écoulement (méandres descendants) et négativement pour les méandres remontants, qui se déplacent dans le sens opposé à l'écoulement.

IV.3.2 Problèmes liés à l'utilisation du Fairy : une dynamique trop riche

Les expériences réalisées avec le « Fairy liquid » nous ont permis de constater que son utilisation présente en fait de nombreuses difficultés qui freinent la bonne compréhension du mécanisme de méandrage. Tout d'abord, les méandres ne sont pas toujours réguliers et évoluent parfois au cours du temps. Des instabilités variqueuses ou des ondes de compression et de dilatation peuvent apparaître (cf. Figure IV-6a). Il arrive également que l'on observe différentes formes de méandres pour un même débit (Figure IV-6b et c), sans que nous en ayons déterminé l'origine.

Le Fairy étant un produit à vaisselle, il a été élaboré pour fabriquer une quantité importante de mousse. Produite particulièrement lors des régimes chaotiques, cette mousse à longue durée de vie se stocke dans le bas de la cellule et gêne considérablement l'évolution des méandres qui viennent se briser dessus (cf. Figure IV-6d). Plusieurs tentatives ont été effectuées pour éliminer la mousse stockée dans la cellule. La méthode qui s'est montrée la plus efficace consiste à injecter de l'air comprimé entre les deux plaques de verre (par exemple à l'aide d'une bombe d'air sec commerciale, utilisée habituellement pour le nettoyage des claviers d'ordinateur). La mousse est instantanément détruite, mais nous ne pouvons procéder à cette manipulation qu'entre deux expériences car l'injection d'air comprimé perturbe aussi grandement le filet liquide qui s'écoule. Le « Fairy liquid » est en fait probablement plus adapté à l'étude des mousses qu'à celles des méandres d'un simple filet.

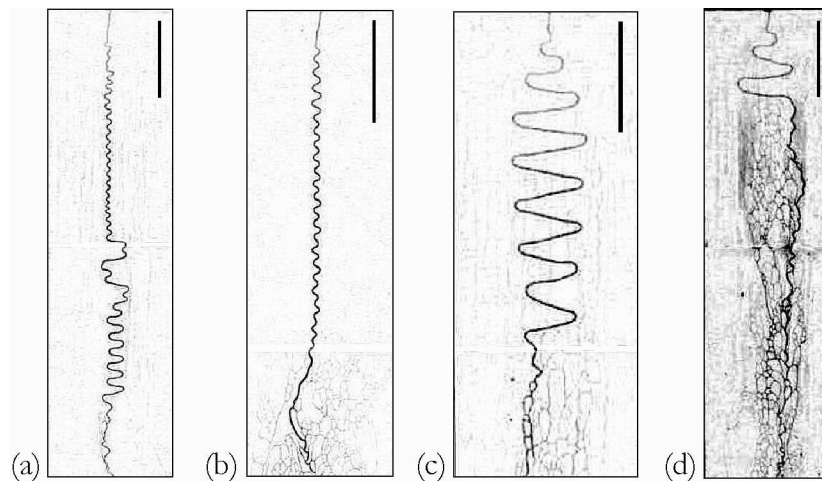


Figure IV-6 : Problèmes rencontrés avec une solution à 0,4% de Fairy, pour une distance interplaques $d=1,9$ mm. L'écoulement se fait du haut vers le bas. Les barres noires représentent 15 cm. (a) Compression et dilatation $Q=13,25$ mL/min. (b) et (c) Formes distinctes de méandres obtenues pour un même débit $Q=12,5$ mL/min. (d) Formation très importante de mousse, gênant l'évolution du méandre. $Q=12,0$ mL/min.

De plus, comme il s'agit d'un produit commercial, le secret de sa composition exacte est bien gardé. Quelques indications sur sa composition sont tout de même fournies par son fabricant dans une « Fiche de Données de Sécurité » [PROCTER & GAMBLE (2005)]. Il contient de nombreux produits (surfactants ioniques et non-ioniques, solvant organique, additifs,...) listés dans le Tableau IV-2. La quantité de substances entrant dans la composition du Fairy complique l'identification de la (ou des) substance(s) à l'origine des effets observés, car il pourrait y avoir des effets combinés.

TYPE	NOM	CONCENTRATION
Surfactant anionique	Alkyl éthoxysulfate de sodium	20-30%
Surfactant non-ionique	N-oxyde C10-16-alkyldimethyl amines	5-10%
Surfactant non-ionique	Alcools, C9-11, éthoxylés	1-5%
Solvant	Éthanol	1-5%
Autres	Parfum, Géraniol, Limonène	-

Tableau IV-2 : Composition du « Fairy liquid » [PROCTER & GAMBLE (2005)]

Enfin, comme nous pouvons le voir sur la Figure IV-5, les méandres réguliers n'existent que sur une très petite plage de débit : de 6,5 à 9,0 mL/min pour les méandres ascendants et de 11,5 à 13,0 mL/min pour les descendants. Cela atténue donc l'espoir d'en tirer des lois expérimentales fiables et d'obtenir des conclusions sur l'origine de ces méandres.

IV.3.3 Objectifs de la présente étude

Le but de ce chapitre a donc été de reprendre l'étude des méandres en mouillage total, mais cette fois-ci en contrôlant la physicochimie. Pour cela nous avons utilisé des solutions à un seul surfactant dans de l'eau, que nous appellerons dans toute la suite « surfactants purs ». Nous avons utilisé des solutions qui génèrent soit des interfaces rigides (Triton X-100), comme le « Fairy liquid », soit des interfaces mobiles (SDS). Les effets de la concentration en surfactant ainsi que ceux de la viscosité ont été étudiés. Enfin, grâce à l'emploi d'huiles silicone, nous avons pu voir si des méandres peuvent apparaître sans surfactants, pour un liquide pur.

IV.4 Une solution d'un seul surfactant : le Triton X-100™

Nous avons donc commencé notre étude par une solution de surfactant pur qui présente la même rigidité de surface que le Fairy : le Triton X-100.

IV.4.1 Description du surfactant

Le Triton X-100™ est un surfactant octylphénol éther (EO₁₀), non-ionique, et de formule chimique semi-développée $\text{CH}_3\text{C}(\text{CH}_3)_2\text{CH}_2\text{C}(\text{CH}_3)_2\text{C}_6\text{H}_4\text{E}_n\text{OH}$, où n est compris entre 9 et 10 (cf. Figure IV-7). Sa partie hydrophile est la chaîne polyéther et sa partie hydrophobe est la chaîne carbonée. Triton X-100™ est une marque déposée, précédemment détenue par ROHM

& HASS CO., mais dorénavant détenue par UNION CARBIDE. La série « X » des détergents Triton se compose d'octylphénols polymérisés par de l'oxyde d'éthylène (1,2-époxyéthane). Le nombre « -100 » se réfère indirectement au nombre d'oxydes d'éthylène présents dans la structure. Le X-100 a une moyenne de 9,5 oxydes d'éthylène par molécule.

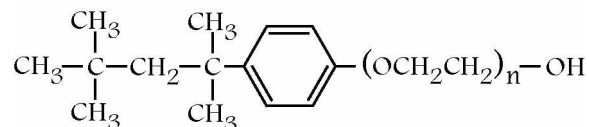


Figure IV-7 : Formule semi-développée du surfactant Triton X-100.

Les principales caractéristiques du Triton X-100 sont regroupées dans le Tableau IV-3. Ce surfactant est souvent utilisé dans des applications biochimiques pour solubiliser des protéines. Il peut également être employé comme agent de mouillage, pour le nettoyage de métaux ou comme émulsifiant. Étant donné qu'il est totalement soluble dans l'eau, la préparation des solutions de Triton à la concentration voulue nécessite juste un mélange avec agitateur magnétique, et éventuellement un léger chauffage. Tout comme le Fairy, ce surfactant est connu pour former des interfaces rigides et devrait donc générer un écoulement de type Poiseuille dans les bords de Plateau.

PROPRIÉTÉ	RÉSULTAT
Aspect	Liquide incolore
Densité à 25°C	1,065
Masse molaire	625 g/mol
Concentration	1,7 mol/L
Viscosité à 25°C	240 cP
Stabilité	Très stable. Fermé, se conserve pendant plusieurs années.
Solubilité dans l'eau	Soluble en toutes proportions
CMC	0,25 mmol/L, soit 0,016% en masse
Type d'interface créée	Rigide

Tableau IV-3 : Caractéristiques du surfactant Triton X-100™. Données extraites des fiches de données de sécurité publiées par SIGMA, et de SHEN *et al* (2002).

IV.4.2 Écoulements observés selon le débit Q imposé

Nous avons espacé les plaques de la cellule de 0,95 mm, correspondant à un écartement par une lame de microscope. La solution utilisée est prise à la concentration micellaire critique ($\eta=1$ cP et $\gamma=30,5$ mN/m). Les tentatives pour augmenter l'écartement interplaque et passer à 1,9 mm se sont avérées infructueuses car alors le liquide mouille difficilement les deux parois de la cellule de Hele-Shaw.

Les différents régimes obtenus avec une solution de Triton X-100 à la concentration micellaire critique sont illustrés sur la Figure IV-8. Pour les débits inférieurs à 5 mL/min, nous

trouvons un régime rectiligne. Entre 5 et 16 mL/min, il se forme des méandres. Au-delà de 16 mL/min, l'écoulement est désordonné et produit beaucoup de mousse qui se stocke dans le bas de la cellule. Nous n'avons pas observé d'hystérésis à la montée ni la descente en débit, contrairement aux méandres en mouillage partiel qui étaient retenus par l'hystérésis de mouillage. Comme nous sommes ici en mouillage total, il n'y a aucun accrochage du liquide sur le substrat, et l'écoulement prend une forme directement liée au débit imposé, sans se soucier de son histoire.

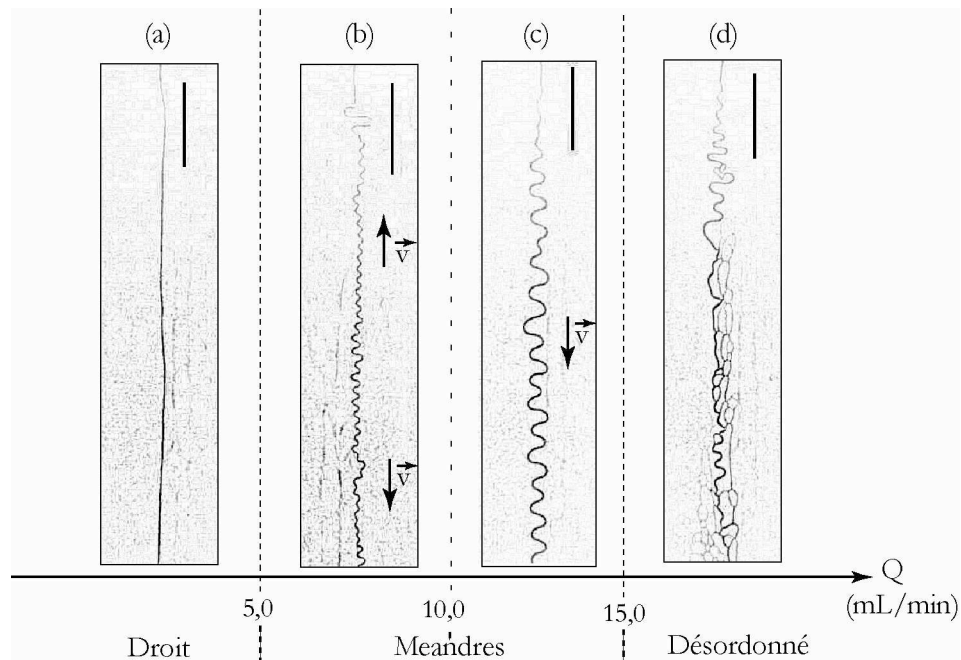


Figure IV-8 : Régimes observés pour une solution de Triton X-100 à la concentration micellaire critique. L'écoulement se fait du haut vers le bas. Les barres blanches dans le coin supérieur droit représentent 10 cm. (a) Régime droit, $Q=4$ mL/min. (b) Méandres dont la partie supérieure remonte alors que la partie inférieure descend, $Q=9$ mL/min. (c) Méandres descendants, $Q=12$ mL/min. (d) Régime chaotique avec création importante de mousse, $Q=18$ mL/min.

De 5 à 10 mL/min, les méandres de la partie supérieure de la cellule remontent, alors que ceux de la partie inférieure descendent. Il apparaît alors un virage de grande amplitude tout en haut des méandres et le ruisseau finit par se rompre par une déstabilisation variqueuse (voir Figure IV-9). Remarquons que des déstabilisations variqueuses avaient aussi été observées avec des solutions de Fairy dans le cas de méandres de grande amplitude [DRENCKHAN *et al* 2004]. Pour des débits supérieurs à 10 mL/min (jusqu'à 16 mL/min), les méandres de Triton X-100 ne sont que descendants.

En régime de méandres, le nombre de Reynolds typique, basé sur la largeur d'un bord de Plateau, est de l'ordre de :

$$Re = \frac{wU}{\nu} = \frac{w}{\nu} \frac{Q}{S} \sim 200 \quad (IV.1)$$

en prenant un débit Q de 10 mL/min, une largeur de filet w de 1 mm, la viscosité cinématique de la solution $\nu=1 \text{ mm}^2/\text{s}$ et la section S de l'écoulement de l'ordre de 1mm^2 . Cela correspond à une vitesse $U=Q/S$ d'écoulement dans le ruisseau de l'ordre de la dizaine de centimètres par seconde.

$$U \sim 10 \text{ cm / s}$$

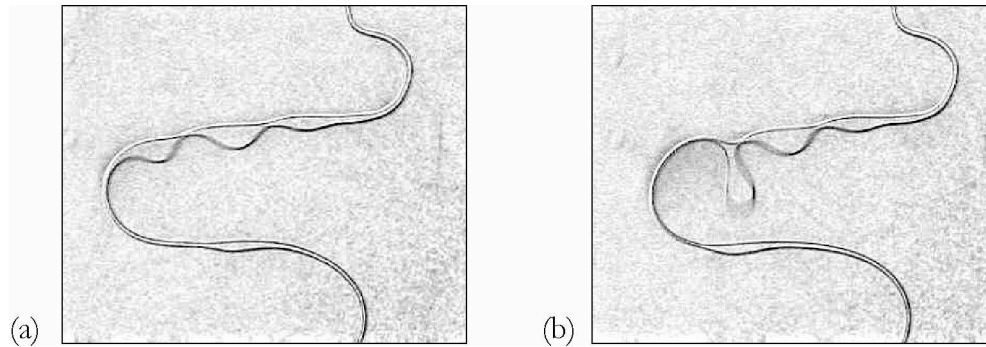


Figure IV-9 : Agrandissements de l'instabilité variqueuse avec une solution de Triton X-100 lors du régime remontant de méandres, à deux instants différents. (a) Le méandre n'a plus une épaisseur constante. (b) Le filet finit par se rompre en formant une goutte.

Par rapport au Fairy, le Triton présentait l'avantage d'être un surfactant pur. Les résultats sont assez proches de ceux obtenus pour le Fairy : déstabilisation du filet droit en méandres au-delà d'un débit seuil, existence de méandres remontants et descendants, régime chaotique. Cependant, les méandres de Triton X-100 sont moins réguliers que ceux obtenus avec le « Fairy liquid ». De plus, ils ne sont pas très stables dans le temps et finissent par perdre de la régularité. Les ruisselets générés par les solutions de Triton ne sont malheureusement pas assez réguliers, dans le temps et dans l'espace, pour nous permettre une étude vraiment quantitative avec ce surfactant pur. On peut penser que le Fairy bénéficie probablement d'une stabilisation particulière due à un effet combiné de ses différentes composantes (mélange de plusieurs surfactants, solvant organique, etc...) qui rend ses méandres si réguliers.

IV.5 Influence du type d'interface : mobile ou rigide. Le SDS

Nous avons voulu voir quelle pouvait être l'influence de la rigidité ou mobilité de l'interface (cf. paragraphe I.2.3) sur le méandrage en mouillage total. Le Fairy et le Triton X-100 étant des surfactants créant des interfaces rigides, nous avons choisi de manipuler maintenant avec du SDS, connu pour former des interfaces mobiles. ANAND & BEJAN (1986) ont déjà vu des méandres de SDS en cellule de Hele-Shaw. Ils s'étaient principalement concentrés sur la distance du premier virage des méandres à l'injection, et pas sur l'origine des méandres ni sur ce

qui peut être vu à plus grands débits. Nous avons effectué nos expériences avec un espace interplaque de 1,9 mm, comme pour le Fairy.

IV.5.1 Description du surfactant

Le SDS (Dodécyle de Sulfate et de Sodium) est un surfactant anionique, acheté chez PROLABO sous forme de poudre blanche. En solution, sa formule chimique est $(\text{CH}_3(\text{CH}_2)_{11}\text{SO}_4^-, \text{Na}^+)$:

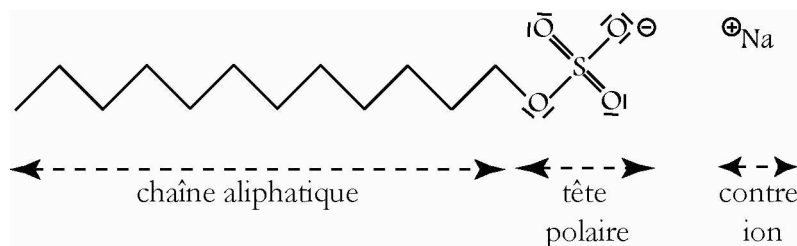


Figure IV-10 : Formule topologique du Dodécyle de Sulfate et de Sodium (SDS)

Il comporte une chaîne hydrophobe composée de douze atomes de carbone et d'une tête polaire hydrophile. Le SDS a tendance à s'hydrolyser rapidement, ce qui nécessite de travailler avec des solutions fraîchement préparées. Ses principales caractéristiques sont regroupées dans le Tableau IV-4. Contrairement au Fairy ou au Triton X-100, le SDS est connu pour former des interfaces mobiles, ce qui fait que l'écoulement au sein des bords de Plateau devrait être de type bouchon [STONE *et al* 2003].

PROPRIÉTÉ	RÉSULTAT
Aspect	Poudre blanche
Masse volumique à 20°C	0,4 kg/L
Masse molaire	288,38 g/mol
Nombre moyen de monomères par micelle	60
Solubilité dans l'eau à 20°C	100 g/L
CMC	8 mmol/L, soit 2,3 g/L ou 0,24% en poids
Type d'interface créée	Mobile

Tableau IV-4 : Ensemble des principales caractéristiques physicochimiques du SDS.

Données extraites des fiches de données de sécurité de PROMEGA, et de SHEN *et al* (2002).

Le SDS est un surfactant largement utilisé dans des produits de la vie courante et notamment dans la plupart des shampooings (nom synonyme du SDS souvent indiqué : sodium lauryl sulfate). Il s'agit également d'un additif autorisé dans l'alimentation en tant qu'émulsifiant, gélifiant, stabilisant et épaississant.

IV.5.2 Régimes obtenus avec du SDS pour la concentration $c=CMC$

Nous pouvons distinguer trois régimes d'écoulement en fonction du débit. Pour des débits inférieurs à 10 mL/min, le filet est rectiligne. De 10 mL/min à 15,5 mL/min, les ruisselets forment des méandres descendants, généralement moins réguliers que ceux observés avec le « Fairy liquid ». En fait, les méandres réguliers ont tendance à se déstabiliser dans le temps et à entraîner la déformation du méandrage en un régime chaotique. Au-delà de 15,5 mL/min, l'écoulement est désordonné avec formation de mousse. La mousse est formée en quantité bien moins importante que pour le produit à vaisselle Fairy et sa durée de vie est beaucoup plus courte, ce qui la rend bien moins gênante.

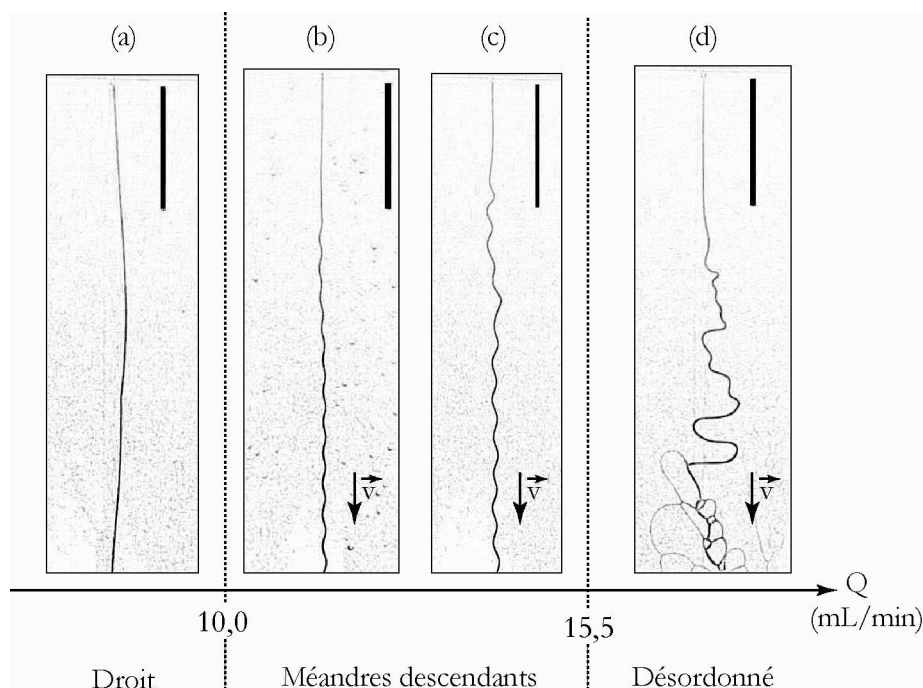


Figure IV-11 : Régimes obtenus avec le SDS à la CMC. L'écoulement se fait du haut vers le bas. Les barres noires dans le coin supérieur droit représentent 10 cm. (a) Régime droit $Q=7,0$ mL/min. Méandres descendants (b) $Q=10,0$ mL/min et (c) $Q=12,0$ mL/min. (d) Régime désordonné avec production de mousse $Q=18,0$ mL/min.

Il est intéressant de remarquer que le SDS ne permet pas de voir de méandres remontants, contrairement à ce qui a pu être vu avec le Triton X-100 ou bien avec le Fairy. L'origine de la remontée du motif pourrait-elle se trouver dans la différence de rigidité d'interface ?

IV.5.3 L'effet Marangoni à l'origine des méandres remontants ?

Pour des surfactants créant des interfaces rigides, l'écoulement de liquide à l'intérieur des bords de Plateau arrache des surfactants de l'amont pour les emmener vers l'aval. Si les

temps de diffusion et d'absorption nécessaires aux surfactants présents dans le volume pour retapisser la surface sont grands, alors le déficit de surfactant en amont provoquera l'apparition d'un gradient de tension superficielle (tension superficielle plus forte en amont qu'en aval) [KOEHLER *et al* 2000]. Ces gradients de tension superficielle peuvent induire des mouvements dans les fluides (effet Marangoni), étant donné qu'une modification locale de la tension superficielle déséquilibre les forces de tension superficielle. Un écoulement se produit alors des régions de faible tension superficielle vers celles de forte tension superficielles, soit ici vers l'amont, et va ainsi réduire la vitesse de la surface. Si ces gradients sont suffisamment forts, on pourrait même espérer voir une remontée du liquide¹². Si l'instabilité de méandrage est convective, il se pourrait que cet effet soit lié à l'observation d'une vitesse de phase négative, c'est-à-dire aux méandres remontants que l'on observe avec du Triton X-100 ou du « Fairy liquid » (rigides), mais pas avec du SDS (mobile).

IV.6 Influence de la concentration en surfactant sur les méandres

Maintenant que nous venons de voir le comportement général des filets de solutions de SDS, pour une concentration donnée ($c=CMC$), voyons l'effet de la concentration en surfactants sur les régimes d'écoulement.

IV.6.1 Les différentes concentrations étudiées

Nous avons essayé les concentrations suivantes : $CMC/50$, $CMC/5$, $CMC/2$, CMC , $2*CMC$ et $4*CMC$, préparées par pesée du SDS et ajout d'eau distillée dans une fiole jaugée pour les solutions au-delà de la CMC, puis par dilution de celles-ci pour les autres. Les variations de tension superficielle γ et de viscosité dynamique η sont regroupées dans la Figure IV-12. La tension de surface a été mesurée par la méthode d'arrachement d'un anneau (cf. Annexe A), et la viscosité à l'aide d'un viscosimètre à capillaire (voir Annexe B).

Avant la concentration micellaire critique, la tension superficielle chute au fur et à mesure que l'on augmente la concentration en surfactants. En effet, la partie hydrophobe du SDS vient se placer en contact avec l'air et sa tête hydrophile avec l'eau, minimisant ainsi la tension de surface. Une fois l'interface totalement recouverte de molécules de SDS, c'est-à-dire au-delà de la CMC, la tension de surface ne varie plus avec la concentration en surfactant, elle se stabilise à une valeur seuil. Quant à la viscosité, elle varie très peu d'une solution à l'autre. Tant que la concentration reste inférieure à la CMC, la viscosité est constante et quasiment égale à celle de l'eau (cf. Figure IV-12b) puisque les surfactants ne sont alors qu'en surface et que nous

¹² On peut voir une manifestation de l'effet Marangoni dans les larmes de vin. Lorsqu'on agite un verre de vin pour mouiller les bords du verre, un film liquide se forme, dans lequel l'évaporation de l'alcool est plus importante que dans le verre. La tension superficielle augmente alors dans le film et il s'ensuit un écoulement vers le haut du verre. Un bourrelet se forme à la limite entre le verre mouillé et non mouillé. L'évaporation dans le bourrelet finit par se faire moins importante et les gradients de tension superficielle n'arrivent plus à contrer la gravité. Le vin retombe alors en gouttes ou larmes de vin.

mesurons une viscosité en volume. Au-delà de la concentration micellaire critique, elle augmente légèrement avec la concentration en surfactant. À 50 fois la CMC, la viscosité du SDS n'est que de 3,2 cP [SHEN *et al* 2002]. Nous pouvons donc considérer que la viscosité est constante sur la gamme de concentration essayée ($1,0 \text{ cP} < \eta < 1,2 \text{ cP}$). Seule la variation de quantité de surfactant (et donc de tension superficielle qui s'ensuit) sera prise en compte.

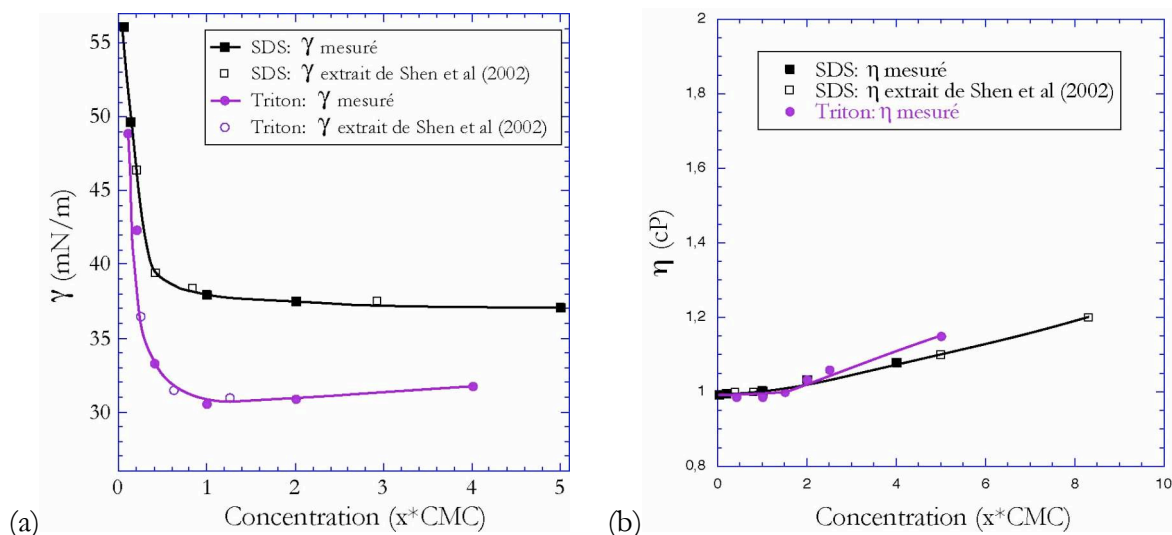


Figure IV-12 : Variations de (a) la tension superficielle et de (b) la viscosité avec la concentration, pour des solutions de SDS et de Triton X-100.

IV.6.2 Régimes d'écoulement pour les différentes concentrations

À la concentration $\text{CMC}/50$, le mouillage des deux plaques n'est pas obtenu. La concentration en surfactant est tellement faible que le film reliant les deux parois n'est pas stable. On se rend facilement compte qu'une seule plaque est mouillée car le ruisseau ne réfracte pas la lumière de la même manière : il apparaît beaucoup plus clair lorsqu'il ne touche qu'une plaque de la cellule que lorsqu'il touche les deux (voir Figure IV-13). De plus, la faible quantité de tensioactif nous replonge en mouillage partiel, les méandres obtenus sont alors du type de ceux du chapitre précédent, c'est-à-dire qu'ils sont stationnaires.

À partir de $c = \text{CMC}/5$, la quantité de tensioactif est suffisante pour réussir à stabiliser le pont liquide entre les deux plaques. Pour toutes les concentrations que nous avons essayées, nous avons constaté qu'il y a toujours trois régimes, dépendants du débit : filet droit, méandres descendants et écoulement désordonné. Le seuil de méandrage ne subit pas de modification notable lors du changement de concentration en SDS et reste autour de 10 mL/min. Par contre, l'amplitude des méandres varie de façon importante avec la concentration en surfactants. Elle augmente d'abord pour les plus faibles concentrations, jusqu'à la concentration micellaire critique, puis diminue fortement au-delà de la CMC (cf. Figure IV-14).

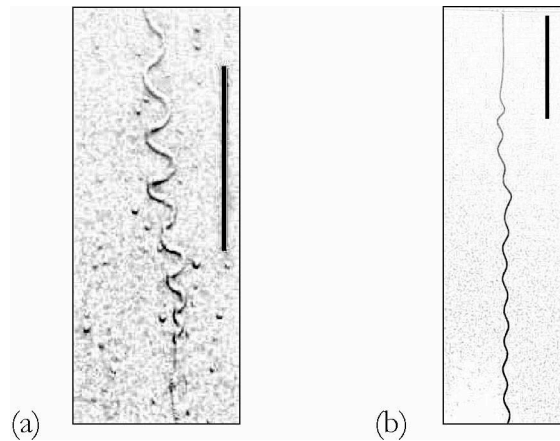


Figure IV-13 : Méandres de solutions de SDS. L'écoulement se fait du haut vers le bas. Les barres noires font 10 cm de long. (a) Méandres pour $c=CMC/50$: seule une des plaques est mouillée. On retrouve les méandres stationnaires du chapitre précédent. (b) Méandre pour $c=CMC$, les deux plaques sont mouillées et le méandre ne réfracte pas la lumière de la même façon. Le méandre est mobile.

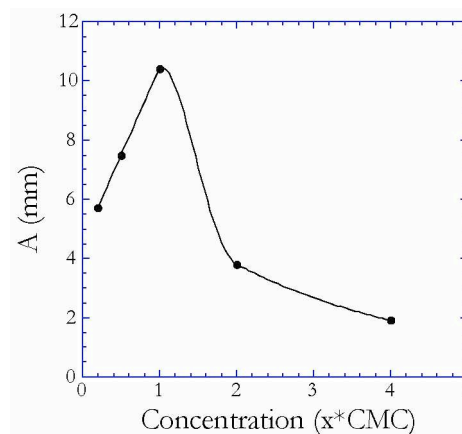


Figure IV-14 : Variation de l'amplitude moyenne A des méandres en fonction de la concentration en SDS. Débit $Q=12$ mL/min.

Cette variation d'amplitude avec la concentration en SDS reste encore à comprendre. De plus, celle-ci n'est pas visible avec des solutions de Triton-X100, même pour des concentrations allant jusqu'à $20 \cdot CMC$. Il est possible que la cinétique des micelles (désintégration et adsorption des monomères libérés à l'interface) joue un rôle important dans cette différence de comportement. En effet, pour les surfactants ioniques (comme le SDS), la stabilité des micelles dépend fortement de la concentration en surfactant car elle est fortement influencée par les interactions coulombiennes [SHEN *et al* (2002)]. Pour le SDS, le temps de relaxation τ_2 de désintégration des micelles est de l'ordre de quelques millisecondes aux concentrations où nous nous sommes placés [PATIST *et al* (2001)], et augmente avec la concentration ($\tau_2=12$ ms pour $c=6 \cdot CMC$). Pour le Triton-X100 (non-ionique), le temps de désintégration des micelles est déjà de 3,5 s à seulement $2 \cdot CMC$. Des considérations sur la cinétique de désintégration des micelles pourraient bien être une piste pour expliquer les différences de variation d'amplitude avec la

concentration en surfactant obtenues entre le SDS et le Triton-X100. Pour pouvoir développer davantage ce point, il faudrait effectuer davantage d'expériences avec des surfactants différents.

IV.7 Sur la nécessité des gradients de tension superficielle : méandres d'huile silicone

Jusque-là, nous avons obtenu le mouillage total des parois de la cellule de Hele-Shaw en ajoutant des surfactants à l'eau injectée. Mais les surfactants sont-ils nécessaires au méandrage (à travers la présence de micelles, de gradients de tension superficielle, ...) ou peut-on aussi obtenir des méandres avec des liquides purs ? Les surfactants sont-ils à l'origine des méandres ou est-il possible d'obtenir ces mêmes motifs sans gradients de tension superficielle (toujours en mouillage total) ?

IV.7.1 Choix d'un liquide pur et totalement mouillant pour le verre : l'huile silicone 47V2

Nous avons décidé de ne plus travailler avec des solutions de surfactants mais avec un liquide pur, totalement mouillant : les huiles silicone (PDMS, voir description détaillée des huiles silicones dans la section II.2.3). Afin de ne pas modifier un trop grand nombre de paramètres à la fois, nous avons tenté de maintenir la viscosité avec laquelle nous travaillions jusque-là, c'est-à-dire environ 1 cP. Nous avons donc utilisé l'huile la moins visqueuse, la 47V2, de viscosité 2 cP :

$$\nu = 2 \text{ mm}^2 / \text{s}, \quad \gamma = 19,2 \text{ mN.m}^{-1} \quad \text{et} \quad \rho = 890 \text{ kg.m}^{-3} \quad (\text{IV.2})$$

L'utilisation d'une telle huile demande de travailler dans une pièce bien aérée car à cette viscosité l'huile silicone est légèrement volatile, contrairement aux huiles de viscosité supérieure à 10 cP utilisées au Chapitre II.

Afin que l'huile mouille les deux plaques, nous avons pris un écart interplaque de 0,95 mm pour la cellule de Hele-Shaw, comme il avait été fait pour le surfactant Triton X-100. Cet écart s'est montré suffisamment faible pour donner un bon mouillage des deux plaques.

IV.7.2 Méandres sans gradient de tension superficielle

Pour des débits jusqu'à 6,5 mL/min, le filet d'huile silicone est droit, et même extrêmement rectiligne : l'huile mouille particulièrement bien les plaques et il n'y a aucun accrochage du filet sur les éventuels défauts du substrat. Comme illustré sur la Figure IV-17, au-delà de 6,5 mL/min, le ruisseau forme des méandres réguliers (contrairement à ce qui est observé dans DRENCKHAN *et al* 2004). Le filet méandre alors qu'il n'y a aucun gradient de tension superficielle puisque nous utilisons un liquide pur, sans mélange avec d'autres substances. L'instabilité a donc une origine purement hydrodynamique et non physicochimique. Il est probable que ce soit le mouillage total induit par les surfactants, plutôt que la présence de micelles ou de gra-

dients de tension de surface, qui fait que les filets de surfactants peuvent méandrer. Une simple augmentation de débit de n'importe quel liquide totalement mouillant suffirait probablement à le faire méandrer.

IV.7.3 Seuil de méandrage

Essayons de décrire le seuil de méandrage de la même manière que nous l'avions fait pour les méandres stationnaires du chapitre précédent, c'est-à-dire en équilibrant les forces agissant sur le filet. Comme ici nous n'avons plus d'hystérésis de mouillage, il ne reste qu'un équilibre entre les forces d'inertie et la capillarité. Cet équilibre donne alors la relation suivante :

$$\rho S \frac{\langle v^2 \rangle}{R} = 2\gamma \frac{d}{R} \quad (\text{IV.3})$$

où ρ désigne la masse volumique du liquide, S la section du ruisseau (qui sera assimilée au produit wd où w désigne la largeur du ruisseau et d la distance interplaque, comme schématisé sur la Figure IV-15a), $\langle v^2 \rangle$ est la vitesse moyenne dans le filet, γ la tension superficielle et R le rayon de courbure des méandres. Cet équilibre avait été proposé par DRENCKHAN, pour les méandres de surfactants « Fairy liquid », dans le but d'expliquer la vitesse de phase des méandres [DRENCKHAN *et al* (2004)]. La vitesse $\langle v^2 \rangle$ était alors remplacée par le carré de la différence entre la vitesse de l'écoulement et la vitesse de phase des méandres.

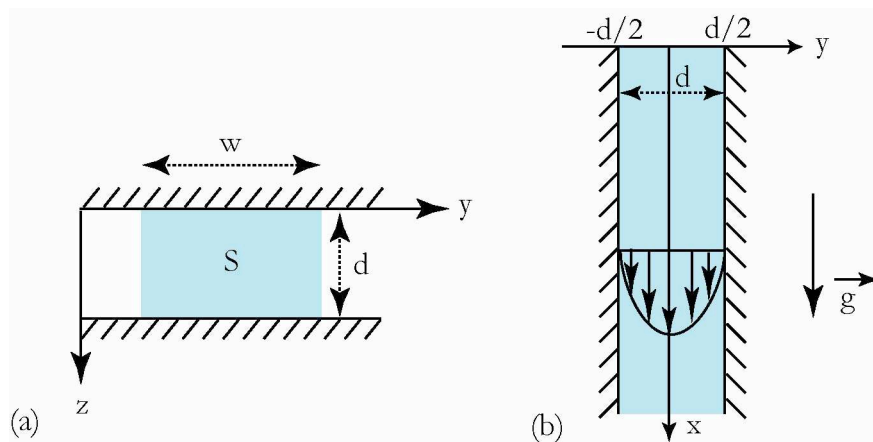


Figure IV-15 : (a) Section supposée du filet d'huile silicone : largeur w et hauteur d imposée par la distance interplaque. (b) Ecoulement de Poiseuille entre les deux parois de la cellule de Hele-Shaw, écartées d'une distance d .

On peut remarquer que les rayons de courbures s'éliminent dans l'expression (IV.3), ce qui permet, en utilisant également la conservation du débit ($Q=Sv$), de réécrire l'équation d'équilibre sous une forme simplifiée :

$$\rho \frac{Q^2}{S} = 2\gamma d \quad (\text{IV.4})$$

Supposons que l'écoulement dans le filet est un écoulement de Poiseuille selon l'axe x (cf. Figure IV-15b). La vitesse est alors uniquement orientée selon l'axe x et ne dépend que de y :

$$v = v_x(y) = \frac{g}{2\nu} \left(\frac{d^2}{4} - y^2 \right) \Rightarrow \langle v \rangle = \frac{gd^2}{12\nu} \quad (\text{IV.5})$$

On en déduit une expression du débit en fonction de la largeur w du filet :

$$Q = \frac{gd^3w}{12\nu} \quad (\text{IV.6})$$

En remplaçant dans l'équation du seuil (IV.4) les expressions de la section $S=wd$, de la largeur w en fonction du débit Q , et en considérant (comme nous l'avons déjà vu à la section III.7.1.2), que la vitesse quadratique et la vitesse moyenne sont reliées par la relation :

$$\langle v^2 \rangle = \frac{6}{5} \langle v \rangle^2 \quad (\text{IV.7})$$

on obtient l'expression suivante pour le seuil :

$$Q_c = \frac{144}{5} \frac{\gamma \nu}{\rho g d} \quad (\text{IV.8})$$

En faisant l'application numérique avec la distance interplaque d qui vaut 0,95 mm et en reportant les valeurs de γ , ν , et ρ données à l'équation (IV.2), nous trouvons un seuil prévu pour 8,0 mL/min. Ce modèle du seuil donné par l'équilibre entre l'inertie et la capillarité donne donc une valeur proche des 6,5 mL/min trouvés expérimentalement.

Par ailleurs, plutôt que la vitesse moyenne $\langle v \rangle$, c'est en fait la différence entre la vitesse moyenne et la vitesse de phase des méandres qui compte dans la force d'inertie [DRENCKHAN *et al* (2004) et DE LANGRES (2001)] :

$$\langle v \rangle - v_{\text{phase}}$$

En effet, si l'ensemble d'un liquide qui zigzague descend à la même vitesse que l'écoulement qui se fait à l'intérieur, alors il n'y a plus de force centrifuge¹³. Le seuil que nous avons calculé à l'équation (IV.8) est donc légèrement surestimé puisque nous avons négligé la vitesse de phase des méandres. La mesure de cette vitesse de phase au seuil de méandrage donne $v_{\text{phase}}=2,5$ cm/s (voir Figure IV-19) et est à comparer à la vitesse moyenne $\langle v \rangle$ donné par l'équation (IV.5), qui vaut 37 cm/s. La prise en compte de la vitesse de phase introduit donc un abaissement de 7%, ce qui ramènerait la prédiction du seuil de méandrage à 7,5 mL/min, proche des 6,5 mL/min expérimentaux.

¹³ Cela peut d'ailleurs expliquer pourquoi un filet d'eau en chute libre ne méandre pas.

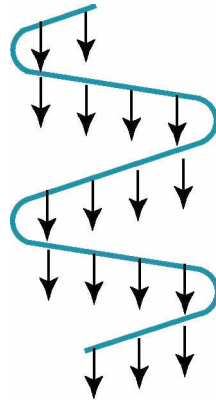


Figure IV-16 : Filet liquide chutant dans sont ensemble de sorte que la vitesse de phase est égale à la vitesse de l'écoulement. Il n'y a pas de force centrifuge dans ce cas.

La valeur donnée par le modèle est donc tout à fait satisfaisante compte tenu de l'approximation effectuée sur la section du filet, prise comme un rectangle de côtés w et d . Des mesures de la vitesse de l'écoulement par suivi du front d'une goutte de colorant, ou encore par PIV (Particle Image Velocimetry) pourraient permettre de vérifier si l'hypothèse d'un écoulement de Poiseuille est correcte ou si elle devrait être corrigée. Enfin, comme pour les méandres stationnaires sur une plaque, le facteur $6/5$ entre la vitesse quadratique moyenne et la vitesse moyenne de l'écoulement n'est probablement qu'approximatif. Comme nous n'avons qu'un facteur 1,2 entre le seuil prédit par le modèle et le seuil expérimental, nous pouvons considérer que le seuil est très bien prédit. Le seuil est en fait même mieux prédit que pour les méandres sur une seule plaque, où l'hystérésis doit être prise en compte et où l'on obtenait un facteur 5 entre modèle et mesures du seuil si l'hystérésis était négligée (voir Annexe D).

IV.7.4 Description des méandres d'huile silicone 47V2 ~ Comparaison avec les méandres de surfactants

Sur la Figure IV-17, on peut voir des illustrations de méandres obtenus avec de l'huile silicone. Nous n'avons obtenu que deux régimes : un régime droit ($Q < 6,5$ mL/min) et un régime de méandres descendants ($6,5$ mL/min $< Q < 30$ mL/min). L'huile ne donne que des méandres descendants, contrairement à ce que nous avons vu avec les surfactants rigides (Fairy et Triton-X100). Le nombre de Reynolds typique pour les méandres d'huile silicone, basé sur la largeur des ruisselets, est du même ordre de grandeur que pour les surfactants :

$$Re = \frac{w}{v} \frac{Q}{S} = \frac{Q}{vd} \sim 100 \quad (\text{IV.9})$$

en prenant le débit Q de l'ordre de 10 mL/min, l'écartement entre les plaques $d=0,95$ mm et la viscosité cinématique $\nu=2$ mm²/s.

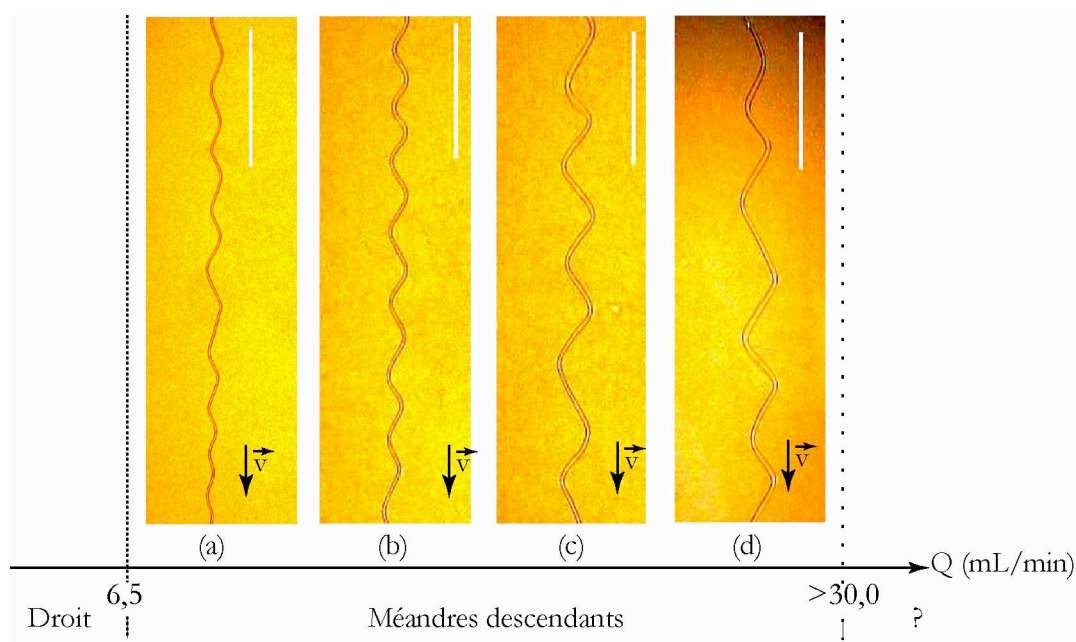


Figure IV-17 : Méandres descendants d'huile silicone 47V2. L'écoulement se fait de haut en bas. La barre blanche en haut à droite représente 5 cm. (a) $Q=7,5$ mL/min. (b) $Q=13,0$ mL/min. (c) $Q=20,0$ mL/min. (d) $Q=25,0$ mL/min.

L'huile silicone présente le très grand avantage que les méandres apparaissent sur une grande plage de débit, contrairement aux méandres de surfactants. Nous n'avons pas trouvé de limite marquant la fin du régime de méandrage avec notre système d'injection ; les méandres sont donc visibles au moins de 6,5 à 30 mL/min. Rappelons que la gamme de méandres descendants de Fairy n'allait que de 11,5 à 13,0 mL/min. Compte tenu de la grande gamme de débit sur laquelle nous avons des méandres, les huiles silicone permettent de mener une étude sur leur évolution en fonction du débit. Une exploration des régimes à débit supérieurs à 30 mL/min est prévue dans le futur, en changeant le dispositif d'injection.

IV.7.4.1 Amplitude moyenne A et longueur d'onde moyenne λ

Détaillons la morphologie des méandres d'huile. L'évolution de l'amplitude et de la longueur d'onde moyennes des méandres d'huile silicone 47V2 en fonction du débit, est reportée sur la Figure IV-18. La longueur d'onde est du même ordre de grandeur que celle des méandres descendants de Fairy, mais par contre, l'amplitude est beaucoup plus petite (inférieure à 10 mm contre 20 à 60 mm pour le Fairy). Les méandres d'huile paraissent alors plus anguleux. Leur morphologie est en fait plus proche des méandres remontants du produit à vaisselle que de ses méandres descendants.

On constate surtout que l'amplitude et la longueur d'onde sont ici des fonctions croissantes du débit alors que ce n'était pas le cas pour les méandres descendants de surfactants, où A et λ décroissaient avec le débit (cf. Figure IV-3c) ! Cette différence d'évolution reste encore inexpliquée. Par contre, l'amplitude et la longueur d'onde pour les solutions de surfactants croissaient avec le débit pour les méandres remontants. Nous avons déjà suggéré que les

méandres d'huiles silicones, bien qu'ils soient descendants, étaient morphologiquement plus proches des méandres remontants de surfactants que des méandres descendants, vu les ordres de grandeur de A et λ . En dehors du fait qu'ils ne se déplacent pas dans le même sens, les méandres remontants de surfactants et les méandres d'huile sont donc très proches.

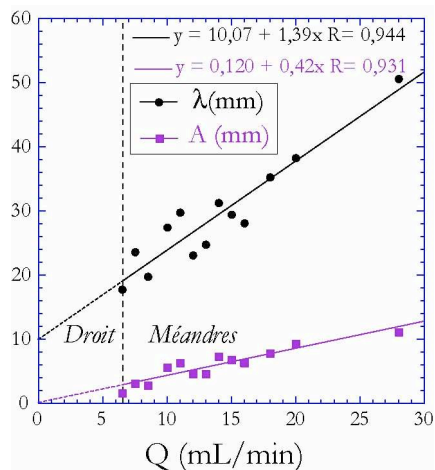


Figure IV-18 : Variation de la longueur d'onde et de l'amplitude des méandres d'huile silicone 47V2 avec le débit.

IV.7.4.2 Vitesse de phase

Les méandres d'huile silicone ont une vitesse de phase bien supérieure à tout ce que l'on avait pu voir avec les surfactants, même dès les plus faibles débits. Celle-ci est de l'ordre de la dizaine de cm/s pour l'huile silicone alors que les méandres de surfactants n'ont une vitesse de phase que de l'ordre du cm/s (voir Figure IV-19 et Figure IV-3c). Cette différence dans la vitesse de phase provient peut-être des films de mouillage, distincts pour les surfactants et l'huile silicone. Une visualisation et comparaison des films de mouillage générés par les diverses solutions essayées pourrait le confirmer.

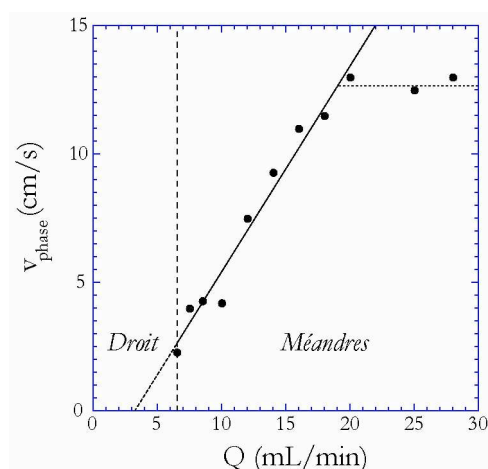


Figure IV-19 : Vitesse de phase en fonction du débit pour l'huile silicone 47V2.

Par ailleurs, on constate que la vitesse de phase croît linéairement avec le débit jusqu'à près de 20 mL/min et qu'elle semble saturer à débit supérieur. Pour s'en assurer, il faudrait changer le système d'injection pour voir ce qui se passe à plus grand débit.

IV.7.4.3 Structure des ruisselets d'huile

Nous avons déjà pu constater des différences morphologiques entre les méandres d'huile silicone et ceux de solutions de surfactants, en plus du fait que la plage de débit couverte par les méandres est bien plus grande. Mais il reste encore une différence notable avec les méandres de surfactants : la structure des filets n'est pas la même.

Avec les surfactants, un pont sous la forme d'un film reliait deux bords de Plateau. L'éclairage par-derrière la cellule se réfractait sur les bords de Plateau et rendait le filet totalement sombre. Pour les huiles silicones, seule une toute petite partie extérieure du filet est sombre et tout le cœur reste clair (voir Figure IV-20). Cela provient du fait que les huiles silicone ne forment pas de film mince entre les deux plaques, mais que la jonction interplaques est plutôt un pont liquide épais, comme illustré sur la Figure IV-20. Il n'y a alors plus de bords de Plateau à proprement parler.

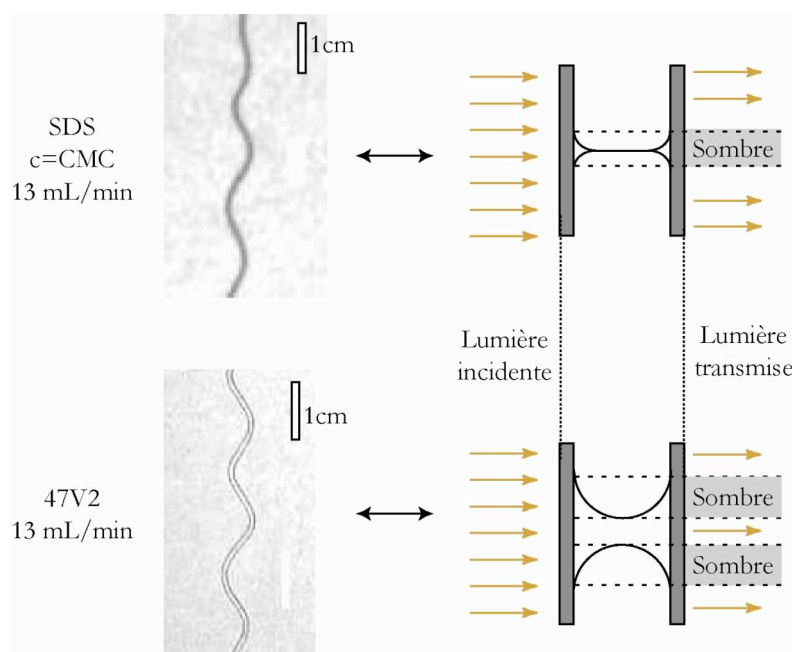


Figure IV-20 : Différence de forme du filet liquide pour les surfactants et l'huile silicone 47V2.

On constate de plus que la largeur des ruisselets d'huile silicone augmente avec le débit, mais que seul le cœur grandit, les bords conservant une largeur constante. La partie proche de l'interface ne change pas de forme pendant que le cœur s'agrandit pour permettre au fluide de l'écouler. Ainsi, la zone claire centrale voit sa largeur augmenter avec le débit alors que les zones sombres marquant les bords du ruisseau ne changent pas de largeur. Ce phénomène, bien plus marqué à plus haute viscosité, sera détaillé dans la section IV.8.2.

IV.8 Effet de la viscosité

Nous avons voulu explorer l'influence de la viscosité sur le méandrage. Pour cela nous avons continué à travailler avec les huiles silicones qu'on peut facilement trouver à de plus hautes viscosités, sans que cela ne change grandement leur tension superficielle qui reste aux alentours de 20 mN/m (cf. Tableau IV-5). Nous disposons d'huiles 47V10 et 47V200, de viscosités cinématiques respectives 10 mm²/s et 200 mm²/s. La viscosité est donc le seul paramètre qui est modifié de façon significative par le passage d'une huile silicone à l'autre.

HUILE	TENSION SUPERFICIELLE γ (MN/M)	MASSE VOLUMIQUE ρ (KG/M ³)	VISCOSITÉ CINÉMATIQUE ν (MM ² /S)
47V2	19,2	890	2
47V10	20,1	936	10
47V200	21,0	970	200

Tableau IV-5 : Comparatif des tensions superficielles, masses volumiques et viscosités des huiles silicone 47V2, 47V10 et 47V200.

IV.8.1 Effet sur le seuil de méandrage

Si l'on reprend notre modèle de seuil de méandrage, donné par l'équation (IV.8), provenant de l'équilibre entre les forces d'inertie et les forces capillaires, on constate que le débit seuil Q_c est proportionnel à la viscosité ν :

$$Q_c = \frac{144}{5} \frac{\gamma \nu}{\rho g d}$$

On s'attend alors à ce que les huiles V10 et V200 méandrent pour des débits respectivement 5 fois et 100 fois supérieurs à celui pour l'huile V2, soit à des débits de l'ordre de 40 mL/min et 800 mL/min respectivement.

Compte tenu du système d'injection par pousse-seringue dont nous disposons actuellement, nous ne pouvons aller au-delà de 30 mL/min. Comme prévu, seul le régime rectiligne a pu être observé pour les deux huiles visqueuses, ce qui conforte donc notre modèle du seuil de méandrage. Les filets n'ont donné aucun signe de début de méandrage dans la gamme de débit que nous avons ; aucune prémice de déviation n'a été vue. Même en perturbant les filets par déplacement latéral de l'injecteur, la perturbation créée est simplement advectée, sans déclencher de méandres, et les filets redeviennent rapidement droits.

La viscosité a donc bien pour effet de repousser le seuil de méandrage. Toutefois, il n'est pas dit que l'on obtienne nécessairement des méandres à plus haut débits pour ces viscosités. Il se pourrait en effet que la viscosité atténue fortement l'amplitude des méandres et qu'ils ne deviennent plus visibles, comme dans les cas des méandres sur une plaque (voir section III.9 et SCHMUKI & LASO (1990)). Il serait donc nécessaire de changer le dispositif d'injection pour

réussir à imposer des débits suffisants afin de voir si l'on obtient bien des méandres pour ces viscosités, à des débits plus élevés. Ces manipulations sont prévues dans un futur proche.

IV.8.2 Effet sur la largeur des filets

Bien que nous n'attentions pas de méandres avec les huiles V10 et V200 à des débits inférieurs à 30 mL/min, les expériences avec ces huiles ont tout de même permis d'obtenir des résultats plus approfondis concernant la structure du ruisselet en régime droit. En effet, nous avons constaté que la largeur du filet augmentait fortement avec le débit. (voir Figure IV-21a). L'augmentation de la largeur du filet se fait comme pour l'huile moins visqueuse 47V2 : le cœur s'élargit mais les bords, qui apparaissent plus sombres sur les images, restent de largeur quasi constante (cf. Figure IV-21b).

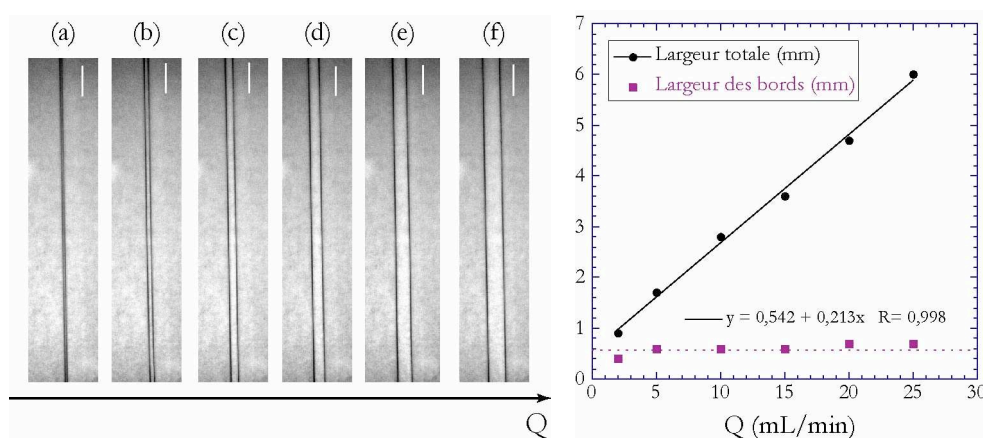


Figure IV-21 : Élargissement du filet d'huile 47V10 à l'augmentation du débit. La barre blanche dans le coin supérieur gauche a une longueur de 1 cm.
(a) $Q=1$ mL/min (b) $Q=5$ mL/min (c) $Q=10$ mL/min (d) $Q=15$ mL/min
(e) $Q=20$ mL/min (f) $Q=25$ mL/min.

Cette observation sur la constance de la largeur des bords est compatible avec la forme supposée que prend le ruisselet (voir Figure IV-20). La taille des bords doit être dictée par la capillarité, et donc ne pas varier quand on change le débit. Le cœur, lui, peut s'élargir pour absorber le flux plus important venant d'un débit plus fort. Si le mouillage est bien total, la forme des bords devrait être un demi-cercle de diamètre égal à l'espace interplaque, soit ici 0,95 mm. On s'attend donc à ce que les bords sombres aient une largeur d'environ 0,5 mm, ce qui est en accord avec les valeurs reportées sur la Figure IV-21b.

D'autre part, on constate que plus la viscosité est augmentée, plus l'évolution de la largeur du ruisselet avec le débit est spectaculaire. La largeur des ruisselets augmente très rapidement pour l'huile 47V200 et les bords des filets droits commencent à se déstabiliser pour des débits faibles de l'ordre de 5 mL/min (cf. Figure IV-22a). La déstabilisation n'est cependant pas sinueuse et ne laisse aucun espoir de réaliser des méandres à un tel débit et une telle viscosité. Des mesures de la largeur du filet pour les trois huiles silicone utilisées (47V2, 47V10 et 47V200) sont regroupées dans le graphique de la Figure IV-22b.

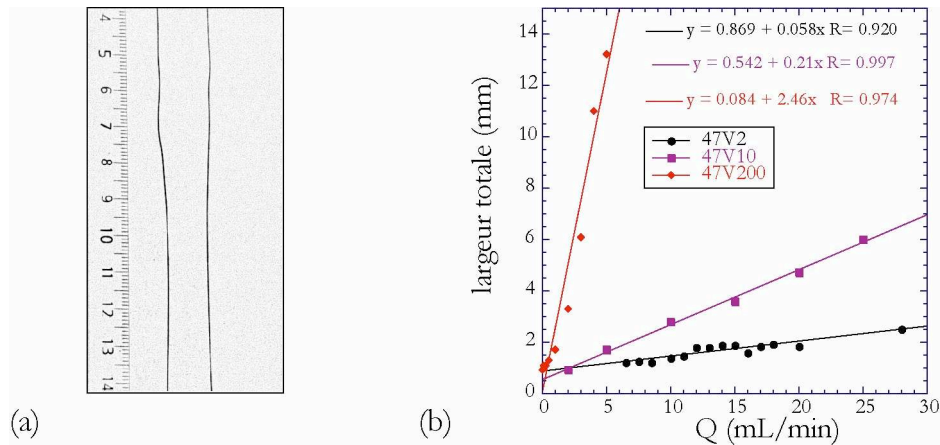


Figure IV-22 : (a) Déstabilisation d'un filet d'huile silicone 47V200 pour un débit $Q=5$ mL/min. (b) Évolution de la largeur du ruisseau en fonction du débit, pour les trois huiles silicone utilisées. Les données pour 47V2 correspondent au régime de méandres. Pour 47V10 et 47V200, le ruisseau est un filet droit.

Si l'on suppose un écoulement de Poiseuille dans ces filets d'huiles, approximés par une section rectangulaire, alors la largeur des filets peut être reliée au débit par la relation (IV.6) :

$$Q = \frac{g d^3 w}{12 \nu} \Rightarrow w = 12 \frac{\nu}{g d^3} Q \quad (\text{IV.10})$$

La forme des courbes obtenues sur la Figure IV-22b est compatible avec cette augmentation linéaire de la largeur w des filets avec le débit Q , prévue par la modélisation, mais aussi avec l'augmentation de la pente des courbes $w(Q)$ avec la viscosité. Pour être plus quantitatifs, comparons les pentes expérimentales à celles prévues. Le Tableau IV-6 compare les valeurs réelles avec la quantité $12\nu/gd^3$, pour $d=0,95$ mm. Les pentes données par le modèle correspondent bien aux pentes expérimentales pour les deux huiles les moins visqueuses (2 et 10 cP), ce qui nous conforte dans la validité de la modélisation de l'écoulement par un Poiseuille. Il faut tout de même noter que le modèle prévoit une loi affine, avec ordonnée à l'origine nulle, alors que nous trouvons un petit décalage au niveau de l'origine pour nos deux courbes 2 et 10 cP. Par ailleurs, l'augmentation de la largeur des filets d'huile de viscosité 200 cP est deux fois plus lente que ce qui est prévu par le modèle. Ce point, encore inexpliqué, reste à éclaircir.

HUILE	PENTE EXPÉRIMENTALE (mm/(cm ³ .s ⁻¹))	PENTE DONNÉE PAR LE MODÈLE $12\nu/gd^3$ (mm/(cm ³ .s ⁻¹))
47V2	0,058	0,048
47V10	0,21	0,24
47V200	2,46	4,76

Tableau IV-6 : Comparaison entre expérience et modélisation pour les pentes des courbes donnant la largeur w des filets en fonction du débit Q .

IV.9 Conclusions et perspectives

L'étude menée dans ce chapitre a montré qu'il était bien possible d'obtenir des méandres en l'absence d'hystérésis, mais que par contre, ces méandres ne sont pas stationnaires. C'est donc bien l'hystérésis de mouillage qui impose la stationnarité du motif dans les cas des méandres étudiés au Chapitre III. Les méandres sans hystérésis ont été réalisés en mouillage total, en contraignant le liquide à former un filet en l'injectant dans une cellule de Hele-Shaw. Selon le liquide utilisé pour obtenir le mouillage total des plaques de verre formant la cellule (divers surfactants, huiles silicones), les régimes de méandres ont montré des comportements différents.

IV.9.1 Discussion sur les surfactants purs

Le « Fairy liquid », utilisé par nos prédécesseurs [DRENCKHAN *et al* (2004)], est un mélange non connu de nombreuses substances (surfactants, solvants, polymères, ...) et s'est avéré présenter une dynamique complexe et en fait trop riche pour une première étude des méandres de solutions de surfactants. Cela nous a donc naturellement conduit plutôt vers l'utilisation de surfactants purs (et non de mélanges de surfactants). Les méandres obtenus alors n'ayant pas la régularité de ceux vus avec le Fairy, il a été difficile d'en tirer des conclusions vraiment quantitatives, mais nous avons tout de même pu obtenir quelques résultats qualitatifs sur ces phénomènes intrigants.

Tout d'abord, les méandres dépendent de la nature de l'interface créée par le tensioactif. Les méandres remontants n'ont pu être vus qu'avec des surfactants supposés créer des interfaces rigides (Triton X-100 et Fairy). Nous avons attribué ce phénomène à un arrachement des tensioactifs donnant des interfaces rigides, par cisaillement sur la surface lors de l'écoulement. Il apparaît alors des gradients de tension superficielle, orientés vers le haut de la cellule, qui induisent un écoulement vers le haut. Cet effet Marangoni pourrait être relié à une vitesse de phase orientée elle aussi vers le haut de la cellule. Il faut noter cependant que le caractère rigide ou mobile des interfaces a été testé lors d'expériences de drainage de mousses, et donc pour des vitesses bien plus faibles que celles obtenues dans nos expériences puisque le débit se partage dans toute la mousse (vitesse typique de drainage inférieure à 1 mm/s [KOEHLER *et al* 2002] contre environ 10 cm/s dans nos expériences). Il se pourrait que la mobilité des interfaces ne soit pas la même pour les écoulements les plus rapides que l'on a ici, pour lesquels la contrainte appliquée sur les interfaces est importante. Des débits plus importants, et donc un cisaillement plus important sur la surface, ont tendance à favoriser un écoulement de type bouchon [DURAND *et al* 1999]. Cependant, nous avons établi qu'une différence subsistait dans nos expériences entre les surfactants supposés rigides et mobiles, à travers l'existence ou non des méandres remontants. Il semble donc raisonnable de supposer qu'il subsiste bien une différence d'écoulement entre nos deux classes de surfactants.

Nous avons également pu observer la disparition des méandres lors de l'augmentation de la concentration en SDS, disparition non visible pour le Triton-X100. Il se pourrait que ce soit là le caractère ionique ou non-ionique du surfactant qui entre en jeu dans cette différence

de comportement, à travers une différence de stabilité des micelles. Nous n'avons pas clairement compris l'origine de la différence de comportement avec la concentration en surfactant, mais il semble que la cinétique de désintégration des micelles pourrait être une piste à creuser.

IV.9.2 L'apport des huiles silicones

Un pas important effectué durant ce travail de thèse porte sur la non nécessité des surfactants pour former des méandres en mouillage total. Les surfactants ne sont pas à l'origine de l'instabilité sinueuse de méandrage puisque nous avons réussi à observer des méandres d'huile silicone 2 cP dans notre cellule de Hele-Shaw. En deçà d'un débit seuil, les filets d'huile sont droits, et une fois le seuil franchi, nous obtenons des méandres descendants. À notre connaissance, les seuls méandres en mouillage total rapportés jusqu'ici étaient des méandres de surfactants (SDS pour ANAND & BEJAN (1986) ou « Fairy liquid » pour DRENCKHAN *et al* (2004)). Remarquons toutefois que les huiles n'ont pas permis de reproduire les méandres remontants observés avec des solutions de surfactants (rigides uniquement), ces derniers étant alors probablement à l'origine de cette remontée du motif.

Pour l'huile 47V2, le seuil de cette instabilité d'origine inertielle a pu être retrouvé grâce à un équilibre entre les forces d'inertie et la capillarité, et en supposant un écoulement de Poiseuille dans une section rectangulaire (dont un des côtés est imposé par la distance interplaque). L'étude de la largeur des filets en fonction du débit s'est montrée en accord avec l'hypothèse d'un écoulement de Poiseuille au sein de filets, du moins pour les huiles 47V2 et 47V10. Il est à noter par ailleurs que la section des filets d'huile est assez différente de celle des surfactants et s'observe très bien à travers la différence de réfraction de la lumière par ces deux filets.

Le modèle du seuil prévoyait également que le débit minimal à atteindre pour obtenir des méandres augmente avec la viscosité. Pour les débits que nous pouvions imposer ($Q < 30$ mL/min), le modèle anticipait nous ne pourrions voir que le régime droit pour les huiles 47V10 et 47V200 de viscosités respectives 5 fois et 100 fois plus élevées que la 47V2, ce que nous avons en effet constaté. Une tête de pompe, adaptée à la pompe à engrenages utilisée pour les méandres du Chapitre III, et également adaptée aux plus faibles débits nécessaires dans cette expérience, devrait permettre d'explorer ce qui se passe à des débits supérieurs à 30,0 mL/min. Les résultats seraient intéressants aussi bien pour l'huile silicone peu visqueuse 47V2 que pour les huiles légèrement plus visqueuses comme la 47V10.

Contrairement aux méandres de surfactants, les méandres d'huile silicone présentent l'avantage d'exister sur une très grande gamme de débit. En effet, nous n'avons pas réussi à trouver de seuil supérieur pour les méandres d'huile 47V2 avec notre système d'injection (limité pour l'instant à 30 mL/min). Nous avons ainsi pu tirer des conclusions plus sûres sur la morphologie de ces méandres, contrairement aux cas des méandres de solutions de surfactants purs, ou même de Fairy (dont les méandres descendants n'existaient que sur une plage de 1,5 mL/min de large).

L'amplitude et la longueur d'onde des méandres d'huile augmentent toutes les deux avec le débit, augmentation que nous ne voyons que pour le régime remontant des méandres de surfactants. Le rapport d'aspect des méandres d'huile (rapport entre l'amplitude et la longueur d'onde) est également plus proche de celui des méandres remontants que des méandres des-

cendants de surfactants. Cette similitude avec le motif remontant reste à expliquer. Toutefois, la similitude avec les surfactants s'arrête ici. En effet, les méandres d'huile silicone ont une vitesse de phase bien supérieure à celle des méandres de solutions de surfactants, même en régime descendant.

IV.9.2.1 Travail futur

Il subsiste encore une foule d'expériences à réaliser avec ces méandres d'huile silicone qui sont réellement beaucoup plus pratiques à étudier que ceux de surfactants. Le travail effectué dans ce chapitre fut un vaste débroussaillage des différentes possibilités physico-chimiques permettant la création de méandres en mouillage total. Maintenant que le chemin à suivre semble plus clair, une étude complète avec les huiles silicones permettrait de mieux comprendre ces méandres qui conservent encore bien des mystères. Le but serait déjà d'aboutir à une modélisation hydrodynamique complète des méandres descendants pour l'huile silicone, permettant de décrire la morphologie des méandres (amplitude, longueur d'onde et vitesse de phase), avant de pouvoir espérer se réattaquer à la dynamique des méandres de surfactants, rendue plus complexe par des effets physico-chimiques.

Une des premières choses à faire serait d'explorer les régimes à plus haut débit pour l'huile silicone peu visqueuse 47V2. Nous pourrions alors voir si l'on trouve une saturation ou non de la vitesse de phase, trouver sur quelle gamme de débit les méandres existent (y a-t-il un seuil supérieur de fin de méandrage ?), et voir si les méandres finissent par se déstabiliser (et comment ?). L'étude pourrait être complétée par l'injection de filets ayant une viscosité intermédiaire, par exemple avec l'huile 47V5 de viscosité proche de 5 cP, qui serait facilement comparable à l'huile 47V2.

Des mesures de vitesse de l'écoulement au sein des ruisselets par injection de colorant et suivi de la trace laissée, ou encore mieux, par utilisation de la technique de P.I.V. (Particle Image Velocimetry), permettraient d'avoir de façon sûre la vitesse au sein des filets, sans faire de conjecture sur la forme des ruisselets ou sur celle de l'écoulement. Nous pourrions alors comparer la vitesse à l'intérieur de l'écoulement à la vitesse de phase des méandres.

L'inclinaison de la cellule de Hele-Shaw permettrait de mener une étude sur l'influence de la gravité.

Il serait également intéressant de regarder l'influence de la largeur de l'injecteur en haut de la cellule. Nous avons utilisé un embout de pipette dans toutes nos expériences, mais un nouvel injecteur a été dessiné, se glissant impeccablement entre les deux plaques de la cellule et dont la largeur est réglable à souhait. Nous pourrions alors observer comment le seuil et la forme des méandres s'en trouveraient éventuellement modifiés.

Enfin, une visualisation des films de mouillage laissés par les surfactants ou par l'huile silicone, et la comparaison de leurs épaisseurs, pourrait également fournir des informations quant aux différences constatées entre les méandres en mouillage total formés par les différents liquides mouillant totalement les plaques de la cellule de Hele-Shaw.

Comme on peut le voir, le travail de recherche sur les méandres en mouillage total n'est pas achevé, mais leur origine a tout de même été un peu éclaircie. En particulier, nous savons maintenant que les surfactants ne sont pas nécessaires à l'obtention de méandres en mouillage

total, et que le seuil de méandrage semble bien décrit par un équilibre entre inertie et forces capillaires. Toutefois, les méandres parfaitement réguliers observés avec une solution commerciale de Fairy, pour une gamme précise et réduite de débits, n'ont pu être reproduits avec aucune solution simple. Le Fairy commercial garde donc encore le secret de ses méandres uniques.

IV.9.3 Retour vers le mouillage partiel ?

On pourrait se poser la question d'essayer des méandres en mouillage partiel avec de l'eau distillée dans la cellule de Hele-Shaw, de la même façon que nous faisons s'écouler de l'eau sur une seule plaque au Chapitre III. Il faut juste s'assurer que l'on prend un espace inter-plaque suffisamment faible pour que l'eau puisse mouiller les deux parois de la cellule à la fois. Un écart $d=1$ mm devrait être suffisant. Un des intérêts de faire cette manipulation est d'augmenter considérablement les forces d'accrochage. Elles se retrouvent doublées, vu que le liquide s'accrochera sur les deux plaques. On devrait donc pouvoir tester les effets de l'hystérésis sur le méandrage (qui devrait bien évidemment être à nouveau stationnaire) en rajoutant une deuxième plaque pour faire une cellule de Hele-Shaw. Pour une comparaison directe avec l'écoulement sur une seule plaque, il faudra tout de même prendre en compte le fait que la forme du filet est différente dans la cellule de Hele-Shaw.

Bibliographie du Chapitre IV

- ANAND A. & BEJAN A., 1986, Transition to meandering Rivulet flow in a vertical parallel-plate channels, Technical briefs, *J. Fluids Eng.*, **108**, p. 269-272
- DE LANGRE E., 2001, Fluides et solides, *Éd. de l'École Polytechnique*, 134 pages
- DRENCKHAN W., GATZ S. & WEAIRE D., 2004, Wave patterns of a rivulet of surfactant solution in a Hele-Shaw cell, *Phys. Fluids*, **16 (8)**, p. 3115-3121
- DURAND M., MARTINOTY G. & LANGEVIN D., 1999, Liquid flow through aqueous foams : from the Plateau border-dominated regime to the node-dominated regime, *Phys. Rev. E*, **60 (6)**, p. R6307-6308
- KOEHLER S.A., HILGENFELDT S. & STONE H.A., 2000, A generalized view of foam drainage : Experiment and theory, *Langmuir*, **16**, p. 6327-6341
- KOEHLER S.A., HILGENFELDT S., WEEKS E.R. & STONE H.A., 2002, Drainage of a single Plateau borders : Direct observation of rigid and mobile interfaces, Rapid communications, *Phys. Rev. E*, **66**, 040601(R), 4 pages
- MYSELS K., SHINODA K., FRANKEL S., 1959, Soap Films, Studies of their thinning, New York, Éd. Pergamon,
- PATIST A., OH S.G., LEUNG R., SHAH D.O., 2001, Kinetics of micellization : its significance to technological processes, *Colloids and Surfaces A : Physicochem. Eng. Aspects*, **176**, p.3-16
- PROCTER & GAMBLE, 2005, Material Safety Data Sheet, Fairy Liquid Original, [www.pgprof.com/uk/ki_ss_pdf/MSDS_Fairy_Liquid_Original_Hand_Dishwash_Detergent_\(750ml_1.5L_5L\).pdf](http://www.pgprof.com/uk/ki_ss_pdf/MSDS_Fairy_Liquid_Original_Hand_Dishwash_Detergent_(750ml_1.5L_5L).pdf)
- RHODORSIL huiles, Éd. par Rhône-Poulenc
- SCHMUKI P. & LASO M., 1990, On the stability of rivulet flow, *J. Fluid Mech.*, **215**, p. 125-143
- SHEN A.Q., GLEASON B., MCKINLEY G.H. & STONE H.A., 2002, Fiber coating with surfactant solutions, *Phys. Fluids*, **14 (11)**, p. 4055-4068
- STONE H. A., KOEHLER S.A., HILGENFELDT S. & DURAND M., 2003, Perspectives on foam drainage and the influence of interfacial rheology, *J. Phys. : Condens. Matter*, **15**, p. S283-S290

Conclusion

CETTE thèse est une contribution à la compréhension du ruissellement sur des surfaces solides dans diverses conditions de mouillage, et plus particulièrement des régimes de gouttes et de celui de méandres d'un filet. Il s'est agi d'une démarche plus spécifiquement expérimentale, accompagné le plus souvent possible d'une modélisation des phénomènes. Ce travail a fait intervenir de nombreux dispositifs expérimentaux et m'a menée au-delà de l'hydrodynamique. J'ai ainsi été conduite à devoir contrôler le mouillage en employant des techniques d'enduisage ou en recherchant divers substrats ayant des propriétés de mouillages et des hystérésis différentes, mais aussi à explorer la physicochimie des surfactants au sujet des méandres en mouillage total. Bien évidemment, chaque expérience nécessitait un travail important d'éclairage et de prise de vue, mais aussi de traitement d'images.

Sur l'étude des gouttes glissant sur un substrat partiellement mouillant (Partie I), nous sommes particulièrement intéressés aux singularités qui se développent sur leur portion arrière. Une nouvelle méthode de visualisation, donnant simultanément une vue de côté et une vue de dessus des gouttes, avec un fort contraste, a permis d'obtenir des informations sur la forme tridimensionnelle des gouttes. Nous avons ainsi établi que le coin, qui se développe pour des vitesses de gouttes suffisantes, se met en place à un angle de contact de reculée non-nul. De plus, le coin a bien une forme conique et son angle d'ouverture (vu de dessus) s'adapte de façon à maintenir la vitesse de la ligne de contact inférieure à la vitesse critique de dé mouillage. Un autre point nouveau que nous avons développé dans ce manuscrit est que la ligne de contact des gouttes en coin est toujours courbée, à des échelles de plus en plus petites lorsque la vitesse des gouttes est augmentée. Cette forte courbure de la pointe introduit une force supplémentaire qui permet de retarder la transition de mouillage. Ainsi, les gouttes évitent de mouiller le substrat à la fois en inclinant leur ligne de contact et en la courbant fortement. Quant aux écoulements à plus grandes vitesses, le régime de cusp (inversion de courbure de la ligne de contact), non accompagné du perlage de gouttes satellites à l'arrière, a été vu pour la première fois. Nous avons également commencé des investigations sur le régime de perlage, notamment concernant la largeur du filet qui se développe à l'arrière des gouttes. Des expériences complémentaires seront réalisées dans un avenir proche. Une collaboration en cours avec des théoriciens, devrait alors permettre de comprendre davantage ce régime particulièrement riche.

Concernant les méandres (Partie II), nous les avons étudiés à la fois sur des substrats présentant une forte hystérésis (Chapitre III), mais également en l'absence d'hystérésis (Chapitre IV). Dans les deux cas, l'instabilité est inertielle et se développe pour des débits suffisamment fort, par amplification d'une petite perturbation. Ces deux types de méandres comportent toutefois une différence importante. Dans le cas d'un écoulement avec une forte hystérésis, l'accrochage sur le substrat retient les méandres qui restent fixés dans une position donnée sur la plaque, alors que sans hystérésis, les méandres ne peuvent pas être fixes et deviennent mouvants. Étant mobiles, ces méandres peuvent être descendants, comme pour des liquides purs tels que l'huile silicone, ou bien parfois remontants si l'on utilise des solutions de surfactants (qui créent des interfaces rigides uniquement).

Le seuil de méandrage peut être retrouvé par un équilibre entre les forces d'inertie, de capillarité et éventuellement d'hystérésis, si elle est présente. La viscosité affecte le seuil et le repousse toujours vers des valeurs plus élevées du débit. Quant à la forme des méandres, la prise en compte de l'hystérésis de mouillage a permis de retrouver les valeurs expérimentales des rayons de courbures pris par les méandres stationnaires. Mais quel phénomène est alors à l'origine de la sélection des rayons de courbure des méandres mobiles, apparaissant en l'absence d'hystérésis ? La modélisation des méandres a déjà bien avancé, mais n'est pour autant pas encore complète et de nombreuses questions subsistent encore. En effet, notre modèle ne prévoit aucune sélection de longueur d'onde. Concernant l'amplitude des méandres, nous avons commencé à y voir un lien avec les effets de la gravité, mais la relation exacte entre amplitude et forces de gravité demande à être affinée.

La compréhension des méandres de filets ruisselant sur une (ou entre deux) plaque(s) est évidemment intéressante en soi, mais ne pourrait-elle pas mener à des conclusions plus générales sur les motifs oscillants rencontrés dans d'autres situations ? En effet, ce type de motif est assez fréquents et n'est pas l'apanage du ruissellement sur un substrat solide, mais peut être rencontré dans bien des situations variées.

Nous avons déjà vu que les méandres peuvent apparaître sur des sols qui s'érodent, comme c'est le cas pour les rivières (voir Figure Ccl- 1a). La forme prise par les méandres influence le développement de la végétation qui est plus luxuriante (vert plus foncé) dans l'intérieur des virages qu'à l'extérieur. L'érosion des flancs externes et le dépôt sur les flancs internes enrichit l'intérieur des coudes d'une grande quantité d'éléments nutritifs, et il s'y développe de nombreuses plantes aquatiques. L'assèchement du fleuve laisse percevoir la disposition de la végétation sur la Figure Ccl- 1a. Un peu plus en amont des fleuves, la fonte des glaciers présente également des méandres (cf. Figure Ccl- 1b). La fusion de la glace creuse d'importants réseaux de vallées, qui sont refaçonnés à maintes reprises selon l'avancée ou le retrait des glaciers.

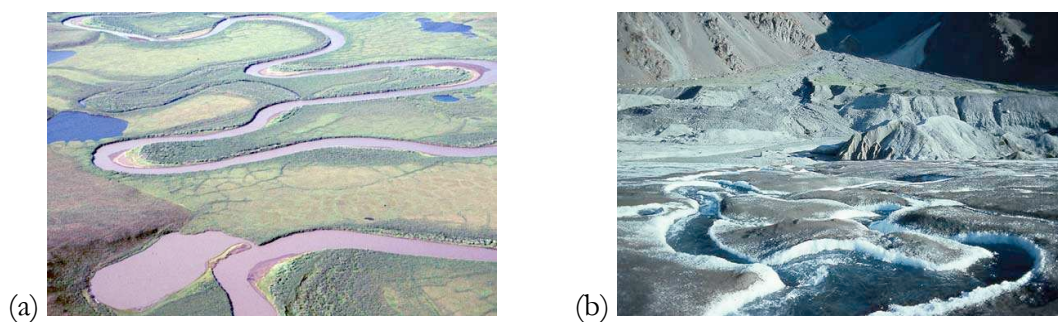


Figure Ccl- 1 : (a) Méandres du Yukon (Canada) qui, après son assèchement, découvre un tapis de plantes aquatiques plus important à l'intérieur des coudes qu'à l'extérieur. (b) Eau de fonte glaciaire s'écoulant du glacier Kaskawulsh (nord du Canada). Photographie C. ROOTS.

Les oscillations du filet en régime de méandres ne sont pas non plus sans rappeler l'instabilité d'un tuyau d'arrosage qui se met à battre [DE LANGRE 2001], telle qu'illustré sur la

Figure Ccl- 2. Cette instabilité est très importante pour la compréhension des interactions fluide/structure. Comme dans le cas de nos méandres, le tuyau d'arrosage a besoin d'inertie pour développer son instabilité, mais il faut également qu'il y ait un frottement du fluide, qui se fait ici sur les parois du tuyau. En effet, un filet d'eau en chute libre ne méandre pas durant sa chute.

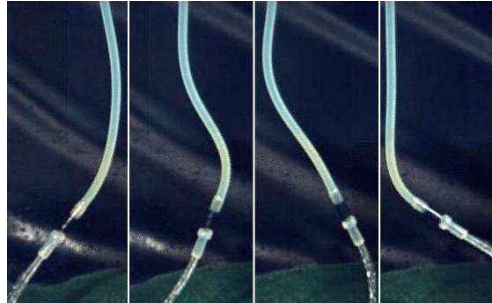


Figure Ccl- 2 : Instabilité d'un tuyau d'arrosage, obtenue pour des débits suffisamment importants. Une des extrémités doit être fixe et l'autre libre.

Il est tout de même possible d'observer une sorte de « méandrage » d'un filet liquide en chute libre, mais seulement à l'abord d'une paroi (cf. Figure Ccl- 3). L'approche de la paroi entraîne une décélération du fluide qui se met alors à flamber [MAHADEVAN *et al* (1998), RIBE (2003)].



Figure Ccl- 3 : Flambage visqueux d'un filet liquide de sirop de glucose (viscosité $\eta=120$ cP) engendré par sa décélération à l'approche d'un substrat. Photographie N. RIBE.

Les applications de ce phénomène sont nombreuses. En microfluidique par exemple, le pliage d'un fluide visqueux, entouré par un fluide miscible moins visqueux, dans un canal microfluidique peut être modifié par la forme de l'embouchure du canal (voir Figure Ccl- 4). Cela permet ainsi un contrôle du mélange des deux fluides [CUBAUD & MASON (2006)]. En géophysique, on observe le même type de motif à la zone de transition entre le manteau supérieur et le manteau inférieur, à 660 km de profondeur, où il se produit une discontinuité de densité et de viscosité [RIBE (2003)].

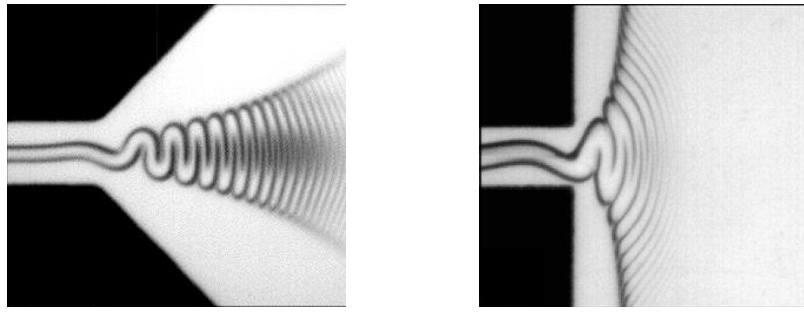


Figure Ccl- 4 : Pliage d'un filet visqueux entouré par un fluide miscible moins visqueux, dans un canal microfluidique, pour deux embouchures différentes. Photographie T. CUBAUD.

De nombreux problèmes à surface libre amènent donc à des structures qui peuvent ressembler aux méandres. Nous en avons cité quelques-unes, mais la liste ne prétend évidemment pas être exhaustive. Mais n'y aurait-il un point commun à toutes ces structures ? Il semblerait en effet que dans chaque cas nous soyons devant le paradoxe suivant : ce qui limite les oscillations est aussi nécessaire à leur apparition. Qu'il s'agisse par exemple de l'enveloppe (tube) qui limite le mouvement du tuyau par inertie (pour une épaisseur de paroi nulle, il n'y a plus d'oscillation), de l'accrochage sur la plaque (terme d'hystérésis) pour les méandres que nous avons étudiés au Chapitre III, ou encore certainement des frottements de la ligne de contact dynamique pour les méandres en mouillage total dans une cellule de Hele-Shaw étudiés au Chapitre IV, l'apparition des oscillations n'est rendue possible que par une force qui les limite également. Le point commun à tous ces phénomènes oscillatoires ne pourrait-il pas être alors l'inertie bien sûr, mais aussi la présence d'un frottement ?

Annexes

A. Mesure de la tension superficielle par arrachement

Les mesures de tension superficielle ont été effectuées par arrachement d'un anneau placé à l'interface air/liquide. Cette méthode est nommée méthode de DU NOÛY, d'après le dispositif décrit par Lecompte Du Noüy en 1919¹⁴. L'appareil utilisé, le K10ST de KRÜSS (cf. Figure A-1a), mesure la force capillaire qu'exerce un ménisque sur l'anneau, force proportionnelle à la tension superficielle γ . L'anneau utilisé est en platine car ce métal est mouillé par tous les liquides usuels.

Il faut d'abord s'assurer de la grande propreté de l'ensemble du matériel. Pour cela, on stérilise l'anneau du tensiomètre en le chauffant à rouge à l'aide d'un chalumeau. Le cristalliseur contenant le liquide doit être également nettoyé avec de l'acétone puis avec de l'eau distillée. Un ultime rinçage avec le liquide dont on veut mesurer la tension superficielle est préférable.

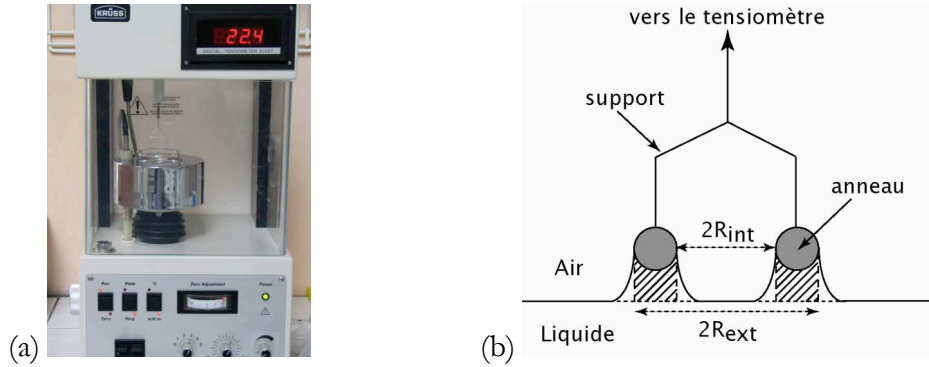


Figure A-1 : (a) Photographie du tensiomètre K10ST de KRÜSS (b) Schéma de l'interface liquide/air juste avant l'arrachement. L'excédent de liquide soulevé par l'anneau du tensiomètre est hachuré.

Le principe de la mesure est le suivant. L'anneau du tensiomètre, suspendu horizontalement, est plongé dans le liquide. Le tensiomètre mesure la force $F_{\text{arrachement}}$ exercée par le liquide sur l'anneau au moment où ce dernier se détache de l'interface. Cette force est liée à la tension de surface et à la géométrie de l'anneau :

$$F_{\text{arrachement}} = 2\pi R_{\text{int}} \gamma_{\text{mes}} + 2\pi R_{\text{ext}} \gamma_{\text{mes}} \approx 4\pi R \gamma_{\text{mes}} \quad (\text{A.1})$$

où R_{int} et R_{ext} désignent respectivement les rayons intérieur et extérieur de l'anneau et R son rayon moyen $R=9,545$ mm. Pour obtenir la tension de surface réelle, la tension mesurée doit être corrigée par un facteur f prenant en compte le volume de liquide soulevé par l'anneau au-dessus de la surface du liquide (cf. Figure A-1b) :

$$\gamma = f \gamma_{\text{mes}} \quad (\text{A.2})$$

¹⁴ La tension superficielle peut aussi être mesurée par arrachement d'une plaque au lieu d'un anneau (méthode de Wilhelmy, inventée en 1863).

Le facteur correctif est donné dans les tables fournies par le constructeur de l'appareil. Il dépend de la géométrie de l'anneau, de la différence de masse volumique entre les deux phases considérées et de la tension superficielle mesurée. Pour l'eau à 20°C, l'appareil est calibré pour que $f=1$, donc la tension superficielle mesurée par le tensiomètre est directement la bonne.

B. Mesure de la viscosité : viscosimètre à capillaire

Afin d'effectuer des mesures de viscosité, on utilise un viscosimètre à capillaire SCHOTT (cf. Figure B-1). Le liquide dont on veut mesurer la viscosité est injecté par le tube de droite. En plaçant une propipette au-dessus du tube capillaire, on aspire le liquide dans ce tube de façon à ce que son niveau dépasse le trait de jauge supérieur. Pour ne pas que le liquide pénètre également dans le tube de gauche qui sert à égaliser les pressions pour la mesure, il faut le boucher (avec le doigt par exemple) pendant l'aspiration du liquide. Le dispositif est alors prêt pour démarrer la mesure.

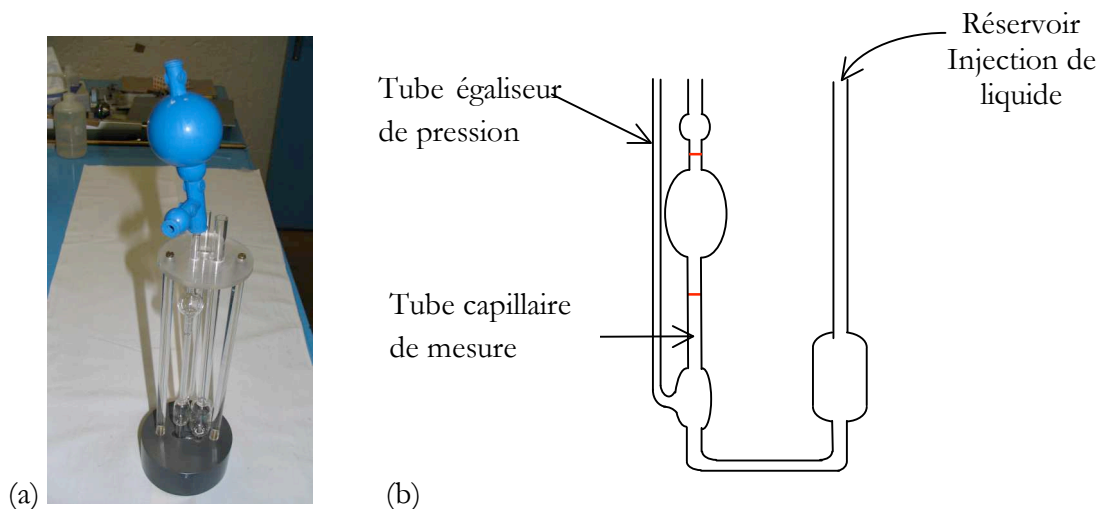


Figure B-1 : (a) Photographie d'un viscosimètre à capillaire surmonté d'une propipette (b) Schéma explicatif du rôle des différents tubes du viscosimètre.

Si l'on débouche le tube de gauche, la pression est identique (et égale à la pression atmosphérique) de part et d'autre du tube capillaire. L'écoulement dans le capillaire sera alors de type Poiseuille, et le temps τ d'écoulement du liquide entre les deux traits de jauge, proportionnel à la viscosité cinématique :

$$v = k\tau \quad (B-1)$$

Les valeurs des constantes k sont déterminées par le constructeur. Une simple mesure du temps d'écoulement entre les deux jauges permet donc d'obtenir une mesure de la viscosité cinématique.

C. Technique d'enduisage par le FC725

Le verre sur lequel le substrat fluoré FC725 est enduit doit être préalablement lavé pour afin qu'il devienne. Pour cela, nous effectuons un premier lavage à l'acétone, puis au savon et à l'eau. Pour éliminer les dernières traces d'impureté, on peut laisser tremper la plaque dans un bain d'acide sulfochromique¹⁵ pendant 30 min, puis rincer le tout plusieurs fois à l'eau distillée. Elle est ensuite séchée à l'étuve (50°C pendant 30 min), puis placée au réfrigérateur pour qu'elle ne soit pas trop chaude lors de l'étape d'enduisage par le vernis, afin que le vernis ait le temps de s'étaler avant que tout le solvant ne se soit évaporé.

Vient enfin la phase délicate du vernissage qui va permettre de rendre la surface non mouillante pour l'huile silicone. Le FC725 est dilué dans 5 fois son volume d'acétate d'éthyle. La plaque de verre est alors enduite à l'aide d'un transparent pour photocopieur, scotché sur un chariot que l'on déplace sur toute la longueur de la plaque (voir figure ci-dessous). Le transparent est guidé par des rails en NORCAN. Il est important que le transparent ne frotte pas trop fort sur la plaque car sinon le vernis se dépose en couche extrêmement mince et risque surtout de ne pas se déposer sur certaines zones de la plaque, zones qui restent alors mouillantes. Après un séchage sous la hotte d'environ une demi-heure, la plaque est prête à l'utilisation.

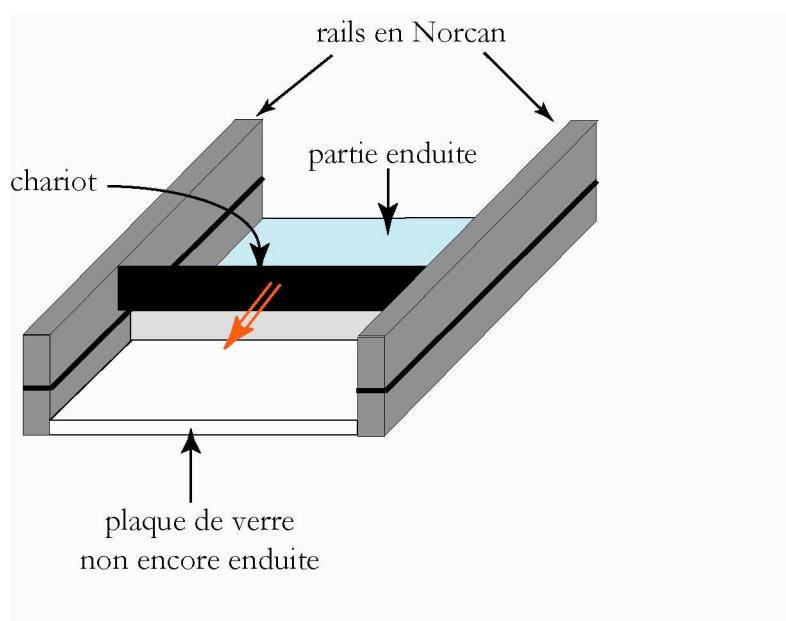


Figure C-1 : Technique d'enduisage de la plaque de verre par le vernis fluoré FC725, à l'aide d'un transparent guidé par des rails en NORCAN

¹⁵ Cet acide nécessite une manipulation sous la hotte, avec blouse, gants et lunettes de protection. Si une goutte d'acide sulfochromique se retrouve sur le manipulateur, il faut rincer immédiatement l'emplacement touché.

D. Calcul du préfacteur pour le seuil de méandrage

Nous avons vu à la section III.4.2 qu'une condition nécessaire au méandrage était que l'inertie $\rho S \frac{\langle v^2 \rangle}{r_c}$ domine la tension de ligne $C(\theta) \gamma \frac{w}{r_c}$, c'est-à-dire que le seuil est donné par :

$$\rho S \langle v^2 \rangle = C(\theta) \gamma w$$

où ρ représente la masse volumique du liquide, S la section du filet, $\langle v^2 \rangle$ la vitesse quadratique moyenne de l'écoulement, r_c le rayon de courbure initial de la perturbation qui s'amplifie pour donner un méandre, γ la tension de surface, w la largeur du filet et enfin $C(\theta)$ une constante de dépendant que de l'angle de contact moyen θ . L'expression de $C(\theta)$ est donnée par l'équation (III.13) :

$$C(\theta) = \frac{1}{2} \left(\frac{\theta}{\sin \theta} - \cos \theta \right)$$

On suppose que le filet est une portion de cylindre de rayon a , comme représenté sur la figure ci-dessous :

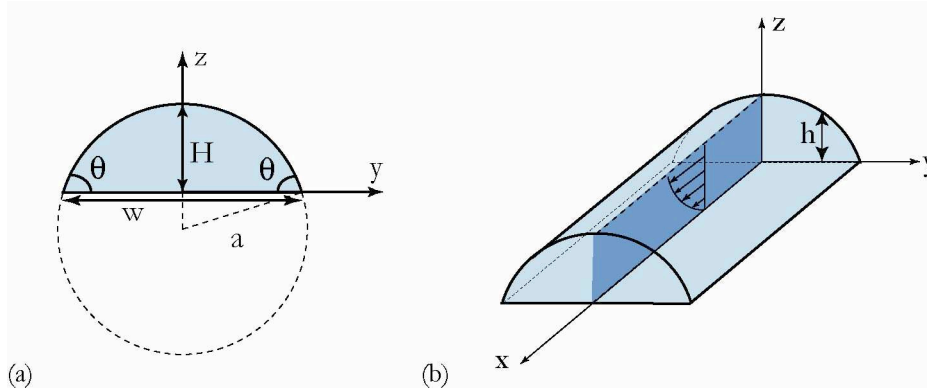


Figure D-1 : Forme supposée du filet liquide. Portion de cylindre vue (a) en coupe, (b) en trois dimensions

La surface S peut donc être reliée à w et θ par la relation rappelée à l'équation (III.7) :

$$S = \frac{w^2}{4 \sin \theta} \left(\frac{\theta}{\sin \theta} - \cos \theta \right) = \frac{w^2}{2 \sin \theta} C(\theta)$$

La modélisation de la vitesse par un écoulement de Poiseuille dans des tranches du cylindre de hauteur $h(y)$, identique à l'écoulement dans un film infini de même hauteur $h(y)$, donne la relation exprimée en (III.43) :

$$\langle v \rangle = \left(\Gamma(\theta) \frac{g \sin \alpha}{3\nu} Q \right)^{1/2}$$

où $\Gamma(\theta)$ est un facteur de forme qui ne dépend que de la géométrie en cylindre adoptée (cf. équation (III.44)). Il ne reste plus qu'à relier la vitesse quadratique moyenne à la vitesse moyenne, comme nous l'avons déjà vu à l'équation (III.47) :

$$\langle v^2 \rangle = \frac{6}{5} \langle v \rangle^2$$

Nous avons dorénavant tous les ingrédients pour calculer le préfacteur du seuil de méandrage. L'équilibre inertie et tension de ligne peut se réécrire :

$$\frac{6}{5} \rho \frac{w^2}{2 \sin \theta} C \langle v \rangle^2 = C \gamma w$$

ou encore :

$$w \langle v \rangle^2 = \frac{5}{3} \frac{\gamma}{\rho} \sin \theta$$

On peut maintenant relier la largeur w au débit Q en utilisant la conservation du débit :

$$Q = S \langle v \rangle \Rightarrow w = \left(\frac{2 \sin \theta}{C} \right)^{1/2} \left(\frac{3v}{\Gamma g \sin \alpha} Q \right)^{1/4}$$

En remplaçant les expressions de w et de $\langle v \rangle$ en fonction de Q dans la condition de seuil, on obtient la relation suivante :

$$\begin{cases} Q_{c1} = k \left(\frac{\gamma}{\rho} \right)^{4/5} \left(\frac{v}{g} \right)^{3/5} \cdot \sin^{-3/5} \alpha \\ k = \left(\frac{625 C^2 \sin^2 \theta}{12 \Gamma^3} \right)^{1/5} \end{cases}$$

Comme nous avons vu avec les mesures de vitesses que le filet droit semblait se positionner à l'angle d'avancée, on prend $\theta = \theta_{as} = 70^\circ$. Le calcul de k donne alors une valeur 3,02. Au final, le préfacteur devant le sinus de l'inclinaison vaut 0,085 contre les 0,47 trouvés expérimentalement (cf. Figure III-9). Nous sommes donc un facteur 5 trop bas. Pour corriger notre modèle, et obtenir un meilleur résultat sur le préfacteur, il faudrait prendre en compte l'hystérésis de mouillage qui a été négligée ici.

E. Programme de couplage des pousse-seringues

Les deux pousse-seringues peuvent être programmés pour qu'ils délivrent du liquide en continu. Il suffit pour cela de les câbler l'un à l'autre et de les programmer pour que pendant qu'un des pousse-seringue éjecte la solution de sa seringue, l'autre en aspire pour se remplir. Une fois éjectée la totalité du contenu de sa seringue, le premier pousse-seringue donne un signal au second pour échanger les rôles, signal envoyé par des interrupteurs fixés en bout de course et qui commandent le changement de sens de pompage. Les deux pousse-seringues reçoivent en même temps les signaux émis, sans savoir de quel pousse-seringue il provient.

Dans la programmation des pousse-seringue, il faut prendre en compte le fait que les clapets mettent un certain temps à se fermer et qu'il y a aussi un temps mort dû à l'hystérésis mécanique au moment de l'inversion de poussée des pousse-seringue. C'est pourquoi les volumes V_H et V_B ont été introduits, afin de prendre en compte l'hystérésis et le temps de fermeture des clapets. L'exposant $-$ correspond à une aspiration et le $+$ à une dispense de liquide.

Les étapes de programmation sont les suivantes :

ÉTAPE N°	POUSSE-SERINGUE 1	POUSSE-SERINGUE 2
1	OUT.O	OUT.1
2	RATE 0,5 mL Q_{\max} (withdraw)	PS.01
3	IF.02	IF.02
4	JP.15	Et.08
5	RATE 5 mL Q	
6	Et.08	
7	RATE ∞ Q	
8	RATE V_H^- Q_{\max} (withdraw)	
9	RATE V_B^- Q_{\max} (withdraw)	
10	RATE 50 mL Q_{\max} (withdraw)	
11	Et.05	
12	RATE V_H^+ Q_{\max}	
13	RATE V_B^+ Q_{\max}	
14	PS.00	
15	OUT.1	
16	JP.11	

Tableau C.1 : Commandes de programmation des pousse-seringues dans leur « langage de programmation » .

La programmation peut être représentée de la façon suivante (cf. Figure C-1), en traçant le débit volumique en fonction du temps. L'aire de la courbe représente ainsi le volume dispensé ($Q>0$) ou aspiré ($Q<0$).

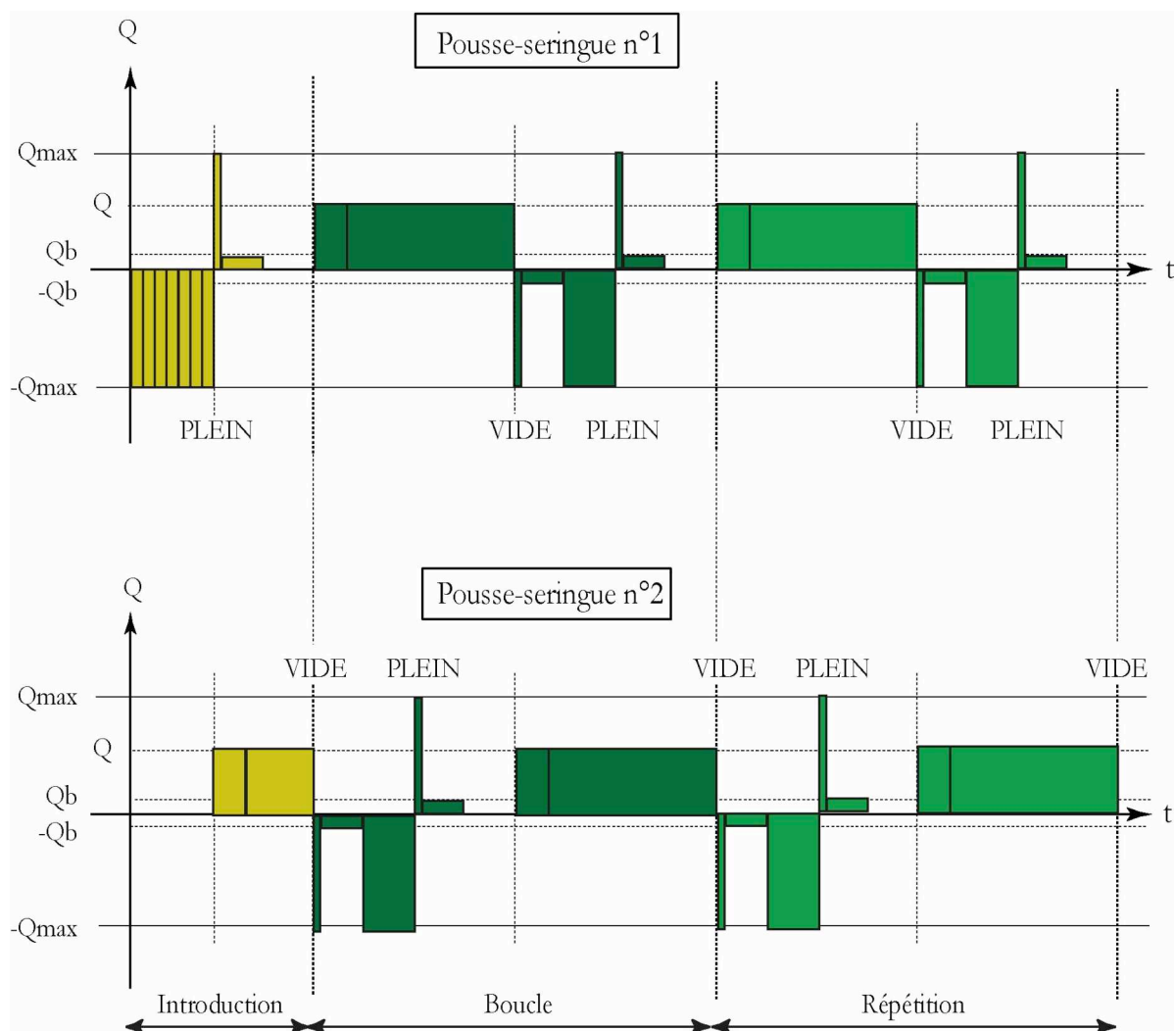


Figure C-1 : Schéma descriptif de la programmation des deux pousse-seringues.

La première phase est une introduction pour la préparation des pousse-seringues : le premier se remplit tandis que le second se vide. Une fois l'introduction passée, les pousse-seringues peuvent entrer dans le schéma qu'ils répèteront indéfiniment. L'un se vide pendant que l'autre se remplit, puis ils inversent les rôles.

Les volumes V , V_B , V_H et débit Q_B , ont été déterminés comme étant les suivants :

$$\begin{cases} V = 50 \text{ mL} \\ V_B^+ = 100 \text{ } \mu\text{L} & V_B^- = 300 \text{ } \mu\text{L} & Q_B = 0,51 \text{ mL / min} \\ V_H^+ = 250 \text{ } \mu\text{L} & V_H^- = 0 \text{ } \mu\text{L} \end{cases}$$

Q_{\max} dépend de la seringue utilisée. Nous avons utilisé la seringue à contenance maximale autorisée par les pousse-seringues, soit 60 mL, dont le diamètre interne est de 26,47 mm. Cela implique un débit maximal de :

$$Q_{\max}=28,0\text{mL}/\text{min}$$

Si l'on souhaite effectuer des manipulations à différents débits, il faut changer le débit Q dans les étapes 5 et 7.

Les commandes de programmation correspondent aux ordres suivants :

OUT.n : La commande OUT positionne la sortie TTL I/O au niveau n. Si $n=0$ la sortie est 0 et si $n=1$ elle est 1.

RATE : Correspond à une fonction de pompage avec un débit fixé. Il faut alors fixer le volume V qui doit être dispensé, ainsi que le débit Q auquel on veut que le liquide soit pompé. La commande « withdraw » demande une aspiration du liquide pour re-remplir la seringue. Si cette commande n'est pas enclenchée, le pousse-seringue vide sa seringue du volume V au débit Q .

Les volumes V_H et V_B sont là pour amortir respectivement l'hystérésis mécanique et le blocage des clapets anti-retour au changement de sens de pompage. Les exposants + correspondent à l'éjection de liquide de la seringue et l'exposant - à son aspiration.

IF.nn : Commande « jump to phase IF external trigger ». Cette commande modifie le programme de pompage si elle reçoit un signal extérieur. Si le signal TTL I/O est à 0 alors le programme de pompage saute à la phase nn. Par contre, s'il est à 1, le programme continue normalement par l'étape suivante.

JP.nn : Commande « Jump to phase nn ». Lorsque cette commande est exécutée, elle demande au programme de continuer à l'étape nn indiquée.

PS.nn : Il s'agit d'une commande de Pause. Si nn est non-nul, le programme se met en pause pendant nn secondes. Après l'intervalle de pause effectué, le programme reprend son cours à l'étape suivante. Si nn est nul (00), alors le programme se met en pause et attend un signal de déclenchement pour reprendre et continuer par l'étape suivante. Le signal de déclenchement peut être n'importe quel changement du signal TTL de I à O ou de O à I.

Et.nn : Commande « setup Event trigger jump phase ». La commande « event » met en place, en fond de tâche, un piège qui peut être déclenché par un signal externe. Le piège reste en place durant toute l'exécution du programme et n'a aucun effet sur celui-ci jusqu'à ce qu'il soit déclenché ou réinitialisé. Son déclenchement se fait par un passage du signal TTL de I à O, ou si le signal TTL est déjà à O au moment de l'exécution de l'étape « event ». A son déclenchement, le programme interrompt l'opération qu'il était en train d'effectuer et passe immédiatement à l'étape nn. Après son déclenchement, la commande est réinitialisée.

Afin que les pousse-seringue puissent aspirer et dispenser du liquide, il faut mettre en place un système de plusieurs tuyaux (une entrée et une sortie) avec des clapets. Les clapets ne permettent l'écoulement que dans une direction et se ferment dès qu'ils perçoivent un écoulement qui serait opposé au sens autorisé. Nous les schématiserons donc comme des diodes, par analogie électrique. Un montage en « pont de diodes » doit être monté pour permettre aux deux

pousse-seringue à la fois d'aspirer de la solution pour remplir leurs seringues, mais aussi de fournir de la solution au dispositif expérimental que l'on souhaite alimenter (cf. Figure C-2).

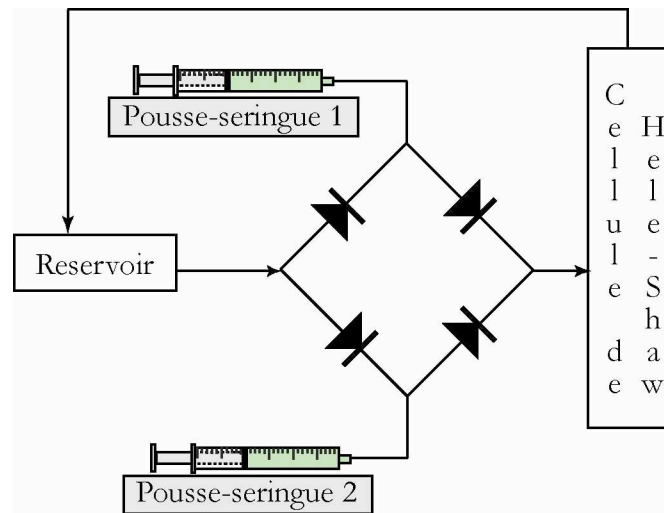


Figure C-2 : Schéma de montage des clapets et des pousse-seringues

F. Copie de l'article « Shape and motion of drops sliding down an inclined plane », *J. Fluid Mech.* (2005)

J. Fluid Mech. (2005), vol. 541, pp. 293–315. © 2005 Cambridge University Press
doi:10.1017/S0022112005006105 Printed in the United Kingdom

293

Shape and motion of drops sliding down an inclined plane

By NOLWENN LE GRAND, ADRIAN DAERR
AND LAURENT LIMAT

Laboratoire de Physique et Mécanique des Milieux Hétérogènes (PMMH)
UMR 7636 of CNRS, ESPCI, 10 rue Vauquelin, 75231 Paris Cedex 05, France, and
Fédération de Recherche Matières et Systèmes Complexes, UMR 7057 of CNRS, Université de
Paris 7, 4 place Jussieu, 75005 Paris, France

(Received 2 August 2004 and in revised form 28 April 2005)

We report experiments on the shape and motion of millimetre-sized drops sliding down a plane in a situation of partial wetting. When the Bond number based on the component of gravity parallel to the plane Bo_\parallel exceeds a threshold, the drops start moving at a steady velocity which increases linearly with Bo_\parallel . When this velocity is increased by tilting the plate, the drops change their aspect ratio: they become longer and thinner, but maintain a constant, millimetre-scale height. As their aspect ratio changes, a threshold is reached at which the drops are no longer rounded but develop a 'corner' at their rear: the contact line breaks into two straight segments meeting at a singular point or at least in a region of high contact line curvature. This structure then evolves such that the velocity normal to the contact line remains equal to the critical value at which the corner appears, i.e. to a maximal speed of dewetting. At even higher velocities new shape changes occur in which the corner changes into a 'cusp', and later a tail breaks into smaller drops (pearling transition). Accurate visualizations show four main results. (i) The corner appears when a critical non-zero value of the receding contact angle is reached. (ii) The interface then has a conical structure in the corner regime, the in-plane and out-of-plane angles obeying a simple relationship dictated by a lubrication analysis. (iii) The corner tip has a finite non-zero radius of curvature at the transition to a corner, and its curvature diverges at a finite capillary number, just before the cusp appears. (iv) The cusp transition occurs when the corner opening in-plane half-angle reaches a critical value of about 45° .

1. Introduction

Contact line dynamics are encountered in many everyday situations and especially in industrial coating processes (Kistler & Schweizer 1997), from offset printing to the chocolate-frosting of candy. But the dynamics of wetting, although of interest in a wide range of industrial applications, still lacks a fully satisfactory physical description. Here we focus our interest on a well-defined and apparently simple problem: what happens when a liquid drop slides down a uniform, inclined plane in a situation of partial wetting? At what velocity does it slide and what shape does it assume to accommodate capillary effects and drop motion?

Perhaps unexpectedly, these problems have received rather little attention. Available studies mostly focused on static or quasi-static drops: on yield conditions, i.e. the onset of movement of the drops (Bikerman 1950; Furnidge 1962; Dussan V. & Chow 1983), and on drop velocity just above onset, when the shape of the drops

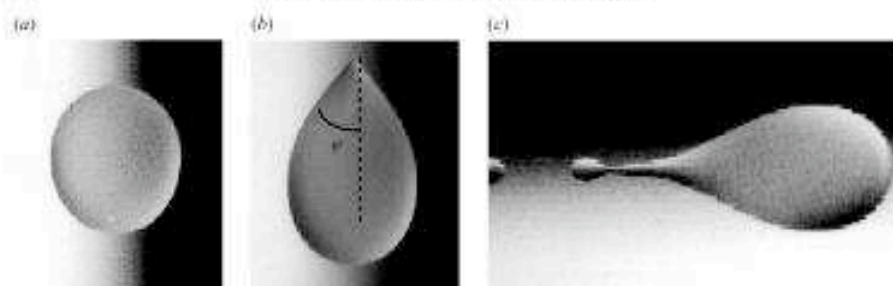


FIGURE 1. Drops sliding down a partially wetting solid surface, pictures from Podgorski (2000). (a) Rounded drop, (b) corner, (c) pearling drop. Motion is from top to bottom in (a) and (b), and from left to right in (c).

remains nearly circular (Dussan V. 1985; Kim, Lee & Kang 2002). However, there is little work on the motion and shape of the drops far above the onset. In a recent experiment, our group performed careful observations on silicone oil drops sliding down a glass plate coated with fluoropolymers (Podgorski, Flesselles & Limat 2001). They showed that unexpected shape changes occur when the velocity U of the drop is increased. When U exceeds a critical value U_c , the drops are no longer rounded as in figure 1(a) and a 'corner' develops at their rear (figure 1b). Such singularities are surprising considering the large capillary pressure which the high surface curvature induces near the corner tip. At higher velocities other shape changes occur in which a 'cusp' forms and, for even higher velocities, a liquid tail develops at the corner tip, leading to droplet deposition, which is referred to as 'pearling' (figure 1c).

These phenomena were qualitatively related to previous observations of what happens when a plate or a tape is pulled out of a bath at the same conditions of partial wetting. Above the critical velocity U_c (maximum speed of dewetting), a triangular film edged by two contact lines forming a similar corner is entrained on the tape with droplet deposition at the corner tip (Blake & Ruschak 1979). In both cases (drops and tapes), this transition to a corner shape is assumed to postpone a forced dynamic wetting transition (Blake & Ruschak 1979; Podgorski *et al.* 2001), in turn assumed to occur when the dynamic receding contact angles vanishes (a hypothesis first proposed by Derjaguin & Levi 1964). To summarize, its inclination allows the contact line to move normally to itself at the critical velocity U_c , while the whole drop (or tape) moves at a larger velocity U . The corner opening angle is thus linked to the drop or plate velocity by a 'Mach cone type' relationship of the kind $U_c = U \sin \varphi$. These qualitative considerations leave unresolved the detailed theoretical understanding of these surprising shape changes of sliding drops, that have become a challenge for theoretical modelling. So far, only the rounded to corner transition has been investigated (Ben Amar, Cummings & Pomeau 2001, 2003), and also the interface and flow structure in the corner tip (Stone *et al.* 2001; Limat & Stone 2004). In Ben Amar *et al.* (2001, 2003) a saddle-point structure of the corner tip is assumed, which allows one to both impose a vanishing contact angle at contact line and limit the pressure divergence. On the other hand, in Stone *et al.* as in Limat & Stone (2004), the interface is assumed to take a conical, self-similar, structure, which increases the pressure divergence usually involved in hydrodynamic models of contact line dynamics (Voinov 1976; Cox 1986).

In the present paper we revisit the experiment by Podgorski and co-workers with a new, improved, setup. A simple visualization method enables us to get simultaneous

pictures of the drops taken from above and from the side. These two simultaneous views provide information on the three-dimensional structure of the interface which was impossible with our previous visualization method. An appropriate lighting gives a very strong contrast to these pictures (the drops appearing black on a light background) from which several geometrical quantities are extracted as a function of the capillary number, including the dynamic contact angles and the opening angles of the corner. Among other results, we found that in the corner regime the interface at the rear of the drop has a conical structure, and that this structure appears for a non-zero value of the dynamic receding contact angle. This contrasts with what was commonly believed up to now (Blake & Ruschak 1979; Podgorski *et al.* 2001; Ben Amar *et al.* 2001). Also, the tip of the cone is in fact rounded at small scale, its curvature diverging progressively until the cusp regime appears.

There are several motivations for the present study. Firstly, understanding the corner formation is important for coating applications (Kistler & Schweizer 1997) where this effect limits the efficiency of coating devices (maximal speed of wetting or dewetting, dynamic wetting failure, air trapping, etc.). Secondly, there has recently been great interest in singularity formation at interfaces (Cohen & Nagel 2002), with possible applications for micro-fabrication (encapsulation processes, etc.). When a corner is formed on a sliding drop, there is a point singularity at the intersection of two line singularities (contact lines), which can be important for deposition on a solid surface. Finally, it is one of the simplest wetting experiments that one can imagine to test available contact line models (Voinov 1976; de Gennes 1986; Cox 1986; Blake & Ruschak 1997; Pomeau 2000; Eggers 2005). Here we compare our measurements of dynamic contact angles at the front and rear of the drops to four of these models.

The structure of our paper is as follows. In §2, we first describe the experiment and specify its physical conditions (fluid, surface, image acquisition, etc.). In §3 we describe qualitatively the different regimes observed (oval drops, corner, cusp, and pearling drops). In §4 we present quantitative results concerning the motion of the drops (onset of motion, dependence of the velocity on plate inclination, etc.). In §5 we investigate the evolution of the shape of the drops for increasing capillary number, through several quantities: aspect ratio, dynamic contact angles, and opening angles of the corner. Finally, in §6, we present a synthesis of the results, attempting to give a unified picture of the evolution of drop shapes when the capillary number (i.e. the drop velocity) is changed. We also try to establish connections with recent available models of the corner (Stone *et al.* 2001; Limat & Stone 2004; Ben Amar *et al.* 2001). Preliminary measurements and a brief account of some of the results in this paper are available in two recent European Coating Symposia (Limat *et al.* 2001; Daerr *et al.* 2003).

2. Experimental setup

As depicted in figure 2, millimetre-size drops of silicone oil are emitted at a frequency of about 0.5 Hz by a capillary tube (Pasteur pipette) connected to a syringe pump. The drops fall onto the top of a 22×22 cm glass plate coated with fluoropolymers (FC-725 by 3M) which provide partial wetting conditions for silicone oils (Podgorski 2000), the static contact angles being close to 50° . Using silicone oils (PDMS: $\text{CH}_3[\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{O}]_n\text{Si}(\text{CH}_3)_3$) allows us to vary the viscosity η (via the polymer chain length n) over two orders of magnitude at almost constant surface tension and density. The main characteristics of the oils used are summarized in table 1.

The drops slide down the inclined plate at constant speed – the terminal velocity is reached within a few millimetres from impact – and constant shape. The volume of

Label	Polymerization degree n	Viscosity η (cP)	Density ρ (kg m^{-3})	Surface tension γ (mN m^{-1})
47V10	9	10.0 ± 0.2	936 ± 2	20.1
47V100	75	103.7 ± 0.2	964 ± 2	20.9
47V1000	338	1035 ± 5	970 ± 2	21.1

TABLE 1. Characteristics of the silicone oils used.

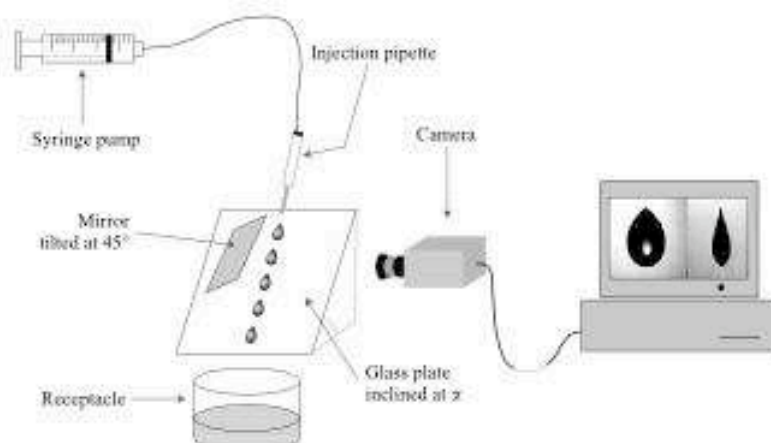


FIGURE 2. Description of the experimental setup.

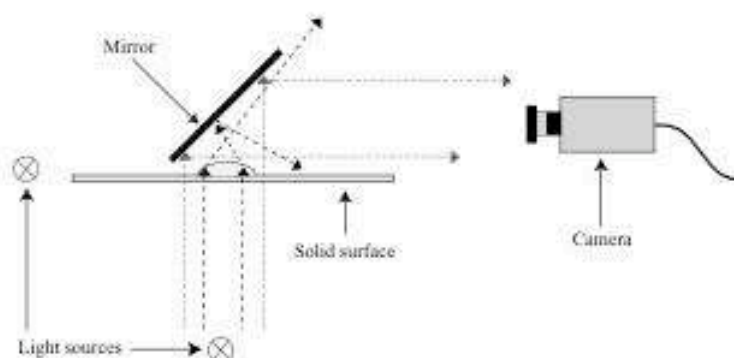


FIGURE 3. In our visualization method, the drops appear dark on a light background. This diagram is in the plane perpendicular to both the inclined plate and the direction of drop motion.

the drops is fixed ($V = (6.0 \pm 0.2) \text{ mm}^3$), and we use the plate inclination as a control parameter to change the drop velocity.

The drop motion and shape are recorded from the side by a video camera whose optical axis is perpendicular to the trajectory of the drops, and at a very small angle with the inclined glass plate. A mirror is suspended above the drop at 45° tilt with respect to the glass plate, so that the camera simultaneously records the direct lateral view and the top view seen in the mirror (figure 3). This visualization method

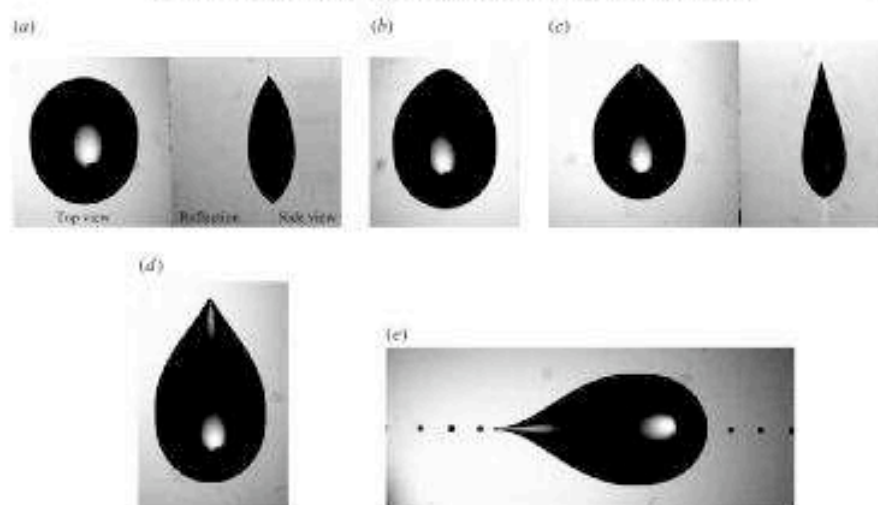


FIGURE 4. Top views (along with side views for (a) and (c)) of drops sliding down an inclined plate for increasing velocities, $\eta = 104$ cP. (a) Oval drop $Ca = 2.85 \times 10^{-3}$, (b) corner $Ca = 4.95 \times 10^{-3}$, (c) corner $Ca = 5.14 \times 10^{-3}$, (d) cusp $Ca = 7.07 \times 10^{-3}$, (e) pearls $Ca = 7.19 \times 10^{-3}$. The motion is from top to bottom except for (e) where it is from left to right.

gives information on the three-dimensional structure of the interface which was not achieved with previous visualizations. We made use of a 'FAST CAM' high-speed video camera, not so much because of its high acquisition frequency as for the high quality of the images produced and the small size of its CCD (1/4 in.) which simplified the optical tunings (step-up ring of 10 mm and a 12.5–75 mm zoom lens). In order to maximize the image contrast (silicone oil being transparent), two light sources are placed at a great distance behind and below the drops (see figure 3).

The light sources are extended enough to produce a white background across the imaged area, but localized enough so that the almost parallel light rays going through a drop are deviated away from the diaphragm by the oblique liquid-air interface. As a result the drops appear black on a white background, except for the centre of the top view where a small image of the light source can be seen. Figures 4(a) and 4(c) give examples of the simultaneous top and side views of the drops (respectively on the left- and right-hand side of the picture). The side view shows the reflection of the drop in the glass plate in addition to the drop itself. From the movies we extract the velocity of the drops for different plate inclinations, as well as geometrical quantities including the advancing and receding dynamic contact angles, as will be detailed in §5.2.

3. Description of the different drop regimes

At different steady speeds (obtained by changing the plate inclination), the drops adopt different shapes which are particularly easily discriminated by looking at the top views. At low velocities the drops take an oval shape as shown in figure 4(a). If the velocity of the drops is increased, a corner develops at their rear. This transition seems at first continuous: the radius of curvature of the contact line at the rear decreases, and two straight line segments appear on both sides of the tip. Consequently, there is first a 'rounded-corner' (figure 4b), and only for higher velocities does the tip appear

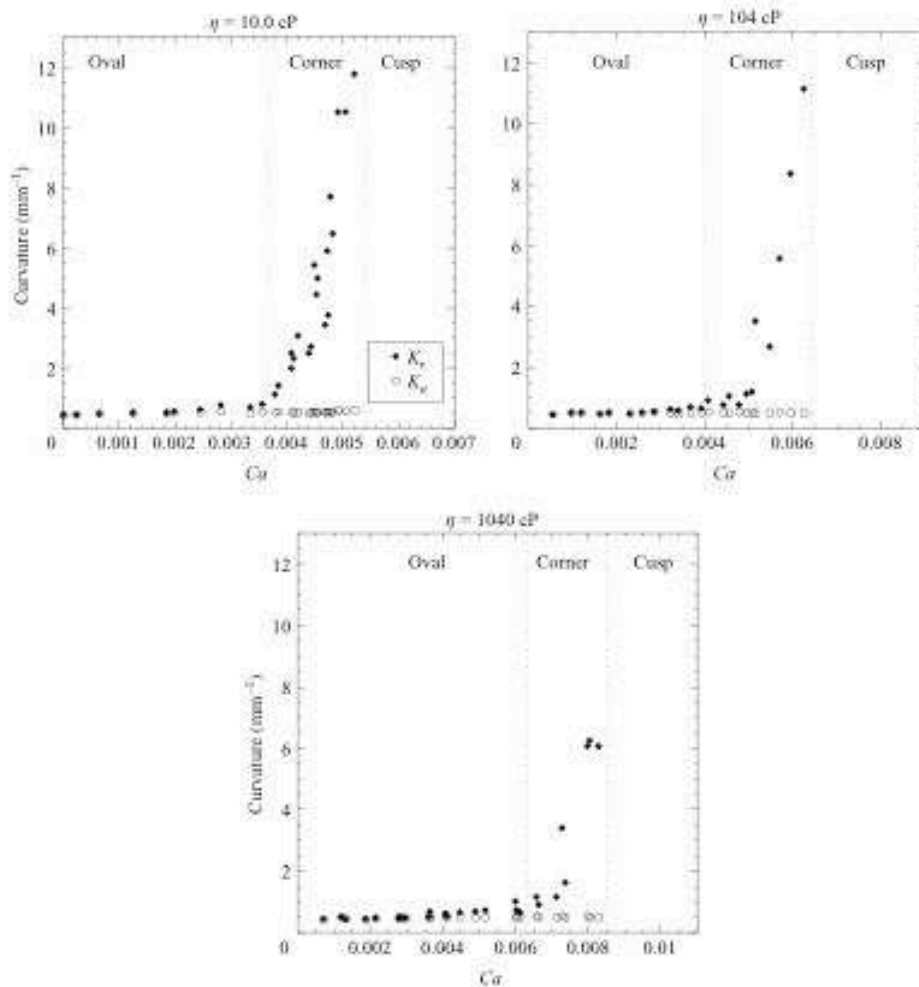


FIGURE 5. In-plane curvatures at the front K_f and rear K_r of the drops seen from above as a function of Ca . The oval-to-corner transition is defined by the sudden variation of the angle ψ that decreases from 90° , following a $1/Ca$ law (see figure 14). This also corresponds to the point at which K_r rises above K_f .

to be sharp (figure 4c). We will see that the distinction between the oval and the corner regime is justified by the corner in-plane opening angle which defines a precise transition point (§ 5.4.1): it varies sharply from 90° to smaller values just at this transition. The corner shape is surprising, considering that surface tension is usually thought to oppose the formation of such a singularity. As one can judge from the side views, the interface has a conical structure when the corner regime is well enough developed. This point will be discussed in more detail in § 5.4.4.

To describe the 'oval' to 'corner' transition more accurately, the curvatures in the plane of the substrate, measured at the front K_f and at the rear of the drops K_r , are plotted in figure 5 versus the capillary number $Ca = \eta U/\gamma$ (defined through

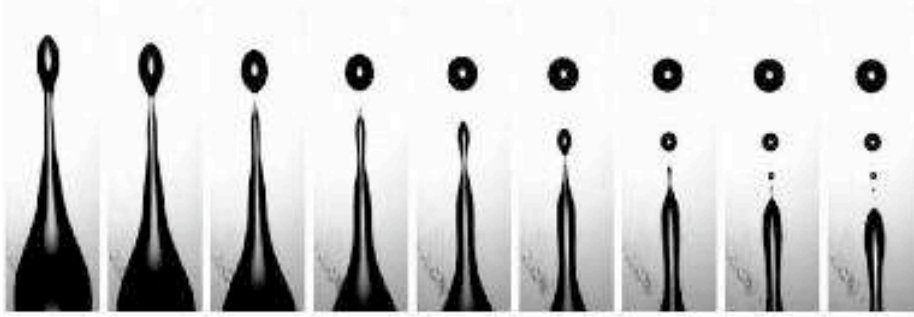


FIGURE 6. Pinching-off in the pearling regime and cascade of smaller drops deposited, $\eta = 104$ cP, $Ca = 15 \times 10^{-3}$, $1/3$ s between two pictures.

the drop velocity U , the liquid viscosity η and its surface tension γ), along with a description of the observed shapes. The curvature at the front of the drop remains practically constant, whatever the regime. On the contrary, the curvature at its rear is equal to the front curvature only for a stationary or slowly moving drop, and it increases rapidly at higher velocity. It can be noted that the point at which K_r rises above K_a corresponds to the transition from oval drops to corners. We can see that the curvature at the rear remains finite throughout the corner regime, but sharply diverges for a finite capillary number, which seems to coincide with the transition from 'corner' to 'cusp'. Indeed, for even higher velocities, a cusp begins to form at the rear of the drop, i.e. the contact line is bent outwards close to the tip (figure 4d). It is remarkable to see that this shape change occurs precisely at the capillary number at which the curvature of the tip diverges.

Above yet another critical velocity, a pearling transition characterized by the emission of droplets from the tip of the cusp occurs (figure 4e). The size of the droplets increases with the velocity of the drops, and eventually the pinching-off produces a cascade of smaller droplets in a process akin to the pinching-off below a dripping faucet (see figure 6).

4. Motion of drops

4.1. Velocity of drops and plate inclination

After the drops start sliding down the plate, their steady velocity U is an increasing function of the plate inclination angle α . To illustrate this, figure 7 shows the evolution of the capillary number $Ca = \eta U / \gamma$ versus an effective Bond number based on the component of gravity parallel to the plane: $Bo_\alpha = Bo \sin \alpha = V^{2/3}(\rho g / \gamma) \sin \alpha$, where Bo is the 'true' Bond number. These two dimensionless parameters are those used in Podgorski *et al.* 2001. Three forces are acting on the drops: their weight, a viscous drag on the glass plate, and the interfacial forces. The in-plane components of these forces respectively scale as: $\rho V g \sin \alpha$, $-\eta U V^{1/3}$, and $-\gamma V^{1/3} \Delta_\theta$, where the non-dimensional factor Δ_θ depends on the contact angle distribution along the perimeter and on the perimeter shape. The force balance implies the following scaling law:

$$Ca \simeq Bo_\alpha - Bo_c \quad (4.1)$$

where Bo_c is a constant depending on the wetting hysteresis through Δ_θ . This linear scaling of the non-dimensional velocity Ca with plane inclination, $\sin \alpha$, is confirmed

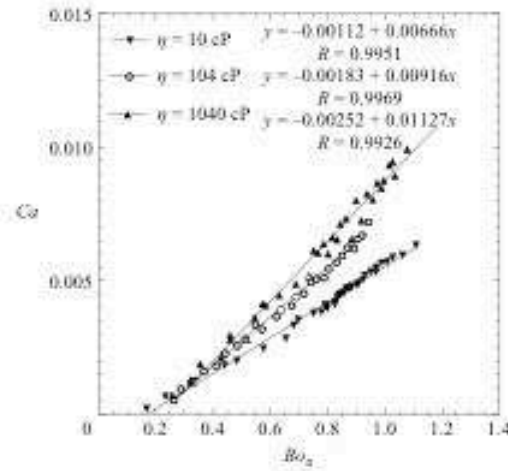


FIGURE 7. Non-dimensional velocity of the drops as a function of plate inclination α . $Ca = \eta U / \gamma$ is the capillary number based on the drop velocity U and $Bo_\alpha = Bo \sin \alpha$ where Bo is the Bond number. R is the correlation coefficient.

Liquid	$\theta_{s,a}$ (deg.)	$\theta_{s,r}$ (deg.)	Hysteresis (deg.)	Theoretical Bo_c	Experimental Bo_c
10.0 cP	50.5 ± 0.5	45.5 ± 0.5	5.0 ± 1.0	0.14 ± 0.03	0.17 ± 0.04
104 cP	52.9 ± 0.5	42.7 ± 0.5	10.2 ± 1.0	0.28 ± 0.03	0.20 ± 0.05
1040 cP	58.1 ± 0.5	46.8 ± 0.5	11.3 ± 1.0	0.32 ± 0.03	0.22 ± 0.05

TABLE 2. Onset of drop motion for three silicone oils on fluoropolymers.

well by the experimental data plotted in figure 7. Note that the data-sets do not completely collapse when represented in non-dimensional units ($Ca = \eta U / \gamma$ as a function of $Bo_\alpha = V^{2/3} \rho g \sin \alpha / \gamma$), small variations in the wetting properties (table 2) being sufficient to explain the different slopes.

4.2. Onset of motion

Drops are at rest at low plate inclinations and start sliding down the plate only above a critical slope, due to contact angle hysteresis. We have experimentally determined the critical slopes for the onset of motion. The corresponding critical Bond number is related to the static contact angle hysteresis $\theta_{s,a} - \theta_{s,r}$ through the shape of the drop (Dussan V. 1985):

$$Bo_c = \left(\frac{24}{\pi} \right)^{1/3} \frac{(\cos \theta_{s,r} - \cos \theta_{s,a})(1 + \cos \theta_{s,a})^{1/2}}{(2 + \cos \theta_{s,a})^{1/3}(1 - \cos \theta_{s,a})^{1/6}} \quad (4.2)$$

where $\theta_{s,a}$ and $\theta_{s,r}$ respectively denote the static advancing and receding contact angles. This equation for Bo_c is only valid for small values of the hysteresis, 10° being a maximum value for $\theta_{s,r} - \theta_{s,a}$. The side views of the drops were used to determine $\theta_{s,a}$ and $\theta_{s,r}$ in the limit of zero velocity (see § 5.2). The hysteresis in our experiments is not always smaller than 10° , but the theoretical values of Bo_c are found to be in rough agreement with the experimental ones (see table 2), the latter varying slightly less with hysteresis than equation (4.2).

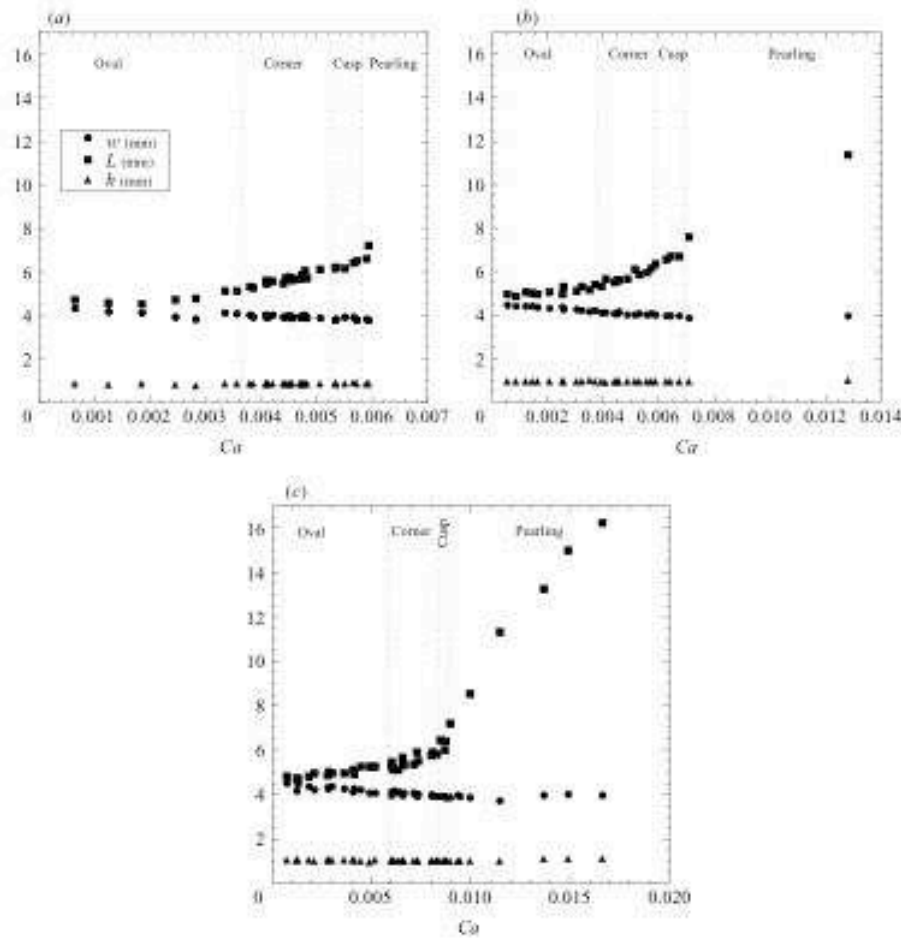


FIGURE 8. Evolution of the length L , width w and height h of drops for (a) $\eta = 10.0$ cP, (b) 104 cP, and (c) 1040 cP.

5. Geometry of the drops

5.1. Aspect ratio of the drops for the different regimes

The length L , width w and maximum height h of the drops have been systematically measured for many inclinations, and are plotted in figure 8. Their evolution for increasing capillary numbers is similar for the three viscosities tested. The most significant variation concerns the length of the drops, which drastically increases in the pearling regime (where L then denotes the maximum length before breakup). The width slowly decreases for increasing capillary numbers, whereas the maximum height remains constant, close to 1 mm, for all three liquids. Thus, as the capillary number increases, the drops get longer and thinner, but keep the same height.

5.2. Dynamic contact angles for rounded drops

Using the side view of a drop, the dynamic advancing contact angle θ_a at the front and the dynamic receding contact angle θ_r at the rear of the drops can be measured.

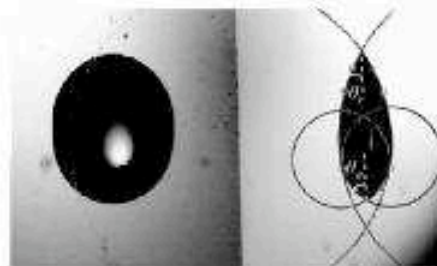
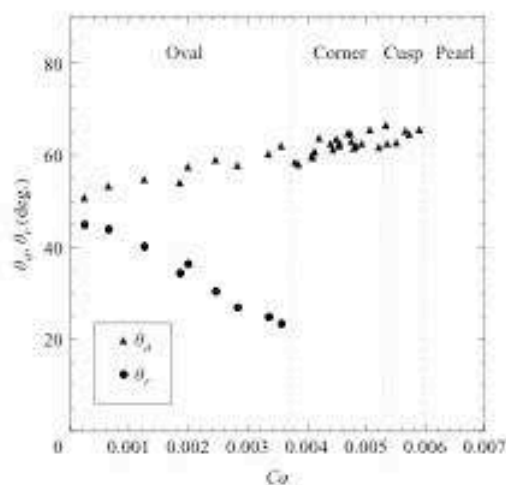


FIGURE 9. Measuring contact angles with circles. The motion is from top to bottom.

FIGURE 10. Advancing and receding contact angles for $\eta = 10.0$ cP.

This experiment is one of the simplest giving the opportunity to test dynamic wetting models. Figure 9 shows how we measure the contact angles by adjusting two circles tangent to the surface near the tips to fit the contour of the drops. The angle at the intersection of the circles is then calculated. It turns out that interactively adjusting the circles to fit the contour yields a much better precision and reproducibility (typically 1° – 2°) than simply adjusting a wedge made up of two straight line segments. This method gives a macroscopic estimate of the dynamic contact angles at a millimetre scale.

The resulting measurements for silicone oils are plotted as a function of capillary number in figure 10, for $\eta = 10.0$ cP, the plots for the two other viscosities being very similar (see figure 18 below). As expected, the advancing contact angle increases with drop speed, while the receding angle becomes smaller. At rest the angles can range anywhere between the critical values $\theta_{r,c} = 46^\circ$ and $\theta_{r,c} = 51^\circ$. This relatively small interval of 5° , referred to as wetting hysteresis, is another indicator of a very clean and homogeneous surface, in addition to the observed perfectly regular motion of the drop.

The most important observation from the contact angle measurements is that the corner occurs for a finite receding contact angle of about 21° for this viscosity. For a viscosity of 104 or 1040 cP, the critical receding angles for the corner regime

are respectively around 23° and 26° . This contrasts with the hypothesis of Blake & Ruschak (1979) and Podgorski (2000) that the corner shape occurs when the receding contact angle reaches zero.

5.3. Dynamic contact angles: comparison with models

We now compare different models of wetting dynamics to our above experimental data: de Gennes' model, Cox-Voinov's law, a molecular-kinetic model, and finally a linear model of the mobility law linking dynamic contact angles to the capillary number. We start with de Gennes' wetting model (de Gennes 1986) which assumes that the air-liquid interface is locally planar. The liquid therefore forms a wedge, advancing or receding on a solid surface. By writing down an energy balance, truncated at a microscopic dimension a and a macroscopic one b , he obtains

$$\theta(\theta^2 - \theta_s^2) = \pm 6 \ln(b/a) Ca \quad (5.1)$$

where θ_s denotes a statical equilibrium value of the contact angle (hysteresis being neglected). The $+$ symbol refers to an advancing contact line and the $-$ symbol to a receding one. Note that this equation suggests a dynamic forced wetting transition of first order (with discontinuity of contact angle) occurring for $\theta = \theta_s/\sqrt{3}$, whereas all the following models are more consistent with a second-order one. Cox and Voinov's approach (Cox 1986; Voinov 1976) consists in solving Stokes' equations assuming a slowly changing slope of the air-liquid interface, down to microscopic scales. Similar to the approach of de Gennes, the solution is truncated at molecular and macroscopic dimensions, giving the following law:

$$\theta^3 - \theta_s^3 = \pm 9 \ln(b/a) Ca = \pm Ca/A \quad (5.2)$$

where $A = 1/[9 \ln(b/a)]$. The exact formula given by Voinov is more complex, but it can be simplified to that written above for contact angles smaller than $3\pi/4$ (Blake & Ruschak 1997), which is always the case in our experiments here. In the molecular-kinetic model of wetting (Blake & Ruschak 1997; Ruijters, Blake & De Coninck 1999), the approach is very distinct from the two former ones. The dissipation at the contact line is assumed to be dominated by individual molecular displacements at a frequency f , disturbing the adsorption equilibrium at the wetting line. Hence one obtains

$$\theta^2 - \theta_s^2 = \pm \left(\frac{vNkT}{2\pi f L_a h} \right) Ca \quad (5.3)$$

where v is called the molecular flow volume, N the number of adsorption sites per unit area, k the Boltzmann constant, T the absolute temperature, L_a the length of an individual displacement, and finally, h , the reduced Planck constant. It is interesting to note that all the three so-called 'mobility laws' recalled above can be written as $P(\theta, \theta_s) \simeq Ca$ where P is third- or second-order polynomial. This polynomial can of course be linearized at low Ca values, which sometimes enables simplification of calculations of wetting or dewetting flows (Ben Amar *et al.* 2001, 2003; Pomeau 2002). This results in a simplified linear model:

$$\theta - \theta_s \propto \pm U \quad (5.4)$$

that was proposed long ago by Dussan V. (1979), before becoming somewhat forgotten in view of the noticeable curvature of most available experimental data (Blake & Ruschak 1997).

All these possible descriptions of contact line dynamics neglect wetting hysteresis, which complicates the comparison between models and experimental data. A simplification very often encountered, made by most experimentalists, consists in identifying

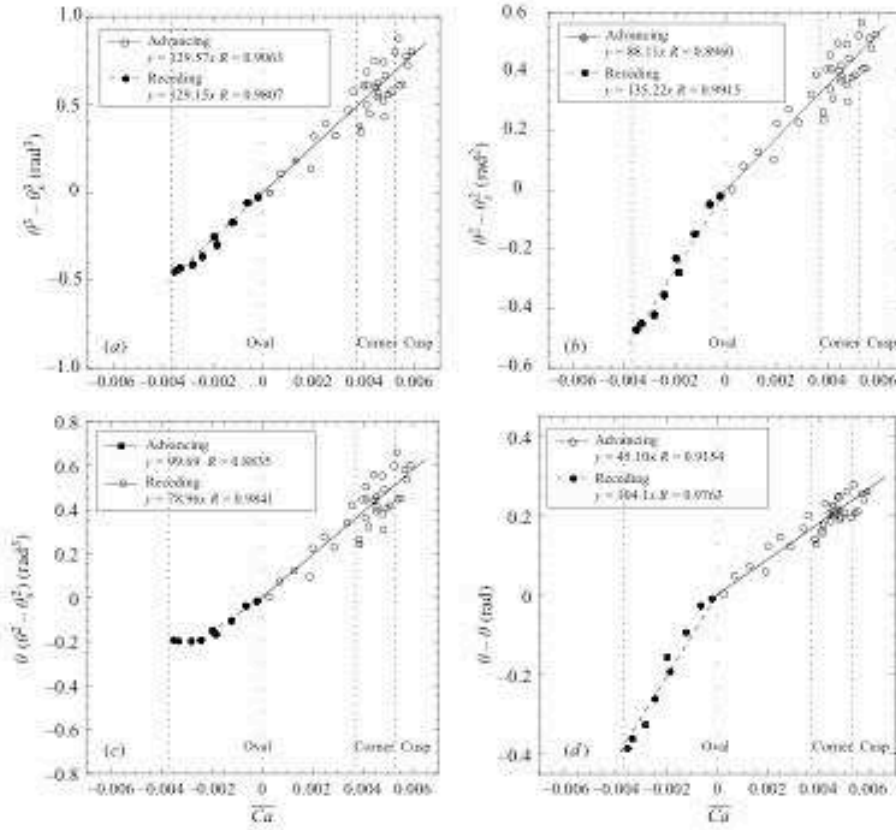


FIGURE 11. Comparison several models for the dynamics of wetting, $\eta = 10.0$ cP. (a) Cox–Voinov, (b) molecular-kinetic, (c) de Gennes, (d) linear. In this figure exclusively, in order to highlight the similarity or discrepancy between the slopes of the advancing and receding parts, the ordinates have been plotted versus the algebraic capillary number Ca . Ca is positive for the advancing branch and negative for the receding one.

the static contact angle with the limit static angle observed on each branch of the mobility law (i.e. with $\theta_{s,a}$ for the ‘advancing’ curve, and $\theta_{s,r}$ for the ‘receding’ case). This hypothesis has never been proved, but, intuitively, could be reasonable in situations of low hysteresis, as occurs here. Put differently, this point of view implicitly assumes that the hysteresis effect can be reduced to a simple shift of the mobility laws. To simplify the visualization, we found it convenient to plot the quantities $\theta - \theta_s$, $\theta^2 - \theta_s^2$, $\theta(\theta^3 - \theta_s^3)$, and $\theta^3 - \theta_s^3$, versus the algebraic capillary number Ca , $Ca > 0$ corresponding to the advancing contact line at the drop front, and $Ca < 0$ to the receding contact line, and where θ_s has been identified with the static limit angles.

One can see in figure 11 that all these models seem to match the data fairly well in a large range of capillary number. Clearly, our data cannot be used to rule out any of them definitely. On the other hand, each of them is affected by specific drawbacks and has specific advantages. First, de Gennes’ model seems to fail very near the forced wetting transition, where an unexpected ‘plateau’ is observed. Also, the molecular-kinetic model and the linear description do not preserve the symmetry between wetting

Shape and motion of drops sliding down an inclined plane

305

Liquid	$a(n)$ (nm)	$a(\sqrt{n})$ (nm)	A for $a = a(n)$	A for $a = a(\sqrt{n})$	Experimental advancing A	Experimental receding A
10.0 cP	3	0.9	8.7×10^{-3}	8.0×10^{-3}	8×10^{-3}	8×10^{-3}
104 cP	20	3	10×10^{-3}	8.7×10^{-3}	9×10^{-3}	12×10^{-3}
1040 cP	100	6	12×10^{-3}	9.2×10^{-3}	13×10^{-3}	13×10^{-3}

TABLE 3. Checking the slopes in Cox-Voinov's model.

and dewetting; the right- and left-hand parts do not exhibit the same slope at zero capillary number. There is of course no known reason for 'nature' to favour this symmetry, but the Cox-Voinov representation of the data does preserve this symmetry. One can check on figure 11(a) that the slope at zero capillary number is indeed the same for both positive and negative capillary number. In this respect, though – again – we cannot extract from our data a definite proof in favour of Cox's and Voinov's model, this symmetry is a strong indication in favour of this classical hydrodynamic approach, at least for our experiments on smooth and weakly hysteretic substrates. It is why, in the subsequent sections of our paper we have made use of this model.

Moreover, this symmetry survives a change in viscosity, as can be checked on table 3 for three different oils. For the three oils, the value of the constant $A = 1/[9 \ln(b/a)]$ ($\theta^3 - \theta_s^3 = \pm Ca/A$) is found to be identical, or at least rather close, for both wetting and dewetting. Also, in the same table, it is possible to check that the measured values for A are consistent with orders of magnitude of the relevant spatial scales acting at microscopic scales. The value of the constant $A = 1/[9 \ln(b/a)]$ can be estimated as follows. The typical size of the drops (i.e. 1 mm) will be taken for the macroscopic dimension b , and the size of the molecules of silicone oil (PDMS: $\text{CH}_3[\text{Si}(\text{CH}_3)_2\text{O}]_n\text{Si}(\text{CH}_3)_3$) for the molecular dimension a . Knowing that the distance between a silicon and an oxygen atom in PDMS is $l_{\text{Si-O}} = 0.160$ nm and that the angle $\beta = \text{SiOSi}$ equals 144.0° , gives $l_{\text{Si-Si}} = 2l_{\text{Si-O}} \sin(\beta/2) = 0.30$ nm, and the total length of an accordion-like silicone oil molecule would be $a(n) = nl_{\text{Si-Si}}$. If the molecules are very flexible, the typical diameter of the molecule will be $a(\sqrt{n}) = \sqrt{n}l_{\text{Si-Si}}$, assuming a random walk. We might expect the true molecule size, and microscopic cut-off a , to be somewhere between these two estimates of the molecular dimension. From table 3 we see that the experimental values are in excellent agreement with the corresponding values for A . To our knowledge, this is the first time that a variation in the molecule size is shown to consistently modify the microscopic cut-off length in a hydrodynamic model, and this observation is another indication in favour of this hydrodynamical approach.

Yet, we must also mention that even the Cox-Voinov model has a drawback. As stated above, rather than predicting a forced wetting transition for a non-zero value of contact angle, their model predicts transition for a vanishing contact angle. This is in apparent contradiction with our finding of a non-zero critical value for the appearance of the corner. Only de Gennes' model predicts such a transition for a non-zero critical angle θ_c . At this point, despite the problems of de Gennes' model in the description of our data, it is interesting to see if this critical angle we found experimentally is close to that predicted by de Gennes' approach. In table 4, we report the static angles with the involved hysteresis, the critical angle and the ratio of its value to the receding contact angle for the three oils used. As this table shows, the ratio θ_c/θ_r is close to de Gennes' prediction $1/\sqrt{3} = 0.577$, at least for the two most viscous oils, but remains definitely smaller. In conclusion, no model seems to describe perfectly

Liquid	$\theta_{c,r}$ (deg.)	$\theta_{c,l}$ (deg.)	Hysteresis (deg.)	Critical θ_c (deg.)	Ratio $\theta_c/\theta_{c,r}$
10.0 cP	50.5 ± 0.5	45.5 ± 0.5	5.0 ± 1.0	21 ± 0.5	0.460 ± 0.015
104 cP	52.9 ± 0.5	42.7 ± 0.5	10.2 ± 1.0	23 ± 0.05	0.540 ± 0.015
1040 cP	58.1 ± 0.5	46.8 ± 0.5	11.3 ± 1.0	26 ± 0.05	0.555 ± 0.015

TABLE 4. Ratio $\theta_c/\theta_{c,r}$ observed experimentally. De Gennes' model would imply a ratio equal to $1/\sqrt{3} = 0.577$.

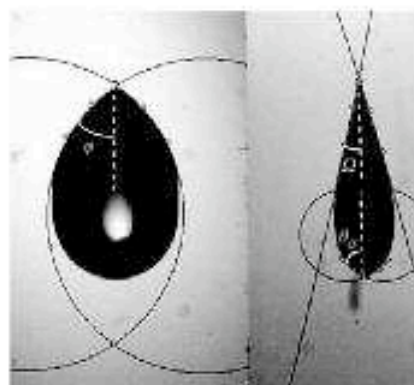


FIGURE 12. Measuring in-plane and out-of-plane opening angles of drops in the corner regime.

and completely our data. The better consistency seems to be reached with the Cox–Voinov model: in this representation, the data preserve the symmetry between wetting and dewetting, but do not exhibit a forced wetting transition at vanishing dynamic contact angle. On the other hand, de Gennes' model recovers the non-zero observed critical angle, but its value is slightly too high and there are problems with the description of the data very near this transition.

5.4. Beyond rounded drops: corners and cusps

We now consider what happens after the transition to a corner shape, and so examine the evolution of the opening angles of the cone from the top views, denoted φ , and from the side views, denoted Ω (figure 12).

5.4.1. In-plane corner opening angle

The in-plane opening angle φ is defined unambiguously for corners, for which we used the 'circles' method previously explained in § 5.2, as shown in figure 12. This angle is however more difficult to define for cusped drops since, contrary to the corner drops, there is a sign change in the curvature of the contact line at the rear. As suggested in figure 13, two different estimates of φ have been measured, one defined at the tip of the drops, and the other defined at the change in sign of the contact line curvature, that we call 'inflection point measurement'. This latter definition corresponds to the angle spanned by the tangents to the contact line at the curvature inflection points, without taking into account the tip of the drop. We found that the 'inflection point' definition was more consist with measurements performed in the corner regime, as shown on figure 14, where we have plotted the evolution of $\sin \varphi$ versus Ca . This

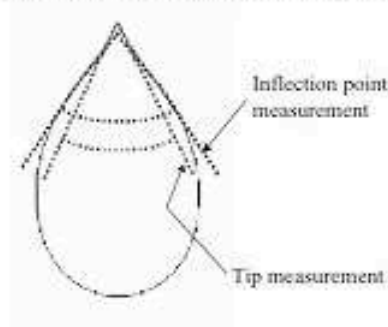


FIGURE 13. Two possible definitions of the angle φ for a cusped drop: 'inflection point measurement' and measurement performed at the tip.

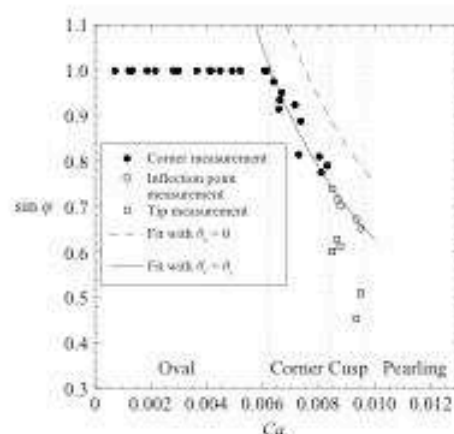


FIGURE 14. Evolution of $\sin \varphi$ versus the capillary number for a viscosity $\eta = 1040$ cP. Dashed line: predictions of equation (5.5), the prefactor being deduced from contact angle measurements on oval drops. Continuous line: predictions of equation (5.6), the critical angle θ_c being the receding contact angle at which the corner is formed.

specific measurement of $\sin \varphi$ for the cusped drops aligns with the corner ones on a continuous curve, suggesting the relevance of the 'inflection point' measurement.

As shown on the same figure, $\sin \varphi$ can be fitted with a $1/Ca$ law, as had already been reported by Podgorski *et al.* (2001). In that paper, following ideas going back to Blake and Ruschak (Blake & Ruschak 1979), this $1/Ca$ law and the corner formation itself are explained as follows. When the velocity is progressively increased from zero, the dynamic receding contact angle $\theta_r = f(Ca)$ decreases and vanishes for a critical velocity U_c . At this threshold, a forced wetting transition should occur at which the drop should leave a continuous Landau–Levich film behind itself. To minimize surface energy variations the system would 'choose' to incline the contact line with respect to the direction of motion in order to keep the component of velocity normal to the line equal to U_c . If one assumes that the dynamic contact angle is only a function of this normal component of velocity, this statement is equivalent to saying that the 'corner' appears when the dynamic contact angle reaches zero and that once it has appeared,

this contact angle stays equal to zero on each of the two tilted contact line segments. Equation (5.2) then implies that

$$\sin \varphi = \frac{\theta_c^3}{9 \ln(b/a)Ca} \propto \frac{1}{Ca}. \quad (5.5)$$

As mentioned above, our contact angle measurements show that the dynamic receding contact angle does not vanish when the corner regime begins, which seems to rule out this interpretation. This is also the case when one tries to directly test equation (5.5) on our data, using the values of $A = 1/[9 \ln(b/a)]$ extracted up above from our contact angle measurements. When plotted on figure 14 (as dashed lines), the law clearly overestimates the measurements of $\sin \varphi$. However, the qualitative argument used by Podgorski and Blake can be valid if one assumes now that in the corner regime the receding contact angle, instead of vanishing, remains always equal to the critical contact angle θ_c identified above, at which the corner appears. This leads to a new law describing $\sin \varphi$, still satisfying a $1/Ca$ dependence, but with a different prefactor:

$$\sin \varphi = \frac{\theta_c^3 - \theta_c^2}{9 \ln(b/a)Ca}. \quad (5.6)$$

As can be seen in figure 14 (continuous line), this law fits the data very well. In summary, we have shown that instead of satisfying a zero contact angle, the corner seems to accommodate a uniform and constant dynamic receding contact angle on each of its two contact lines, this contact angle being equal to θ_c . This is reminiscent of the fact that the forced wetting transition occurs for a non-zero receding contact angle as suggested in de Gennes' model, which value is very close to the θ_c value found in our experiments (see table 4). Let us repeat here that a paradoxical result of our measurements is that the contact angle measurements are better described by a Cox–Voinov model, but the existence of a critical angle is reminiscent of de Gennes' approach. This point remains to be understood.

5.4.2. Contact line velocity

A striking way to point out the oval-to-corner transition consists in plotting the velocity normal to the contact line ($U \sin \varphi$) versus the drop velocity U , or in non-dimensional units, the effective capillary number $Ca \sin \varphi$, defined through the normal velocity, versus the capillary number (figure 15).

It is plain that for oval drops, at the rear, both velocities are equal, and the points align on the the first quadrant bisector. In the corner regime, the curve saturates. This plot highlights that once the capillary number becomes higher than its critical value at which the corner appears, the normal velocity remains constant. The corner transition can thus be viewed as an attempt by the drop to keep its normal speed constant, equal to the critical speed at which the transition occurs. This is of course just another way to interpret equation (5.6): $Ca \sin \varphi = \text{const}$ being equivalent to $\sin \varphi \propto 1/Ca$. This point is obviously connected to the fact explained above that the corner also maintains a constant contact angle equal to θ_c on each of the two contact lines. In fact, it is as if each contact line behaved as a single contact line moving normally to itself, the sole relevant dissipation being associated with the fluid motion in the normal direction. In addition, each contact line is locked to a fixed point characterized by the normal velocity $U \sin \varphi$ and the associated dewetting contact angle, which is in turn governed by the normal component of velocity alone. A more careful analysis of this decoupling between normal and transverse fluid motion is developed in a companion paper (Rio *et al.* 2005).

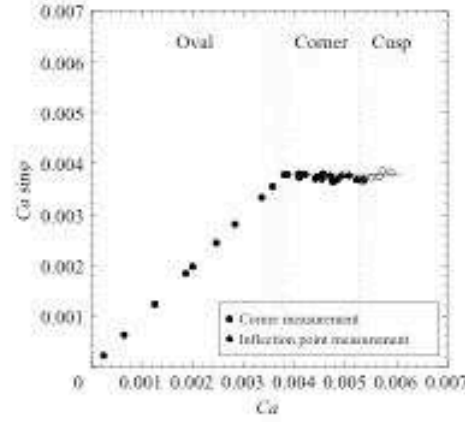


FIGURE 15: Non-dimensional normal speed of contact line at the drop rear versus drop speed (in terms of parameters $Ca \sin \psi$ and Ca) for $\eta = 10.0$ cP.

We emphasize that the corner transition from oval to corner shape is very well-defined in figure 15, or equivalently that the in-plane corner opening half-angle tends to $\pi/2$ continuously. This means that despite the fact that the apex of the ‘corner’ has a curvature which increases continuously, we recover after the event a clear transition point for the appearance of the corner.

5.4.3. Corner-to-cusp transition

As can be seen on figure 14 for a 1040 cP oil, the transition from a corner to a cusp occurs for an in-plane corner opening half-angle of order 45° . This result is in fact more general and holds for the two other viscosities used (see for instance figure 18, later in the text). Careful analysis of our data leads to a transition angle equal to

$$\psi = 47^\circ \pm 2^\circ. \quad (5.7)$$

This is somewhat surprising compared to previous results reported by Podgorski (2000), who suggested a transition close to 30° . In fact, Podgorski’s visualization method did not allow very accurate distinguishing of what happened very close to the tip of the drops, and this transition was also instead defined for the pearling regime, both sources of discrepancy being difficult to evaluate. Note however that our value of ψ at the transition to a cusp is very close to that in Ben Amar *et al.* (2001), though the model used in that paper (saddle point corner tip) is in contradiction with the conical shape of the interface that we found. This issue clearly deserves more accurate future studies.

5.4.4. Out-of-plane cone angle

Since the tail of the drop has a conical shape (at least when the corner tip becomes highly curved) it is clear that in this regime the angle measured from the side views at the rear of the drop can no longer be interpreted as a receding contact angle. Indeed, the contact line has a singularity at the rear and the vertical cross-section seen on the side views is nowhere perpendicular to the contact line. Instead, a ‘cone opening angle’ is measured, which we denote Ω (see figure 12). We can note however that there is no discontinuity between the values of the receding contact angle θ , below the critical capillary number of the corner transition and Ω above it, as shown in

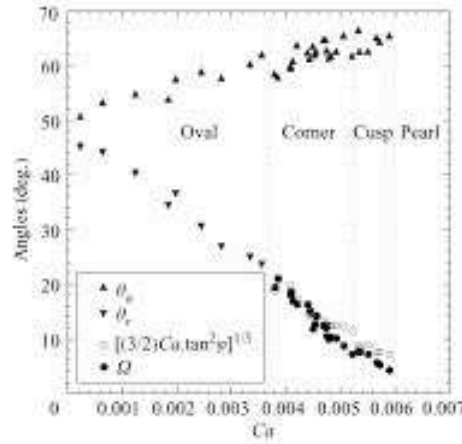


FIGURE 16. Continuity of Ω and θ_r , and comparison between the experimental values of Ω and the Limat–Stone model for a viscosity $\eta = 10.0$ cP.

figure 16. It is also worth noting that above the transition, the values of Ω decrease but are still non-zero at the onset of the pearling regime.

Recently, Limat & Stone (2004) proposed a similarity solution of Stokes' equation at the rear of a sliding drop, in which the interface has indeed a conical shape. Considering the flow inside the corner in the context of lubrication theory, the authors explain how Ω and φ should be related by the following equation:

$$\tan^3 \Omega = \frac{3}{2} Ca \tan^2 \varphi. \quad (5.8)$$

A simple approach based on a parabolic estimate and lubrication analysis, as explained in the Appendix, also gives this equation. The plot in figure 16 shows that the measurements of Ω and $[(3/2)Ca \tan^2 \varphi]^{1/3}$ match relatively well, which confirms that this model is suitable for the description of the tip of the drops after the corner transition. Since both equation (5.6), giving $\sin \varphi = f(Ca)$, and equation (5.8), giving Ω as a function of φ , appear to be in good agreement with our data, let us combine them in order to extract a law giving Ω versus Ca :

$$\tan^3 \Omega = \frac{3}{2} Ca \tan^2 \left(\arcsin \frac{\theta_r^3 - \theta_c^3}{9 \ln(b/a) Ca} \right). \quad (5.9)$$

We have compared this law in figure 17 with our data of Ω for the three viscosities used. The agreement is remarkable if one considers the complexity of the physics underlying both equations (5.6) and (5.8), which clearly constitute rather crude estimates of reality. Note however that this representation of the data allows us to show noticeable discrepancies between the experiment and the model. The data obtained in the cusp regime are clearly below the theoretical curve and the expected divergence of Ω near the corner appearance is screened by something that remains unexplained, possibly the fact that the corner is rounded.

6. Conclusion: towards a unified description of corners and related transitions

Concerning the problem of the drop shape, the present study allows us to draw the following conclusions. These are summarized in figure 18, where the angles measured

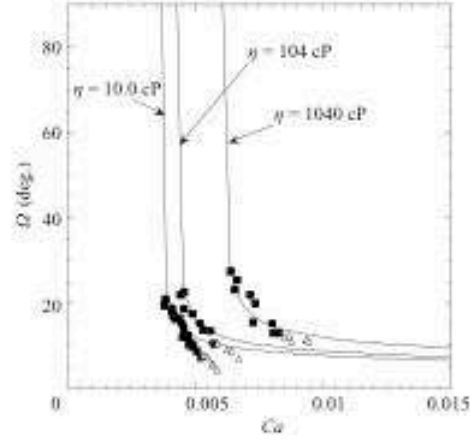


FIGURE 17. Law giving $\Omega = f(Ca)$. The solid lines represent equation (5.9) for all three viscosities. The filled rectangular symbols are for the corners, and the open triangular ones for the cusps.

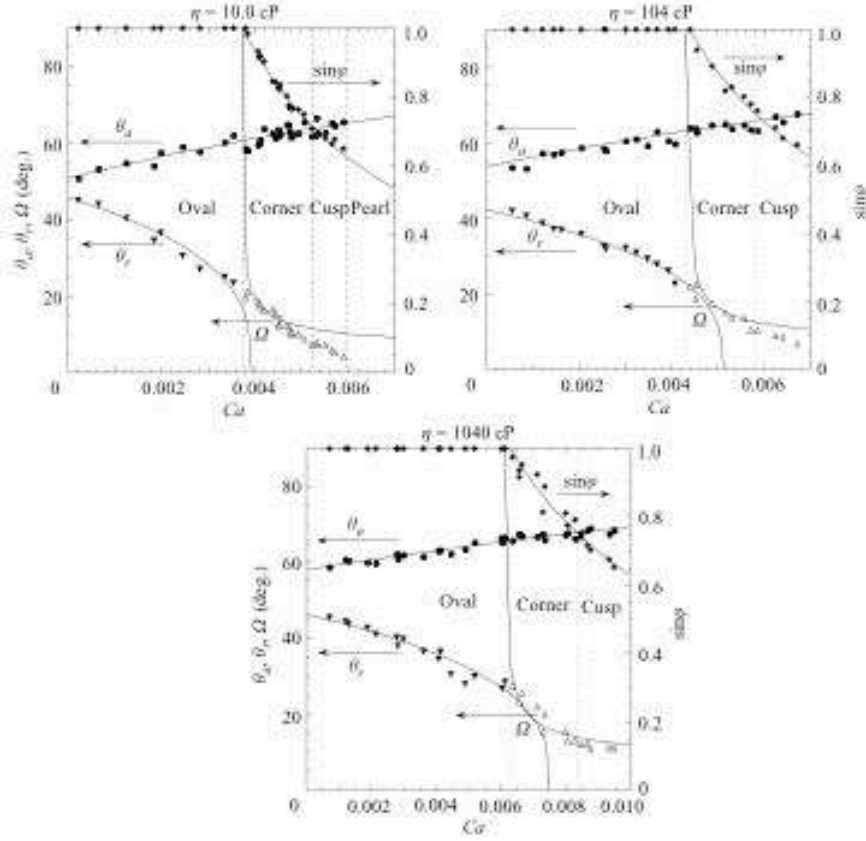


FIGURE 18. Synthesis of results. The solid lines represent the Cox-Voinov law, along with equations (5.6) and (5.9).

are shown in one graph for each viscosity tested, and compared with some of the laws found in the paper.

First, when one considers the dynamic contact angles measured at the advancing and receding front of oval drops, it seems that, when compared to de Gennes' model (de Gennes 1986), to the molecular-kinetic model (Blake & Ruschak 1997), or to a linear model, Cox-Voinov's hydrodynamic model (equation (5.2)) has the best consistency with our measurements. In figure 18, the related fit is superimposed on the data (solid line), and as one can judge from this figure, there is a very good agreement between the model and the data. Let us point out however that the molecular-kinetic and linear models can still be accommodated within the scatter of our data, but the Cox-Voinov model is able to capture the full set of data with the same value of the logarithmic prefactor for both the receding and advancing angle. Though this is not strictly a proof of the validity of this model, this fact is a strong indication in favour of this approach.

It must be recalled that all these wetting models are only valid for the ideal case in which there is no hysteresis at all ($\theta_{f,r} = \theta_{f,a} = \theta_f$). In order to take the hysteresis into account, we have, in a way, subtracted it from the dynamic contact angles, and obtained symmetrical straight lines for Cox-Voinov's model (see figure 11), just as expected without any hysteresis. This seems to show that it is as if the hysteresis simply induced a shift in the curves governing the mobility laws, which is not obvious, as it could also have induced deformations of the curves. However, it must be mentioned that the hysteresis in our experiments is fairly small, and it is possibly the reason why we have avoided complications.

A second important result is that, contrary to what was up to now commonly believed, the transition to a corner occurs for a non-zero value of the receding angle reached at the rear of the drop. This again shows up quite well in figure 18: for the three graphs, the dynamic receding angle is still non-zero when the sine of the in-plane corner opening half-angle φ begins to differ from 1, precisely at the place where the qualitative observations of the drop shape suggest the occurrence of the oval-to-corner transition. It is at present not clear whether the transition to an angular shape in a moving drop is related in some way to a forced wetting transition, as imagined by Podgorski *et al.* (2001), but if one trusts this rather natural idea, our data indicate that such a forced wetting transition should occur for a non-zero value of the dynamic receding contact angle (first-order transition). Surprisingly, this is a property that only de Gennes' model and its recent extensions (de Gennes, Hua & Levinson 1990) are at present able to reproduce. However, this model predicting a transition for a finite contact angle is controversial since the interfacial shape is only treated approximately, neglecting the surface curvature (see Eggers 2004). A puzzling result of our investigations is that the Cox-Voinov model reproduces appropriately the shape of our $\theta(Ca)$ laws, but is unable to explain a first-order forced wetting transition. On the other hand, de Gennes' model does predict a first-order transition, but the predicted shape of $\theta(Ca)$ is clearly inconsistent with the data, at least for the receding branch. A possible explanation of this paradox is perhaps contained in Golestanian & Raphael (2001, 2003). They showed that surface heterogeneities, which are presumably related to contact angle hysteresis, are able to increase the critical angle at which the forced wetting transition occurs. One can thus imagine that a Cox-Voinov approach could coexist with a first-order transition because of this effect. In another direction, one can question the idea of identifying the observed shape transitions with those predicted by mobility laws. The existence of a given shape (rounded, corner, etc.) is a global problem involving both equilibrium equations of the free surface and boundary

conditions at the contact line (see Dussan V. 1985; Ben Amar *et al.* 2003). Perhaps considering the whole global problem instead of the local contact line problem could shift the transition, too.

A third result that we have obtained is that, once the corner is formed (and sufficiently developed), the interface based on the two contact lines involved has a conical structure. This is in agreement with Stone's model of the corner (Stone *et al.* 2001; Limat & Stone 2004) but not with that by Ben Amar *et al.* (2001) who postulate a saddle-point structure of the interface. This is presumably linked to the previous point, i.e. the fact that the contact angle does not reach zero at the corner formation, which allows the formation of a cone. Note however that, except perhaps at the corner-to-cusp transition, the cone is never completely developed, its tip remaining rounded. This suggests considering Stone's model with caution, the completely developed conical structure imagined in these papers being only an idealization of the true structure. Now, although the corner is in fact rounded, the corner formation remains a well-defined transition if one looks carefully at the curves linking the sine of φ to the capillary number. After this transition, just as in Podgorski *et al.* (2001), $\sin \varphi$ follows a $1/Ca$ law, but, as we have shown, the prediction of the prefactor suggests giving up the initial idea of a vanishing contact angle on each of the two contact lines forming the corner. Instead of this, our data are consistent with a dynamic receding contact angle remaining always equal to the critical angle reached at the corner formation. This yields a law of the kind $\sin \varphi = (\theta_c^3 - \theta_c^3)/[9 \ln(b/a)Ca]$, suggested again by the solid lines in figure 18.

Our visualization techniques also allowed us to get information concerning a second angle ruling the conical structure of the interface, i.e. the cone angle Ω viewed from the side. At first sight, the measurements are in continuity with the dynamic receding contact angle θ_c measured on oval drops. More quantitatively, the data are also consistent with an estimate deduced from the Limat–Stone model (equation (5.8)). Its combination with the law ruling the φ selection (the equation recalled above) leads to a theoretical curve (solid line on the figure 18) that seems to describe reasonably well the data. A puzzling observation is however that this theoretical estimate should diverge at the oval-drop-to-corner transition, which somewhat contradicts the qualitative continuity mentioned above between θ_c and Ω . We believe that this new paradox has its solution in the rounded nature of the corner tip that remains to be taken into account in the model.

Finally, on the three graphs displayed in figure 18, it appears that the transition to cusped drops occurs for $\varphi \sim 45^\circ$, which corresponds to a value predicted by Ben Amar *et al.* (2001). It is therefore possible that the latter model becomes more relevant at high capillary numbers, around the cusp regime where the concave tip geometry could better corresponds to the saddle-point geometry of the model. It must also be emphasized that the curvature eventually tends towards infinity for a finite capillary number, close to this transition to cusps. This could suggest a possible way to deposit a microscopic line on a surface (see Cohen & Nagel 2002).

Many of our results, especially the fact that the tip curvature of the corner is always finite and progressively diverges at the cusp appearance, have been recently recovered by direct numerical simulations involving a disjoining pressure at the contact line (R. V. Roy, private communication). Also, even though Podgorski has already noticed that, as long as one speaks in terms of Bond number, changing the size of the drops does not change their speed and shape (Podgorski *et al.* 2001), it would probably be interesting to investigate the shape and motion of puddles (bigger drops flattened by gravity) sliding down a plane.

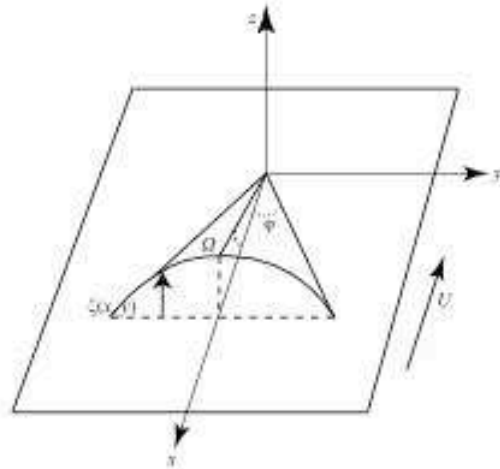


FIGURE 19. Diagram of the rear of a drop on a plate moving upwards at the velocity U such that the drop is in the corner regime. The tail is assumed to be a corner with the opening half-angles φ and Ω . ζ represents the height of the drop for a given x and y .

We would like to thank Howard Stone for comments and a critical reading of the manuscript. We are also indebted to Bruno Andreotti for advice on this experiment and to Emmanuelle Rio, Jacco Snoeijer and Valéry Roy for helpful discussions.

Appendix. A simple way to link the in-plane and out-of-plane angles of the cone

Let (x, y, z) be the axes defined on figure 19. The tail of the drop can be approximated to a parabola, an assumption supported by the views from the side of the drops. Therefore the height ζ of the drop can be related to x and y by

$$\zeta(x, y) \simeq \Omega x \left(1 - \frac{y^2}{x^2 \tan^2 \varphi} \right). \quad (\text{A } 1)$$

A relationship between the angles φ and Ω is given by a lubrication constraint. The balance of downwards and upwards liquid flow in the framework of the drop gives the following equation:

$$U \zeta \simeq - \frac{h^3}{3\eta} \frac{\partial P}{\partial x} \quad (\text{A } 2)$$

where the pressure P is close to $\gamma h_{yy} = 2\gamma\Omega/(x \tan^2 \varphi)$. Hence we obtain

$$\Omega^3 = \frac{1}{2} Ca \tan^2 \varphi \quad (\text{A } 3)$$

which is the same as equation (5.8), since $\tan \Omega \simeq \Omega$.

REFERENCES

- BEN AMAR, M., CUMMINGS, L. & POMEAU, Y. 2001 Singular points on a receding contact line. *C. R. Acad. Sci. Paris* **329**, II-b, 277–282.
- BEN AMAR, M., CUMMINGS, L. J. & POMEAU, Y. 2003 Transition of a moving contact line from smooth to angular. *Phys. Fluids* **15**, 2949–2960.
- BIKERMAN, J. J. 1950 Sliding of drops from surfaces of different roughness. *J. Colloid Sci.* **5**, 349–359.
- BLAKE, T. D. & RUSCHAK, K. J. 1979 A maximal speed of wetting. *Nature* **282**, 489–491.

Shape and motion of drops sliding down an inclined plane

315

- BLAKE, T. D. & RUSCHAK, K. J. 1997 Wetting: static and dynamic contact lines. In *Liquid Film Coating—Scientific Principles and their Applications* (ed. S. F. Kistler & P. M. Schweizer), pp. 63–97. Chapman & Hall.
- COHEN, I. & NAGEL, S. R. 2002 Scaling at a selective withdrawal transition through a tube suspended above the fluid surface. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 074501.
- COX, R. G. 1986 The dynamics of the spreading of liquids on a solid surface. *J. Fluid. Mech.* **168**, 169–194.
- DAERR, A., LE GRAND, N., LIMAT, L. & STONE, H. A. 2003 Drops sliding along an inclined plane: Experiments versus 3D hydrodynamic model. *Proc. 5th European Coating Symposium, Freiburg* (ed. P. M. Schweizer).
- DERJAGUIN, B. V. & LEVI, S. M. 1964 *Film Coating Theory*. Focal Press, London.
- DUSSAN, V. E. B. 1979 On the spreading of liquids on solid surfaces: static and dynamic contact lines. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **11**, 371–400.
- DUSSAN, V. E. B. 1985 On the ability of drops or bubbles to stick to non-horizontal surfaces of solids. Part 2: small drops or bubbles having contact angles of arbitrary size. *J. Fluid Mech.* **151**, 1–20.
- DUSSAN, V. E. B. & CHOW, R. T.-P. 1983 On the ability of drops or bubbles to stick to non-horizontal surfaces of solids. *J. Fluid Mech.* **137**, 1–29.
- EGGERS, J. 2004 Toward a description of contact line motion at higher capillary numbers. *Phys. Fluids* **16**, 3491–3494.
- EGGERS, J. 2005 Instability of a moving contact line. *J. Fluid. Mech.* (submitted).
- FURMIDGE, C. G. L. 1962 Studies at phase interfaces. I. The sliding of liquid drops on solid surfaces and a theory for spray retention. *J. Colloid Sci.* **17**, 309–324.
- DE GENNES, P.-G. 1986 Deposition of Langmuir-Blodgett layers. *Colloid Polymer Sci.* **264**, 463–465.
- DE GENNES, P.-G., HUA, X. & LEVINSON, P. 1990 Dynamics of wetting: local contact angles. *J. Fluid Mech.* **212**, 55–63.
- GOLESTANIAN, R. & RAPHAEL, E. 2001 Relaxation of a moving contact line and the Landau-Levich effect. *Eurphys. Lett.* **55**, 228–234.
- GOLESTANIAN, R. & RAPHAEL, E. 2003 Roughening transition in a moving contact line. *Phys. Rev. E* **67**, 031603.
- KIM, H.-Y., LEE, H.-J. & KANG, B.-H. 2002 Sliding of liquid drops down an inclined solid surface. *J. Colloid Sci.* **247**, 372–380.
- KISTLER, S. F. & SCHWEIZER, P. M. (Eds.) 1997 *Liquid Film Coating – Scientific Principles and their Technological Implications*. Chapman & Hall.
- LIMAT, L., PODGORSKI, T., FLESSELLES, J.-M., FERMIGIER, M., MOAL, S., STONE, H. A., WILSON, S. K. & ANDREOTTI, B. 2001 Shape of drops sliding down an inclined surface. *Proc. 4th European Coating Symposium, Bruxelles* (ed. J.-M. Buchlin & J. Anthoine).
- LIMAT, L. & STONE, H. A. 2004 Three-dimensional lubrication model of a contact line corner singularity. *Eurphys. Lett.* **65**, 365–371.
- PODGORSKI, T. 2000 Ruissellement en conditions de mouillage partiel. PhD thesis, Paris 6 University, Paris, France.
- PODGORSKI, T., FLESSELLES, J.-M. & LIMAT, L. 2001 Corners, cusps and pearls in running drops. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 036102–036105.
- POMEAU, Y. 2000 Représentation de la ligne de contact mobile dans les équations de la mécanique des fluides. *C. R. Acad. Sci. Paris* **328**, II-b, 411–416.
- POMEAU, Y. 2002 Recent progress in the moving contact line problem: a review. *C. R. Méc.* **330**, 207–222.
- RIO, E., DAERR, A., ANDREOTTI, B. & LIMAT, L. 2005 Boundary conditions in the vicinity of a dynamic contact line: Experimental investigation of viscous drops sliding down an inclined plane. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 024503.
- RUJTERS, M. J., BLAKE, T. D. & DE CONINCK, J. 1999 Dynamic wetting studied by molecular modeling simulations of droplet spreading. *Langmuir* **15**, 7836–7847.
- STONE, H. A., LIMAT, L., WILSON, S. K., FLESSELLES, J.-M. & PODGORSKI, T. 2001 Corner singularity of a contact line moving on a solid surface. *C. R. Physique* **3**, 103–110.
- VOINOV, O. V. 1976 Hydrodynamics of wetting. *Fluid Dyn.* **11**, 714–721.

G. Article « Self-similar flow and contact line geometry at the rear of cornered drops », *Phys. Fluids* (2005)

HTML ABSTRACT * LINKS

PHYSICS OF FLUIDS 17, 072101 (2005)

Self-similar flow and contact line geometry at the rear of cornered drops

Jacco H. Snoeijer, Emmanuelle Rio, Nolwenn Le Grand, and Laurent Limat

Laboratoire de Physique et Mécanique des Milieux Hétérogènes and Fédération de Recherche Matière et Systèmes Complexes [Unité Mixte de Recherche (UMR) Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS) 7636 and Fédération de Recherche (FR) Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS) 2438], ESPCI, 10 rue Vauquelin 75005, Paris, France

(Received 7 January 2005; accepted 13 May 2005; published online 21 June 2005)

Partially wetting drops sliding down an inclined plane develop a "corner singularity" at the rear, consisting of two dynamic contact lines that intersect. We analyze the three-dimensional flow in the vicinity of this singularity by exploring similarity solutions of the lubrication equations. These predict a self-similar structure of the velocity field, in which the fluid velocity does not depend on the distance to the corner tip; this is verified experimentally by particle image velocimetry. The paper then addresses the small-scale structure of the corner, at which the singularity is regularized by a nonzero radius of curvature R of the contact line. Deriving the lubrication equation up to the lowest order in $1/R$, we show that contact line curvature postpones the destabilization of receding contact lines to liquid deposition, and that $1/R$ increases dramatically close to the "pearling" instability. The general scenario is thus that sliding drops avoid a forced wetting transition by forming a corner of two inclined contact lines, which is regularized by a rounded section of rapidly decreasing size. © 2005 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.1946607]

I. INTRODUCTION

Wetting and dewetting phenomena are encountered in many everyday life situations, such as drops sliding down a window or meandering rivulets. However, the description of moving contact lines, separating wet from dry regions, remains controversial; in classical hydrodynamics the viscous stresses diverge at the contact line.^{1,2} This viscous flow near the contact line is driven by capillary forces and gives rise to extremely curved interfaces, even down to the microscopic molecular scale. To release the hydrodynamic singularity one has to include the microscopic physics near the contact line, for which various approaches have been proposed.³⁻¹² Wetting dynamics thus involves length scales ranging from a microscopic length up to the capillary length, and forms a challenge that is not only of fundamental interest; dynamic contact lines are crucial in many industrial applications such as coating and painting.¹³

A particularly intriguing phenomenon is that *receding* contact lines become unstable beyond a critical speed.¹⁴⁻²³ This "forced wetting transition" can be studied by withdrawing a solid plate with a velocity U_0 from a bath of partially wetting liquid; a liquid film is deposited above a critical value of the capillary number $Ca = \eta U_0 / \gamma$, where η and γ denote the viscosity and surface tension of the liquid. This instability exemplifies that the physics at the contact line has macroscopic consequences, since the critical Ca strongly depends on the contact angle at the microscopic scale.^{15,16} Even though close to the contact line the system is far from equilibrium, one usually makes the strong assumption of imposing the equilibrium contact angle. Another open question is what happens beyond the critical velocity. In particular, the contact line geometry often becomes truly three dimensional; Blake and Ruschak²⁰ observed contact lines inclined with respect to the horizontal—this reduces the normal velocity of

the contact line such that the wetting transition is avoided. A similar structure appears at the rear of sliding drops,^{23,24} which develops a sharp corner [Fig. 1(a)]. In all these experiments, the normal velocity of the inclined contact lines was found to stay precisely at the threshold of instability, which implies that the half opening angle, Φ , scales as $\sin \Phi \propto 1/Ca$ [Fig. 2(c)]. Note that in some cases receding contact lines can also develop a transverse instability, with a finite wavelength along the contact line, as observed, e.g., for liquid ridges on an inclined plane^{25,26} or dewetting of polymeric liquids.²⁷

In this paper we unravel the singular three-dimensional flow that occurs in "cornered" sliding drops, both theoretically and experimentally. The first part of the paper forms a full exposition and expansion of the self-similar hydrodynamic model of a sharp cone [Fig. 1(c)], which has been proposed in previous papers.^{28,29} In this approach the liquid thickness is described by a similarity function of space variables, which is a common strategy near surface singularities. Indeed, the corner is reminiscent of other hydrodynamic singularities, such as the pinching of a jet into droplets,³⁰ the selective withdrawal transition,³¹ or the formation of a cusp between two rotating immersed cylinders.³² For the first time, however, we investigate the self-similar velocity fields and provide a detailed comparison with experimental measurements using particle image velocimetry. Figures 1(b) and 1(d) show the experimental and theoretical flow fields, respectively, which display a very good agreement. Our measurements reveal that the structure of the velocity field does not depend on the distance to the corner tip, and confirm the predictions of the similarity solutions also quantitatively. Particular attention will be paid to the flow near the contact line, which turns out to be oriented perpendicularly to the contact line.³³

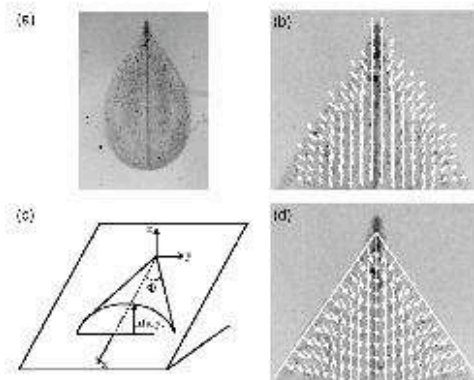


FIG. 1. (a) A silicon oil drop sliding down a glass plate coated with fluoropolymers develops a singularity at the rear above a critical velocity. (b) The corresponding velocity field in the laboratory frame visualized by tracer particles using particle image velocimetry. (c) and (d) Modeling the interface by a sharp cone, we quantitatively reproduce the experimental velocity field, except at the very tip of the singularity; this cusp-like structure does not seem to affect the velocity field away from the tip.

In the second part of the paper we investigate the transition from rounded drops to cornered drops in more detail. As can be seen from the photographs in Fig. 2, the corner at the rear of the drop is never infinitely sharp but has a nonzero radius of curvature R ; there is a small-scale cutoff at which the singularity is regularized. This is in conflict with the assumption of a sharp cone²⁹ as well as with the prediction of another recent model based upon a gravity-capillarity balance.³⁴ Despite this rounded edge there is still a well-defined corner angle Φ , following from the two nearly

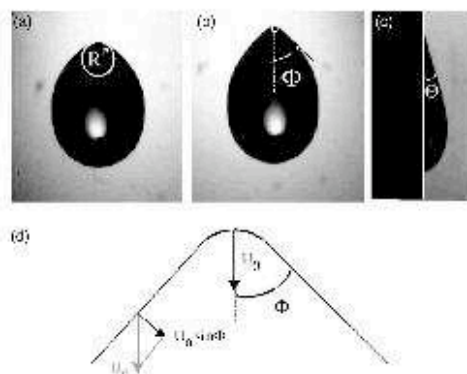


FIG. 2. (a) and (b) Increasing the sliding velocity U_0 , one encounters a transition from rounded to cornered drops that is characterized by a rapid decrease of the radius of curvature, R , of the rear. (c) Side view of the drop shown in (b), from which the apparent macroscopic contact angle θ is extracted. (d) The corner angle Φ is defined from the (nearly) straight inclined contact lines at the side of the drop; their normal velocity, $U_0 \sin \Phi$, is observed to remain constant Refs. 20, 23, and 24.

straight inclined contact lines away from the rear. Recent measurements show that R rapidly decreases as a function of drop velocity when Φ becomes smaller than 90° .³³

Such a finite radius of curvature, however, puts forward an intriguing paradox: while the normal velocity of the inclined contact lines $U_0 \sin \Phi$ is maintained at the maximum speed of dewetting, the velocity at the rear remains U_0 and thus exceeds this critical speed [Fig. 2(d)]. In other words, a straight contact line moving at such a high velocity would be forced to emit little droplets or to leave a film. To resolve this problem we develop a one-dimensional description for curved contact lines, which takes this curvature into account up to the lowest order. We show that this gives rise to additional capillary forces that are responsible for an increase of the maximum speed of dewetting with $1/R$. This lowest-order model provides a satisfactory agreement with experimental results.

The paper is organized as follows. In Sec. II we consider the lubrication equations in the limit of Stokes flow, from which we derive the general formalism leading to the similarity solutions. In Sec. III we discuss the predictions of the model concerning both the structure of the velocity field and that of the free surface. We then compare the obtained velocity fields to particle image velocimetry (PIV) measurements performed on silicon oil drops sliding on a glass plate coated with fluoropolymers in Sec. IV. In Sec. V we investigate the curved “core” of the singularity by developing a model of dynamic curved contact lines. We derive the lubrication equation in the limit of small contact line curvature and show that the additional curvature postpones the forced wetting transition. The paper closes with a discussion in Sec. VI.

II. HYDRODYNAMIC DESCRIPTION OF FLOW IN A CORNER GEOMETRY

A. Physics of three-dimensional corner flow

We will first investigate some general aspects of the three-dimensional flow occurring at the rear of a sliding drop exhibiting a corner. Indicating the location of the interface by $z = h(x, y)$, we consider drops of conical shape

$$h(x, y) \propto xH(y/x), \quad (1)$$

where the definitions of the axes are given in Fig. 1(c). We thus assume that cross sections at a given distance x are self-similar and depend only on the ratio y/x . Since in the experiments of Refs. 23 and 24 the drops flow at low-Reynolds numbers, the flow can be described by the Stokes equations,

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (2)$$

$$-\nabla p + \eta \Delta \mathbf{u} = \mathbf{0}, \quad (3)$$

where the three-dimensional velocity field \mathbf{u} and the pressure p are functions of the spatial coordinates x , y , and z . The height at the rear of the drop will be well below the capillary length $l_c = \sqrt{\gamma/\rho g}$, so we have omitted the gravitational forces in Eq. (3). In this regime the viscous flow is entirely driven by the capillary pressure at the free surface $p = \gamma \kappa$, where κ is the mean curvature of the interface. It is clear that

the capillary number $Ca = \eta U_0 / \gamma$ becomes the relevant dimensionless parameter describing the balance between viscous and capillary forces.

One can now recover the scaling behavior of the corner flow from a simple dimensional analysis. For the interface height described by Eq. (1), the only length scale is provided by x , the distance to the corner. The curvature κ , and hence the pressure, therefore have to scale as $1/x$. Following Eq. (3) we obtain $\Delta \mathbf{u} = O(1/x^2)$, so that the velocity field itself should only depend on the combinations y/x and z/x ; since all lengths are now rescaled by x , this yields a Laplacian $\sim 1/x^2$. One can indeed show that Eqs. (2) and (3) allow scaling solutions of the type

$$\begin{aligned} \mathbf{u}(x, y, z) &= \bar{\mathbf{u}}\left(\frac{y}{x}, \frac{z}{x}\right), \\ p(x, y, z) &= \frac{1}{x} \bar{p}\left(\frac{y}{x}, \frac{z}{x}\right). \end{aligned} \quad (4)$$

The relevance of these corner solutions will be illustrated in Sec. IV, where we present experimental measurements of the velocity fields. Indeed, we observe a large range of distances from the corner tip in which the velocity only depends on y/x , supporting the hypothesis of a self-similar corner profile. To make a more quantitative comparison for both the velocity fields as well as geometrical properties of the cone, we will explicitly resolve the flow equations within the lubrication limit for which $h/x \ll 1$.

B. Corner flows: Three-dimensional capillary forces

Before we continue the analysis, let us briefly discuss the driving mechanisms of the flow in the corner. In order to maintain a viscous flow one requires gradients of (capillary) pressure; the height of the drop at the rear is too small for gravity to play a role. Let us first consider the flow at the central axis of the drop, which is located at $y=0$. Due to symmetry, the local fluid velocity will be purely along the downward x direction. At this symmetry axis the interface of the cone is flat along x , but curved along the y direction. Since cross sections at fixed distance from the rear x do not change shape but are simply scaled by x , this "transverse" radius of curvature increases with x ; this results in a decreasing capillary pressure, and hence provides a driving force. So at the symmetry axis of the drop, the flow is entirely driven by gradients of the *transverse curvature*.

This is very different from the flow near a one-dimensional moving (straight) contact line, which is the common theoretical benchmark for contact line dynamics. In this case the flow is perpendicular to the contact line. In the direction perpendicular to the flow, the interface is flat, so there is no transverse curvature; the driving force is now provided by strong curvatures of the interface *along* the flow direction. While globally the flow in the corner geometry is more complicated, we will show that the physics near the contact line at $y/x = \tan \Phi$ reduces to that of a one-dimensional (1D) moving contact line.

C. Lubrication approximation

We will now briefly repeat the derivation of the equation for $H(y/x)$ in the well-known lubrication approximation, as presented by Limat and Stone.²⁹ In the limit of small angles it is well known that the velocity field becomes parallel to the inclined plane ($u_x \approx 0$) and has a simple Poiseuille-like parabolic vertical dependence. With the no-slip boundary condition at the bottom plate the viscous term in Eq. (3) becomes $-3\eta U/h^2$, where

$$\mathbf{U}(x, y) = \frac{1}{h} \int_0^h d_z \mathbf{u}(x, y, z). \quad (5)$$

Another consequence of $u_x \approx 0$ is that the pressure becomes independent of z and simply reads $p(x, y) = -\gamma \Delta h$, so that Eq. (3) reduces to

$$\nabla \Delta h - \frac{3\eta \mathbf{U}}{\gamma h^2} = \mathbf{0}, \quad (6)$$

where \mathbf{U} is the two-dimensional (2D) depth-averaged velocity in the frame attached to the inclined plane. Throughout the paper we always work in this laboratory frame. Note that \mathbf{U} represents a local fluid velocity, which, in general, will be different from the global drop velocity. This equation should be complemented with the depth-averaged mass continuity equation

$$\partial_t h + \nabla \cdot (h \mathbf{U}) = 0. \quad (7)$$

Drops sliding at constant velocity U_0 with constant shape can be described by an interface $h(x - U_0 t, y)$, so that upon elimination of \mathbf{U} , we obtain an equation for $h(x, y)$,

$$3Ca \partial_x h = \nabla \cdot [h^3 \nabla \Delta h], \quad (8)$$

where $Ca = \eta U_0 / \gamma$ is the capillary number. If we now insert the similarity ansatz

$$h(x, y) = Ca^{1/3} x H(\xi), \quad \text{with } \xi = \frac{y}{x}, \quad (9)$$

one obtains an equation for $H(\xi)$,

$$\begin{aligned} (1 + \xi^2)^2 (H^3 H_{\xi\xi\xi})_\xi + 3\xi(1 + \xi^2) (H^3 H_{\xi\xi})_\xi + 2\xi(1 \\ + \xi^2) H^3 H_{\xi\xi} + (1 + 3\xi^2) H^3 H_{\xi\xi} = 3(H - \xi H_\xi). \end{aligned} \quad (10)$$

This equation no longer depends explicitly on the capillary number Ca .

D. Boundary conditions

The corner profile $H(\xi)$ is governed by a fourth-order equation, so we have to specify four boundary conditions. Due to symmetry around $\xi=0$ we have to impose $H'(0) = H'''(0) = 0$, so one is left with two free parameters $H(0)$ and $H''(0)$. As an example, Fig. 3(a) displays numerical solutions of Eq. (10) that have $H(0)=3$, but with different initial curvatures $H''(0)$; a similar scenario is found for other $H(0)$. One sees that for small initial curvatures the solutions do not tend to zero, but, in fact, have a minimum height. This clearly does not correspond to the situation of a droplet with

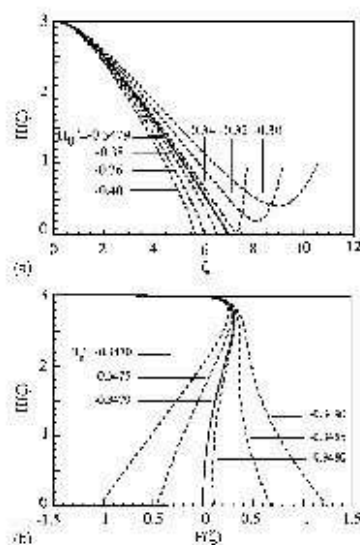


FIG. 3. (a) Solutions of Eq. (10) with $H(0) \approx 3$ for different initial curvatures $H''(0)$. The solid line represents the separatrix between solutions that have a minimum and solutions that tend to zero. (b) Only this separatrix obeys global mass conservation; the total integrated flux $F(\xi)$ should vanish as $H(\xi)$ becomes zero (Ref. 36).

a contact line; in fact, we show below that there is a nonzero flux of liquid from the “droplet” into the “reservoir” region to the right of the minimum.

For strongly negative $H''(0)$, on the other hand, the solutions do tend to zero and one encounters the usual contact line singularity as $H \rightarrow 0$. In general, however, these solutions violate global conservation of mass; in order to be a physically reasonable solution of a drop sliding at steady state, it is necessary that in the frame comoving with the drop, the x flux integrated over a cross section is zero.²⁹ This argument is expressed mathematically by calculating the x flux between $y = -\xi x$ and $y = \xi x$, which will be denoted by $F(\xi)$,

$$F(\xi) = \int_0^\xi d\xi' H^2 \left([\xi'(\xi'^2 + 1)H_{\xi\xi'}]c + \frac{3}{H^2} \right). \quad (11)$$

For a derivation of this integral we refer to Ref. 29. This flux should vanish when $H(\xi)$ tends to zero. In Fig. 3(b) we therefore show a parametric plot of $F(\xi)$ vs $H(\xi)$; only a single curve obeys the zero-flux condition when approaching the contact line. Hence for each $H(0)$ there is a unique $H''(0)$ that corresponds to a physical solution of the problem.

Let us now argue that this physical solution is precisely the *separatrix* between the solutions that tend to zero and the solutions that display a minimum in Fig. 3. We already mentioned above that whenever H has a minimum, the fluid velocity is directed from the drop region into the reservoir region. This can be understood directly from Fig. 3(a); the increase of H' when approaching the minimum yields a de-

crease of capillary pressure along ξ . This results in a nonzero “outward” flux hU_\perp . When approaching the separatrix, however, the height of the minimum will ultimately tend to zero and hence yield a vanishing flux $hU_\perp \rightarrow 0$.

In the regime to the left of the separatrix, on the other hand, one truly encounters the singularity. Close to the contact line at $\xi = \tan \Phi$, Eq. (10) will be dominated by the highest derivatives and reduces to $(1 + \xi_c^2)^2 (H^4 H_{\xi\xi\xi})_\xi = -3\xi_c H_\xi$. This equation can be integrated once,

$$(1 + \tan^2 \Phi)^2 H''' = -\frac{3 \tan \Phi}{H^2} + \frac{c}{H^3}, \quad (12)$$

where c is the integration constant. First, note that this equation has the same structure as the lubrication equation for a one-dimensional contact line, which reads $h''' = -3Ca/h^2$. Second, we show in Sec. III that the fluid velocity close to the contact line is proportional to $H^2 H''$, so that only the solution with $c=0$ corresponds to a finite velocity. For $c < 0$, the singularity gives rise to an unphysical source term at the contact line, which yields a nonzero global flux. For $c > 0$, on the other hand, the sign of the derivatives will change at $H = c/(3 \tan \Phi)$, which will later on give rise to a minimum. There is thus a single value of $H''(0)$ that corresponds to the physical solution, which verifies $c=0$.

To summarize, we have identified a one-parameter family of self-similar corner profiles. In order to make a comparison with experiments, it is convenient to simply parametrize the solutions by the corner angle $\Phi = \arctan \xi_c$, where ξ_c indicates the location where $H \rightarrow 0$. This illustrates the strength of our analysis; for each value of the corner angle the model provides a prediction without any adjustable parameters.²⁵

III. RESULTS FOR THE SELF-SIMILAR CORNER MODEL

A. Velocity profiles

Perhaps the most interesting feature of the corner model is that it predicts the nontrivial two-dimensional velocity field that occurs within the corner singularity. Using Eq. (6), this velocity field follows from the height profile as $\mathbf{U} = (\gamma/3\eta)h^2 \nabla \Delta h$. Numerical evaluations of this equation lead to the vector representation of flow fields displayed in Figs. 4(a) and 4(b), for two typical values of the opening angle Φ .

Upon a close inspection of these velocity fields one finds that, close to the contact line, the direction of fluid flow always becomes perpendicular to the contact line. To elucidate this intriguingly robust observation it is convenient to introduce cylindrical coordinates, $x = r \cos \varphi$, $y = r \sin \varphi$, and to consider the radial and azimuthal velocity components, U_r and U_φ , respectively. We use the symbol φ to indicate the angle within the corner, so that $-\Phi \leq \varphi \leq \Phi$. The velocity components U_r and U_φ are plotted next to the vector fields in Figs. 4(c) and 4(d). At the symmetry axis $\varphi=0$, the flow is always purely radial as expected, since $U_\varphi=0$. Note that at $\varphi=0$ the velocity U_r is always larger than U_0 .³⁷ At the contact line ($\varphi=\Phi$), on the other hand, the radial component vanishes and the flow becomes purely perpendicular to the contact line. This property of perpendicular flow near a mov-

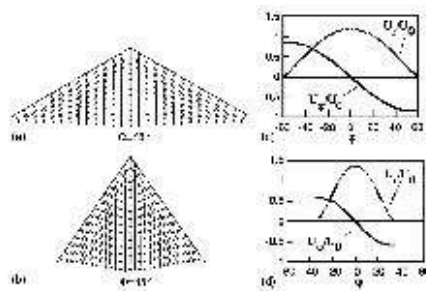


FIG. 4. On the left we show the velocity fields as predicted by the corner model for two opening angles, $\Phi=60^\circ$ and $\Phi=35^\circ$. The plots on the right represent the corresponding radial velocity U_r (dotted line) and the azimuthal velocity U_ϕ (solid line). Since $U_r=0$ at $\varphi=\Phi$, the velocity is locally perpendicular to the contact line.

ing contact line is not special for the corner model, but, in fact, it constitutes a fundamental property of moving contact lines;³³ a tangential velocity component would require diverging (or at least extremely large) gradients of the curvatures of the contact line itself. Hence, for macroscopically straight contact lines, i.e., contact lines with radius of curvature much larger than the molecular scale, the tangential velocity component has to vanish. We have been able to experimentally confirm this property of perpendicular flow near the contact line, both in the corner regime (Sec. IV) and for rounded drops.³³

In order to discuss the physics near the contact line in more detail, let us consider the explicit expressions of U_r and U_ϕ in terms of H .

$$\begin{aligned} \frac{U_r}{U_0} &= -\frac{1}{3} H^2 H'' \cos \varphi (1 + \tan^2 \varphi), \\ \frac{U_\phi}{U_0} &= \frac{1}{3} H^2 \cos \varphi (1 + \tan^2 \varphi) \\ &\quad \times [3H'' \tan \varphi + H''' (1 + \tan^2 \varphi)]. \end{aligned} \quad (13)$$

These velocity components are independent of the radial distance r . As we saw in Fig. 4, the radial velocity U_r vanishes at the contact line. According to Eq. (13) this implies that $H^2 H'' \rightarrow 0$ as $H \rightarrow 0$. At the same time U_ϕ , and hence $H^2 H''$, remains finite. This is consistent with Eq. (12); the physical solution for which $c=0$ has $H^2 H'' = -3 \tan \Phi / (1 + \tan^2 \Phi)^2$. Inserting this into the expression for U_ϕ , one finds that $U_\phi = -U_0 \sin \Phi$. Hence, we find that at the contact line, the local fluid velocity coincides with the normal velocity of the moving contact line. In this respect, the hydrodynamics close to the contact line in the corner regime is really the same as that of a 1D contact line with a reduced velocity $U_0 \sin \Phi$.

B. Geometrical properties

The corner model also provides a prediction for the geometrical properties of the interface. From Fig. 1(c) it can be seen that the cone has two characteristic angles that are easily measured experimentally; the angle in the (x,y) plane at

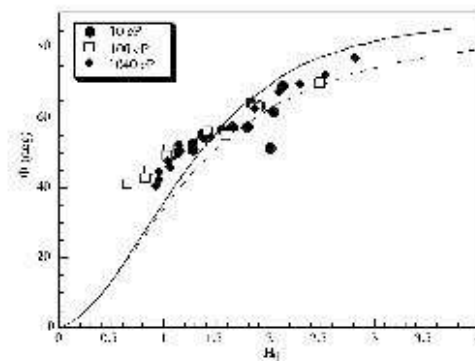


FIG. 5. Relationship between the corner angle Φ and $H_0 = \tan \theta / \text{Ca}^{1/3}$. The solid line is obtained by numerical solution of Eq. (10), which for small angles takes the asymptotic form of Eq. (14) (dashed line). The symbols are experimental data on drops of silicon oil for various viscosities, from Ref. 35.

$z=0$, which is twice the corner angle Φ , and the angle in the (x,z) plane at $y=0$. The second angle can be measured from a side view of the drop as the apparent contact angle θ [Fig. 2(c)].

The value of $\tan \theta$ can be obtained directly from Eq. (9) as $\tan \theta = H(0) \text{Ca}^{1/3}$. The model thus provides a relation between θ and Φ , since $H(0)$ is uniquely related to Φ . This is illustrated by the solid line in Fig. 5, showing Φ as a function of $H(0)$. The symbols appearing in the same figure have been deduced from experimental measurements of θ , via $H(0) = \tan \theta / \text{Ca}^{1/3}$, for a range of values of Φ . We thus find a good agreement between the prediction of the corner model, without any adjustable parameters, and experiments. Note that strictly speaking the lubrication approximation is only valid in the limit of small slopes, while in the experiments one encounters angles up to 25° . One could thus expect minor quantitative differences.

The solid line in Fig. 5 has been obtained numerically, but it is possible to obtain an approximate description for the relation between θ and Φ , in the limit $\Phi \ll 1$. Since at $\xi = \tan \Phi$ one always encounters the boundary condition $H = 0$, one can attempt a scaling solution of the form $H(\xi) = c \hat{H}(\xi / \tan \Phi)$; the argument of \hat{H} can take values between -1 and 1 . Since the radial fluid velocity, and hence $H^2 H''$, should remain finite, we find that $c^3 = \tan^2 \Phi$. Inserting this scaling form in Eq. (10), one derives that at the symmetry axis $\hat{H}'''(0) \propto \tan^2 \Phi$. The deviations from a simple parabola thus become increasingly small as $\Phi \rightarrow 0$.³⁸ Combining a parabolic form of $H(\xi)$ with the zero-flux condition $F(\xi_c) = 0$, [Eq. (11)], one obtains

$$\tan^3 \theta = \frac{35}{16} \text{Ca} \tan^2 \Phi, \quad \text{when } \Phi \ll 1, \quad (14)$$

which has been plotted as a dashed line in Fig. 5. Note that the prefactor of the parabolic approximation in Ref. 29 is slightly different, due to a planar approximation of the flow.

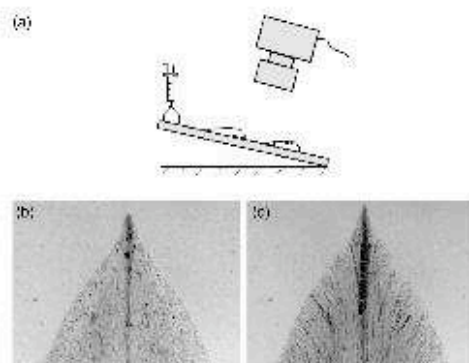


FIG. 6. (a) Schematic picture of the experiment: drops of silicon oil are deposited on an inclined plate covered with tracer particles. (b) The drops are filmed from above using a charge-coupled device (CCD) camera. (c) The trajectories of the tracers in the frame attached to the inclined plane obtained from superposition of successive images. Note that the trajectories start perpendicular to the contact line.

IV. PARTICLE IMAGE VELOCIMETRY MEASUREMENTS

In order to test the self-similar corner model in more detail we now present experimental measurements of the velocity profile at the rear of sliding drops, obtained by PIV. In Fig. 1 we have already seen that the experimental and theoretical flow fields are qualitatively very similar. In this section we provide a more quantitative comparison and indeed confirm the self-similarity of the velocity field in the experimentally accessible range.

A. Experimental setup

To visualize the velocity field at the rear of sliding drops, we performed experiments on partially wetting drops containing tracer particles. The experimental setup is sketched in Fig. 6. We consider millimeter-sized drops of silicon oil ($\eta = 50$ cP; $\gamma = 20$ mN m $^{-1}$), sliding down an inclined glass plate coated with fluoropolymers (FC725, sold by 3M). These conditions are the same as in Refs. 23 and 24, and provide a situation of partial wetting with a relatively small hysteresis of static contact angles (θ_{eq} between 45° and 52°). When sliding at a velocity $U_0 = 3$ mm/s ($Ca = 0.0075$), the drops exhibit a corner at the rear. Particles with diameters ranging from 1 to $10\ \mu\text{m}$ are homogeneously dispersed on the plate, so that a passing drop drags the particles downwards. This way, the majority of the tracers remain either at the free surface of the drop or at the solid-liquid interface.

The trajectories of the tracers in the frame attached to the inclined plane can now be visualized by superimposing images obtained at different times. We can already note from Fig. 6(c) that these trajectories leave the contact line perpendicularly, as was anticipated in Sec. III. A quantitative measurement of the local fluid velocity can now be obtained by particle image velocimetry, using the correlations between two successive pictures; the results presented in this paper

were obtained by averaging over 20 pictures. Such measurements on drops exhibiting a corner are rather difficult since the presence of the tracers perturbs the shape of the drop near the corner tip and induces pearling, i.e., emission of little droplets. We have therefore been limited to a measurement on a drop that exhibits a cusp-like structure at the rear (Fig. 6). As will be shown below, this does not seem to perturb the velocity field in the region away from the cusp.

The fact that not all tracers are localized at the free surface makes it difficult to access the absolute values of the velocities. The velocity field in the vertical z direction is Poiseuille-like, which has a maximum at the free surface and is zero at the plate. One effectively averages over tracers at different heights, but the precise distribution of particles cannot be controlled. Although this leads to an uncertainty for the absolute values, the direction of the velocity at a given horizontal position (x, y) will be independent of the height. Therefore, the angle Ψ defining the orientation of \mathbf{U} can be measured with a much greater precision and will be the central quantity of our study—the definition of Ψ is provided in Fig. 7(c). We furthermore obtain interesting results for the velocity components as well, albeit with more experimental noise.

B. Experimental results

The main prediction of the corner model is that the velocity field should be independent of the distance to the corner tip. To verify this self-similarity, we have plotted the experimental results with different symbols according to the distance to the tip: the slices drawn in Fig. 7(a) each have a width of $52\ \mu\text{m}$. Note that we have defined the origin $(x, y) = (0, 0)$ by extrapolating the straight contact lines away from the cusp. We first consider the orientation of the velocity field, Ψ , as a function of the position φ . The data shown in Fig. 7(c) indeed collapse onto a master curve that is independent of the distance from the corner tip. The velocity field in the corner regime is indeed self-similar, at least within the experimentally accessible range, which comprises at least half a decade (from 52 to $312\ \mu\text{m}$). As a further test of the corner model, we imposed the curve Ψ as a function of φ obtained from the model for $\Phi = 35^\circ$ (solid line). Given the fact that there are no adjustable parameters, this curve is in very good agreement with the experimental data; small differences could be due to the assumption of small slopes underlying the lubrication approximation.

In Fig. 8 we have plotted the velocity components U_x and U_y as a function of the position φ . These measurements are obtained from an average over particles at different heights, and therefore are much more scattered than the data for Ψ . To account for this averaging we have furthermore rescaled the data by an empirical factor of $1.15U_0$; if all particles would be localized at the free surface, one would require a factor of $3U_0/2$. Although the data are rather noisy, the results are consistent with the velocity fields obtained from the corner model (solid and dashed lines). In particular, it is clear that the radial velocity at the contact line vanishes, so that at the contact line the fluid velocity is truly perpendicular.

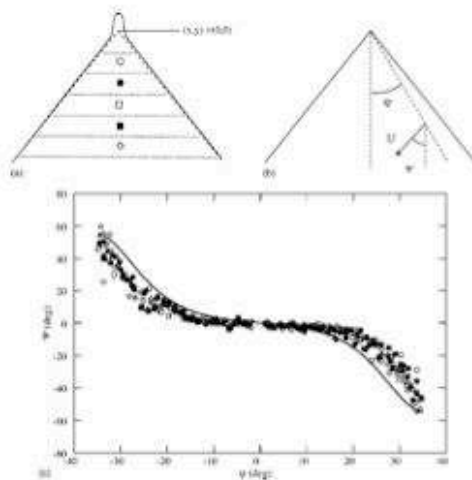


FIG. 7. (a) To test the self-similarity of the velocity, we have divided our data into slices of $52\text{-}\mu\text{m}$ width, at different distances from the corner tip. The position of the tip is defined by extrapolation of the contact lines away from the cusp. (b) Definition of Ψ , the orientation of the local fluid velocity U . (c) The experimental data for Ψ as a function of φ collapse on a single curve, due to the self-similarity of the velocity field. This master curve is in good agreement with the prediction of the corner model.

V. REAR OF THE DROP: A MODEL FOR CURVED CONTACT LINES

In Sec. IV B we have seen that the self-similar conical model provides a very good description of the flow within the corner. To be precise, it agrees with the experimental data in the regime where the contact lines on both sides of the symmetry axis are nearly straight. However, the contact line at the rear of the drop never forms an infinitely sharp corner, but was found to have a well-defined radius of curvature R (see Fig. 2). The experimental data of Ref. 35 have been

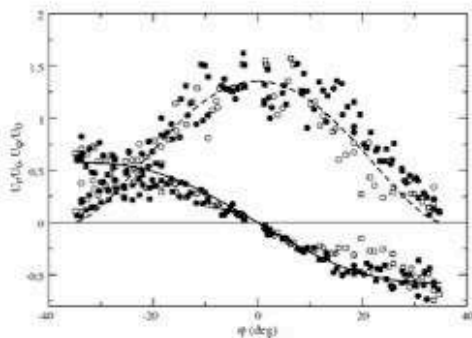


FIG. 8. Velocity components U_x and U_y obtained experimentally at different distances from the corner tip (symbols), compared to the theoretical model (dashed and solid lines, respectively). The radial velocity vanishes at the contact line, indicating a locally perpendicular fluid velocity.

reproduced in Fig. 9; while the contact line curvature remains almost constant at low Ca , one observes a dramatic increase of $1/R$ when the singularity is formed at the rear. A similar curve is obtained for the contact angle θ , which has been measured at a macroscopic scale. It is well known that this macroscopic angle decreases for increasing Ca , and the experimental results in Fig. 10 clearly show that the transition to the corner occurs at a nonzero angle.

These observations provoke two fundamental questions. First, it is found experimentally that the corner angle adjusts itself such that the normal velocity, $Ca \sin \Phi$, remains at the maximum speed of dewetting Ca_c (Refs. 20 and 24) (see Fig. 2). The contact lines away from the rear are thus inclined with respect to the horizontal in order to avoid entrainment. At the rear, however, the local velocity of the contact line *does* exceed this maximum speed Ca_c , but still the drop does not leave a film or little drops. A first problem is thus to understand why curved contact lines can avoid entrainment, even above Ca_c . A second intriguing observation is that the length scale R at which the corner singularity is regularized ($\approx 100\text{ }\mu\text{m}$) is neither the capillary length nor the microscopic molecular length; what determines the length scale of R ?

To address these questions we will develop a description of *curved moving contact lines*, in which the transverse curvature effects are taken into account up to the lowest order. We indeed find that the transition to entrainment is postponed by curving the contact line, and our results are consistent with experiments.

A. 1D lubrication equation for curved contact lines

Let us consider the effect of contact line curvature right at the symmetry axis of the drop. The governing lubrication equation becomes

$$\frac{\partial}{\partial x} (\partial_{xx} h + \partial_{yy} h) \Big|_{y=0} = \frac{3\eta U_x}{\gamma R^2}, \quad (15)$$

which, in fact, is the x component of Eq. (6) at $y=0$. The x component of the velocity, U_x , is equal to the global speed U_0 at the rear of the drop, while in the self-similar corner regime it is slightly larger than U_0 (see Fig. 4). In order to keep the discussion transparent, however, we simply take $U_x = U_0$ to be constant throughout the analysis—in the Appendix we demonstrate that this hardly affects our results.

For a straight contact line one trivially has $\partial_{yy} h = 0$, so that the problem becomes purely one dimensional, in the sense that there is only a dependence on x . For curved contact lines, however, this transverse curvature term gives a nonzero contribution and starts to play an important role when increasing $1/R$. In the Appendix we derive that $\partial_{yy} h = -h/(\lambda R)$ up to the lowest order in $1/R$, so that one still has a closed one-dimensional description of the problem. This lowest-order contribution of the contact line curvature can be interpreted as a parabolic approximation of the cross section at a given distance from the rear x , but it is possible to show more rigorously that

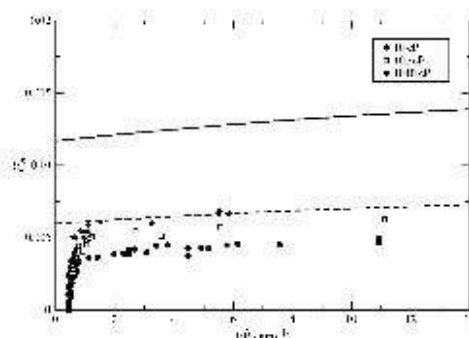


FIG. 9. The symbols are experimental data of contact line curvature $1/\bar{R}$ vs \bar{Ca} on drops of silicon oil.³⁵ ($\bar{Ca} = Ca/\tan^3 \theta_{eq}$, $\bar{R} = R \tan \theta_{eq}$). The curvature suddenly increases dramatically when approaching a critical \bar{Ca} . The solid line represents the theoretical prediction for the maximum capillary number from Eq. (17). \bar{Ca}_c can only increase by dramatically increasing $1/\bar{R}$. The numerical values of \bar{Ca}_c are not well predicted by the solid line, but a quantitative agreement can be obtained by slightly modifying the microscopic boundary condition (dashed line, see text).

$$\partial_{yy} h|_{y=0} = \frac{1}{\lambda R} \left(\frac{h}{x} - \partial_x h \right) + \mathcal{O}\left(\frac{1}{R^2}\right). \quad (16)$$

The higher-order terms originate from deviations from the parabolic shape, and can only be computed from a complete analysis incorporating the y dependence.

After rescaling the x direction with respect to the equilibrium contact angle, $\bar{x} = x \tan \theta_{eq}$, we thus find the following one-dimensional equation for curved contact lines:

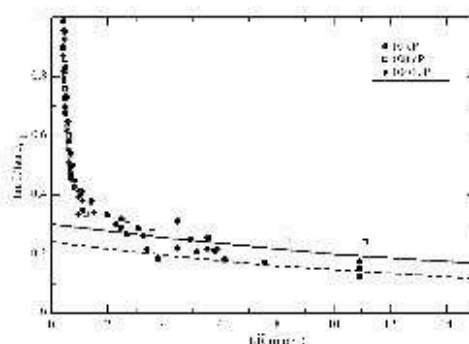


FIG. 10. The symbols are experimental data of contact line curvature $1/\bar{R}$ vs microscopic contact angle θ (Ref. 36). The solid line represents the minimum contact angle from Eq. (17); the contact angle can only continue to decrease by dramatically increasing $1/\bar{R}$. The dashed line was obtained with a slightly modified microscopic boundary condition (see text).

$$h'' + \frac{1}{\bar{R}\bar{x}} \left(\frac{h}{x} - h' \right) = \frac{3\bar{Ca}}{h^3}, \quad (17)$$

where $\bar{Ca} = Ca/\tan^3 \theta_{eq}$ and $\bar{R} = R \tan \theta_{eq}$. Since h and \bar{x} are of the same order, it is clear that the curvature term will start to play a role when \bar{R} and h become of the same order of magnitude. At small heights, i.e., $h \ll \bar{R}$, the curvature term will thus be small compared to the viscous term and the physics reduces to that of a straight contact line. For experimental measurements performed at a macroscopic scale $h = L$, the relevant dimensionless parameter will thus be L/\bar{R} .

Before we continue the analysis, let us try to understand qualitatively how the extra curvature term affects the hydrodynamics of curved contact lines. For receding contact lines, the slope of the interface decreases when increasing the height of the drop, i.e., $\theta_{macro} < \theta_{micro}$. Therefore, the local slope h' will always be smaller than h/\bar{x} so that the $1/\bar{R}$ term in Eq. (17) gives a positive contribution to the capillary forces. In the opposite case of $\theta_{macro} > \theta_{micro}$ this contribution becomes negative. We thus anticipate that contact line curvature provides an additional capillary driving mechanism in the case of receding contact lines, which helps to postpone the forced wetting transition. For advancing contact lines, on the other hand, it behaves as an additional source of dissipation.

B. Boundary conditions

A hydrodynamic description of moving contact lines raises the fundamental difficulty of the singularity as $h \rightarrow 0$, due to the divergence of the viscous forces. This singularity should be resolved on a microscopic, molecular length scale l , for example, by introducing slip boundary conditions.^{15,16} In the spirit of Voinov we assume that, apart from viscosity, there are no additional microscopic dissipation mechanisms, so one can impose the equilibrium contact angle θ_{eq} at this microscopic scale l . It was furthermore shown by Eggers that the macroscopic physics is only weakly dependent on the precise slip law, so we are allowed to boldly cut the solutions at $h=l$.^{16,39} In rescaled coordinates we thus encounter $h'=1$ at $h=l$ at $x_0=l$ ($x=0$ corresponds to the position of the contact line). At the end of this section we come back to the validity of these two boundary conditions. Depending on the chemical composition of the fluid, this microscopic length should range from nanometers to several tens of nanometers, and we therefore take $l=10^{-8}$ m.^{23,24}

To close the problem we should provide a third boundary condition, which in general depends on the global properties of the droplet. Our description up to the lowest order in the curvature is only valid in the vicinity of the contact line, and hence, we cannot rigorously match the solutions of Eq. (17) to the global behavior of the drop. However, it was recently demonstrated that the critical capillary number for the problem of a plate withdrawn from a bath only weakly depends on the global geometry;¹⁶ the explicit dependence on the inclination angle of the plate shows up as a logarithmic factor. This allows us to perform the following semi-quantitative analysis. The solutions of Eq. (17) should cross-

over to the corner solutions, which have $\partial_n h = 0$ at a macroscopic scale L . In order for the solutions to have sufficient overlap, we therefore take $h' = 0$ at $h = L$ as the third boundary condition for Eq. (17). Such an *ad hoc* boundary condition indeed provides a reasonable estimate for \bar{Ca}_c ; for straight contact lines we numerically obtain that \bar{Ca}_c scales roughly as $1/\ln(L/l)$, and the precise values lie within 30% (Ref. 40) of the exact results of Ref. 16. Although our approach is not rigorous, we are confident that it provides a semi-quantitative description of the dynamics of curved contact lines.

Since in typical experiments the maximum height of the drops is less than a millimeter, we take $L = 10^{-4}$ m, so that $L/l = 10^3$. However, let us make the following important remark. *A priori*, it is not clear at what scale the curved contact line solutions should be matched to the self-similar corner solutions. This matching should occur well below the capillary length (≈ 1 mm), but in principle it could be much smaller than the experimental scale L . If this were the case, however, one should even find smaller values of R than those presented in our paper. In this respect, our analysis possibly underestimates the curvature of the contact line at the rear. We come back to this point in the Discussion at the end of the paper.

C. The entrainment threshold for finite R

To investigate how the extra curvature term affects the dynamics of receding contact lines, we have numerically evaluated Eq. (17) for different values of $1/\bar{R}$, with the parameters specified in the preceding paragraph. We found that beyond a certain value of the capillary number \bar{Ca}_c , there no longer exist solutions consistent with the imposed boundary conditions. This corresponds to the maximum speed of dewetting or the entrainment threshold.^{14–16} Interestingly, this \bar{Ca}_c depends on the curvature of the contact line; the solid line in Fig. 9 shows that \bar{Ca}_c increases with $1/\bar{R}$. This implies that the drop can avoid entrainment by increasing the contact line curvature at the rear.

This entrainment threshold occurs at a nonzero macroscopic slope,¹⁴ i.e., $h' \neq 0$ at $h = L$. In Fig. 10 we plot this critical slope, $\tan \theta_c$, as a function of $1/\bar{R}$ (solid line); the critical contact angle decreases as a function of the contact line curvature. This is in good agreement with the symbols representing experimental measurements of the macroscopic contact angle as a function of $1/\bar{R}$. This angle is first observed to decrease continuously, due to an increase of \bar{Ca} , without significant changes of the contact line curvature. Approaching the critical speed of dewetting, however, a further decrease of the contact angle has to be accompanied by a dramatic increase of the contact line curvatures. This increase is well predicted by Eq. (17). The experimental data do not extend below $R \approx 80 \mu\text{m}$, around which a cusp is formed at the rear of the drop and small droplets are emitted.

Analyzing the experimental data in terms of the capillary number, however, we find a striking quantitative discrepancy with the prediction of our model; the experimental data shown in Fig. 9 follow a similar trend as the theoretical

curve (solid line) but the numerical values of \bar{Ca}_c differ by about a factor of 2.⁴¹ Let us now make the following observation. Within the lubrication theory, the numerical value of the critical capillary number is very sensitive to the microscopic boundary condition on $\partial_l h|_l$, since $\bar{Ca}_c = \bar{Ca}_c(\partial_l h|_l)^{1/3}$. That is, if the slope of the interface at a microscopic scale would be about 20% smaller than the equilibrium contact angle θ_{eq} , one would already lower the critical capillary number by a factor of 2. This is illustrated by the dashed curve in Fig. 9, which has been obtained from the microscopic boundary condition $h' = 0.8$ (instead of $h' = 1$). Given the fact that overall, the theoretical predictions of the lubrication theory work very well, the experimental data suggest that at high Ca , the microscopic contact angle starts to deviate significantly from θ_{eq} .

D. Qualitative features from energy balance

As was shown by de Gennes,¹⁴ one can obtain a simplified, but very insightful description of dynamic contact lines from a global energy balance. Formally one would obtain a depth-averaged energy balance by multiplying both sides of Eq. (17) by hU_0 , and integrating once from a microscopic to a macroscopic position x . By estimating the contribution of each of the terms, one already captures qualitative features of the physics. Note that different approaches or approximations can lead to slightly different laws for the macroscopic contact angle as a function of Ca .^{3,4,6} Our aim here is not to fine-tune any of these models, but just to illustrate how contact line curvature might affect the dynamics.

One can estimate the integrated viscous dissipation by approximating the geometry near the contact line by a wedge with a macroscopic contact angle θ ; this yields $3\eta U_0^2 \ln(L/l)/\tan \theta$. Without the $1/\bar{R}$ term, this dissipation should be compensated by the unbalanced Young force $\gamma U_0(\cos \theta - \cos \theta_{eq})$, resulting into de Gennes' law for the macroscopic or dynamic contact angle θ .¹⁴ Even though this argument ignores the strong curvatures of the interface it does capture the entrainment transition at a nonzero contact angle, as observed for the sliding drops (Fig. 10). Note, however, that the predicted angle, $\theta_c = \theta_{eq}/\sqrt{3}$, is somewhat larger than those observed experimentally.

Let us now estimate the contribution of the additional term in Eq. (17). In Sec. V A we argued that this term provides additional capillary forces for receding contact lines ($\theta < \theta_{eq}$), while it favors dissipation for advancing contact lines ($\theta > \theta_{eq}$). At low speeds we can therefore expect the integrated contribution to scale as $(\theta_{eq} - \theta)/R$, so that we obtain a modified energy balance,

$$\left(\theta_{eq}^2 - \theta^2 + \alpha \frac{L}{R} (\theta_{eq} - \theta) \right) = \frac{6Ca \ln(L/l)}{\theta}, \quad (18)$$

where we have developed $\cos \theta$ for small θ . The factor L emerges from the integration from l to L , and α is expected to be of order unity.

Although the linear correction term in Eq. (18) can only be justified in the limit of small Ca , it is interesting to see that Eq. (18) indeed predicts a shift of the entrainment

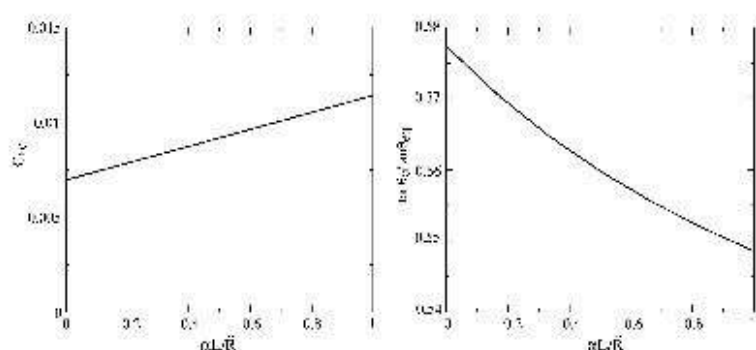


FIG. 11. The critical capillary number, Ca_c , and critical slope, $\tan \theta_c / \tan \theta_{eq}$, as a function of the dimensionless contact line curvature $\alpha L/R$ obtained from Eq. (18). These features are in qualitative agreement with full simulations of Eq. (17).

threshold due to curvature of the contact line. This is illustrated in Fig. 11 where we plot Ca_c and the minimum angle θ_c as a function of the curvature, computed from Eq. (18). This qualitatively reproduces the features of the full numerical integration in Figs. 9 and 10.

VI. DISCUSSION

In this paper we have analyzed the three-dimensional flow and morphology of the corner singularity at the rear of sliding drops. We have provided a detailed comparison between theoretical predictions from similarity solutions of the lubrication equations, and direct experimental measurements. The relevance of the similarity solutions is emphasized by the excellent agreement for the nontrivial velocity field at the rear of the drop. A striking feature of this flow is that the fluid velocity at the contact line is always oriented perpendicularly to the contact line, while its absolute value coincides with the normal velocity of the contact line.

We furthermore analyzed the transition from rounded to cornered drops, by developing a model for curved contact lines. We found that the forced wetting transition can be postponed by increasing the curvature of the contact line at the rear of the drop. This strongly curved part serves as a small-scale regularization of the corner singularity, and its typical length scale R decreases rapidly when Ca approaches the transition. The general scenario is thus that the drop can avoid the forced wetting transition by simultaneously developing a strongly curved contact line at the rear of the drop, and the straight inclined contact lines at the sides. This morphology mobilizes additional capillary driving forces due to interface curvatures perpendicular to the direction of the flow.

The results presented in this paper strongly suggest that the structure and the flow in the corner are entirely governed by a balance between viscous and capillary forces. This contrasts the approach by Ben Amar, Cummings, and Pomeau,³⁴ in which all viscous forces are assumed to be effectively localized at the contact line so that the shape of the free surface follows from a balance between gravity and surface tension. While this assumption allows us to resolve the glo-

bal shape of the drop, it cannot be expected to describe structures of scales below the capillary length. For example, the existence of a purely conical shape [Fig. 2(c)] crucially requires viscosity; a balance between gravity and surface tension would yield a strongly convex side view.³⁴ To further quantify this we have estimated the distance from the contact line at which gravity and viscous forces attain the same magnitude, directly from our experimental data.⁴² Figure 12 clearly shows that viscosity dominates over gravity in basically the entire corner region.

Let us also mention that there exist fully two-dimensional numerical simulations using a disjoining pressure with a precursor film, in which cusping droplets have been observed.^{22,43} At present, however, such simulations can only incorporate a limited spatial resolution, i.e., $l_{\text{macro}}/l_y \sim 10^{-2}$, and appear to miss the experimentally observed evolution of the corner singularity as a function of Ca . In this paper we avoid this numerical problem by residing to one-dimensional descriptions of the two-dimensional flow, which allows resolving the physically relevant length scales.

The present work provokes a number of questions. The critical values of Ca predicted by the curved contact line model differ by about a factor of 2 from the experimental values. A similar disagreement was encountered by Hocking for the problem of a plate withdrawn from a bath.¹⁵ We suggest that this may provide fundamental information on the microscopic boundary conditions; one recovers the experimental results when taking a microscopic contact angle slightly below the equilibrium angle θ_{eq} . It would be interesting to see whether this could be captured by including a microscopic disjoining potential.^{7,8,21,22,44} Such an approach allows us to explicitly incorporate microscopic physics, from which effective microscopic boundary conditions emerge without additional assumptions. Results by Thiele, Velarde, Neuffer, Bestehorn, and Pomeau²¹ and Thiele, Neuffer, Bestehorn, Pomeau, and Velarde²² in which contact angles are observed to decrease with velocity even at very small scales, appear to be consistent with our findings. Another reason for the discrepancy may be that surface roughness, which has not been taken into account here, can lower the critical

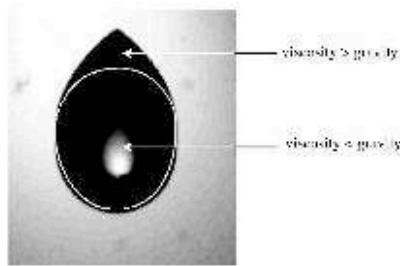


FIG. 12. One can separate the viscosity-dominated regime from the gravity-dominated regime by equating the corresponding terms in the full lubrication equation (Ref. 42). It is clear that viscous effects are dominant in the entire corner regime, and not only close to the contact line. The remarkable asymmetry between the front and the back of the drop has two origins: (i) $\partial h / \partial x > 0$ at the rear and therefore reduces the effect of gravity, while at the front $\partial h / \partial x < 0$, so that gravity is enhanced (Ref. 42). (ii) the macroscopic contact angles at the rear are much smaller than those at the front, resulting into larger distances to attain the cross-over height.

speed.¹⁰ However, the values of the critical contact angle predicted by this theory are much larger than those observed experimentally.

Finally, we have not addressed the selection of the corner angle Φ as a function of the capillary number, which requires a proper matching of the singular behavior near the contact line to the global corner geometry. The difficulty is that a truly self-similar interface has no intrinsic length scale, and is incompatible with the usual wetting boundary conditions imposed at a microscopic scale. We speculate that the finite curvature at the rear effectively provides a length scale; only when R becomes orders of magnitudes smaller than the capillary length l_y , which forms the macroscopic cutoff, the corner can no longer obey physical wetting boundary conditions. This would explain why the formation of a cusp emitting little drops coincides with $R/l_y \rightarrow 0$.³⁵

ACKNOWLEDGMENTS

We are grateful to Howard Stone, Adrian Daerr, and Bruno Andreotti for many valuable discussions. This work was supported by a Marie Curie Intra-European Fellowship (MEIF-CT2003-502006) within the sixth European Community Framework Programme.

APPENDIX: CURVED CONTACT LINES

In this appendix we derive the lowest-order term of the transverse capillary pressure $\partial_y h$ for a moving contact line that has a finite radius of curvature R . We then show that gradients of the velocity $U_y(x)$ complicates the analysis presented in Sec. V, but that it has little impact on the results.

Since locally, the contact line can be described by a parabola $x = y^2 / (2R)$, the relevant dimensionless variable in this problem will be $\xi = y / \sqrt{2Rx}$, which can range from -1 to 1 . Without loss of generality, we parametrize the interface as

$$h(x, y) = f(x) \left[1 - \xi^2 \right] \left[1 + \sum_{n=1}^{\infty} a_{2n}(x) \xi^{2n} \right]. \quad (\text{A1})$$

The function $f(x)$ is simply the height profile at the symmetry axis of the drop, i.e., $h(x, y=0)$, while we write the cross section of the interface in a polynomial expansion. We have conveniently factored out the term that vanishes at the contact line. Note that the functions $f(x)$ and $a(x)$ implicitly depend on R ; eventually, the goal is to determine how the center profile $f(x)$ is affected by a finite R .

In Eq. (15) we have to evaluate $\partial_{xy} h$ at the symmetry axis $y=0$. Using the parametrization introduced above this becomes

$$\partial_{xy} h|_{y=0} = -\frac{1}{R} \left[(1 - a_2) \partial_x \left(\frac{f}{x} \right) - a_2' \frac{f}{x} \right], \quad (\text{A2})$$

and thus requires explicit knowledge of $a_2(x)$. Let us now make the following crucial observation. In order to avoid a singularity of the slope of the interface when going around the drop, it turns out that all $a(x)$ should vanish as $x \rightarrow 0$. For example, the contact angle θ at the rear of the drop simply follows from $\tan \theta = f'$, while elsewhere on the contact line

$$\tan \theta = |\nabla h|_{\xi=\pm 1} = \frac{f(x)}{x} \left[1 + \sum_{n=1}^{\infty} a_{2n}(x) \right] \sqrt{1 + \frac{2x}{R}}. \quad (\text{A3})$$

In order that θ varies continuously along the contact line, we thus require that $\sum a_{2n}(x)$ vanishes in the limit $x \rightarrow 0$. Repeating the same argument for contours at arbitrary fixed values $|\xi| < 1$, one finds that, in fact, all $a_{2n}(x)$ vanish individually at $x=0$.

We can thus write $a_2(x) \sim a_2' x$, which should be of order $\mathcal{O}(x/R)$ since R provides the only length scale for a_2' . This results in the expression of Eq. (16),

$$\partial_{xy} \partial_{xy} h|_{y=0} = \frac{1}{xR} \left(\frac{f}{x} - f' \right) + \mathcal{O} \left(\frac{1}{R^2} \right). \quad (\text{A4})$$

Let us now address the approximation that $U_y(x) = U_0$ that was made in Sec. V. From the continuity equation it is clear that this approximation disregards the velocity component U_x , although U_y vanishes at the symmetry axis; the gradient $\partial_y U_y$ can be nonzero. To properly take these gradients into account one should thus incorporate continuity and start from Eq. (8). Using the parametrization of Eq. (A1) and keeping only the lowest order in $1/R$, we then obtain a fourth-order equation,

$$\partial_x [f^3 f'''] = 3Ca f'' + \frac{1}{R} \partial_x \left[f^3 \partial_x \left(\frac{f}{x} \right) \right] + \frac{1}{R} f^2 \partial_{xx} \left(\frac{f}{x} \right). \quad (\text{A5})$$

Without the last term on the right-hand side, one could immediately integrate this equation to Eq. (17). To investigate the effect of the extra term, we have numerically integrated this fourth-order equation; this yields results that are very similar to those presented in Sec. V. We have therefore preferred to discuss the physics of rounded drops using the simplified third-order equation instead of Eq. (A5).

- ¹C. Huh and L. E. Shrivver, "Hydrodynamic model of steady movement of a solid/liquid contact line," *J. Colloid Interface Sci.* **35**, 85 (1971).
- ²E. B. Dussan, V. Davis, and S. H. Davis, "On the motion of a fluid-fluid interface along a solid surface," *J. Fluid Mech.* **65**, 71 (1974).
- ³O. V. Voinov, "Hydrodynamics of wetting," *Fluid Dyn.* **11**, 714 (1976).
- ⁴R. G. Cox, "The dynamics of the spreading of liquids on a solid surface," *J. Fluid Mech.* **168**, 169 (1986).
- ⁵L. M. Hocking, "The spreading of a thin drop by gravity and capillarity," *Q. J. Mech. Appl. Math.* **36**, 55 (1983).
- ⁶T. D. Blake, J. De Coninck, and U. D'Ottavio, "Models of wetting: Immiscible lattice Boltzmann automata versus molecular kinetic theory," *Langmuir* **11**, 4588 (1995).
- ⁷L. M. Pismen and Y. Pomeau, "Disjoining potential and spreading of thin liquid layers in the diffuse-interface model coupled to hydrodynamics," *Phys. Rev. E* **62**, 2480 (2000).
- ⁸L. W. Schwartz, R. V. Roy, R. R. Eley, and S. Petrash, "Dewetting patterns in a drying liquid film," *J. Colloid Interface Sci.* **234**, 363 (2001).
- ⁹U. Thiele, K. John, and M. Birr, "Dynamical model for chemically driven running droplets," *Phys. Rev. Lett.* **93**, 027802 (2004).
- ¹⁰P. Seppacher, "A numerical study of a moving contact line in Cahn-Hilliard theory," *Int. J. Eng. Sci.* **34**, 977 (1996).
- ¹¹Y. D. Shikhmurzaev, "Moving contact lines in liquid/liquid/solid systems," *J. Fluid Mech.* **334**, 211 (1997).
- ¹²Y. Pomeau, "Recent progress in the moving contact line problem: A review," *C. R. Mec.* **330**, 207 (2002).
- ¹³S. F. Kistler and P. Schweizer, *Liquid Film Coating—Scientific Principles and Their Technological Implications* (Kluwer, Dordrecht, 1997).
- ¹⁴P. G. de Gennes, "Deposition of Langmuir-Blodgett layers," *Colloid Polym. Sci.* **264**, 463 (1986).
- ¹⁵L. M. Hocking, "Meniscus draw-up and draining," *Eur. J. Appl. Math.* **12**, 195 (2001).
- ¹⁶J. Eggers, "Hydrodynamic theory of forced dewetting," *Phys. Rev. Lett.* **93**, 094502 (2004).
- ¹⁷D. Quéré, "On the minimal velocity of forced spreading in partial wetting," *C. R. Acad. Sci., Ser. II: Mec., Phys., Chim., Sci. Terre Univers.* **313**, 313 (1991).
- ¹⁸L. D. Landau and B. V. Levich, "Dragging of a liquid by a moving plate," *Acta Physicochim. URSS* **20**, 17, 42 (1942); B. V. Derjaguin, "On the thickness of the liquid film adhering to the walls of a vessel after emptying," *ibid.* **20**, 349 (1943).
- ¹⁹R. Golestanian and E. Raphael, "Relaxation of a moving contact line and the Landau-Levich effect," *Europhys. Lett.* **55**, 228 (2001).
- ²⁰T. D. Blake and K. J. Ruschak, "A maximum speed of wetting," *Nature (London)* **282**, 489 (1979).
- ²¹U. Thiele, M. G. Velarde, K. Neuffer, M. Bestehorn, and Y. Pomeau, "Sliding drops in the diffuse interface model coupled to hydrodynamics," *Phys. Rev. E* **64**, 061601 (2001).
- ²²U. Thiele, K. Neuffer, M. Bestehorn, Y. Pomeau, and M. G. Velarde, "Sliding drops on an inclined plane," *Colloids Surf., A* **206**, 87 (2002).
- ²³T. Podgorski, J. M. Flesselles, and L. Limat, "Corners, cusps and pearls in running drops," *Phys. Rev. Lett.* **87**, 036102 (2001).
- ²⁴A. Dierck, N. Le Gred, L. Limat, and H. A. Stone, "Drops sliding along an inclined plane: Experiments versus 3D hydrodynamical model," *Proceedings of the Fifth European Coating Symposium*, 17–19 September 2003, Polytype Converting, Fribourg, 2004, edited by P. M. Schweizer.
- ²⁵U. Thiele and E. Knobloch, "Front and back instability of a liquid film on a slightly inclined plate," *Phys. Fluids* **15**, 892 (2003).
- ²⁶A. G. Gonzalez, J. Diez, J. Gombu, R. Grafton, and L. Kondic, "Spreading of a thin two-dimensional strip of fluid on a vertical plane: Experiments and modeling," *Phys. Rev. E* **70**, 026309 (2004).
- ²⁷G. Reiter and A. Sharma, "Auto-optimization of dewetting rates by rim instabilities in slipping polymer films," *Phys. Rev. Lett.* **87**, 166103 (2001).
- ²⁸H. A. Stone, L. Limat, S. K. Wilson, J.-M. Flesselles, and T. Podgorski, "Corner singularity of a contact line moving on a solid surface," *C. R. Phys.* **3**, 163 (2002).
- ²⁹L. Limat and H. A. Stone, "Three-dimensional lubrication model of a contact line corner singularity," *Europhys. Lett.* **65**, 365 (2004).
- ³⁰X. D. Shi, M. P. Brenner, and S. R. Nagel, "A cascade structure in a drop falling from a faucet," *Science* **265**, 157 (1994); M. Brenner, J. R. Lister and H. A. Stone, "Pinching threads, singularities and the number 0.0304...", *Phys. Fluids* **8**, 2827 (1996); J. Eggers, "Nonlinear dynamics and breakup of free-surface flows," *Rev. Mod. Phys.* **69**, 865 (1997).
- ³¹I. Cohen and S. R. Nagel, "Scaling at a selective withdrawal transition through a tube suspended above the fluid surface," *Phys. Rev. Lett.* **88**, 074501 (2002); W.W. Zhang, "Viscous entrainment from a nozzle: Singular liquid spouts," *ibid.* **93**, 184502 (2004).
- ³²J. Eggers, "Air entrainment through free-surface cusps," *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4290 (2001); E. Lorenceau, F. Restagno, and D. Quéré, "Fracture of a viscous liquid," *ibid.* **90**, 184501 (2003).
- ³³E. Rio, A. Dierck, B. Andreotti, and L. Limat, "Boundary condition in the vicinity of a dynamic contact line," *Phys. Rev. Lett.* **94**, 024503 (2005).
- ³⁴M. Ben Amar, L. J. Cummings, and Y. Pomeau, "Transition of a moving contact line from smooth to angular," *Phys. Fluids* **15**, 2949 (2003).
- ³⁵Recent experiments show that as the corner develops, there is a tremendous increase of contact line curvature in a very narrow range of Ca. These results will be published in a forthcoming paper, by the same authors as of Ref. 24.
- ³⁶Note that the curve $H(\zeta)$ vs $F(\zeta)$ is different from the one presented in Ref. 29, which had a problem with numerical precision. However, the conclusions remain unaltered.
- ³⁷In the frame comoving with the droplet, mass conservation requires that the total flux across a cross section vanishes, cf. Eq. (11). Since at the contact line the downward velocity U_0 is smaller than the global drop speed U_d , this locally corresponds to an "upstream" velocity in the comoving frame. To compensate for this, the velocity at $\phi=0$ will be larger than U_0 .
- ³⁸The solutions never become purely parabolic; Eq. (12) shows that the higher-order derivatives become dominant close to the contact line. However, our numerical curves indicate that deviations from a simple parabola become increasingly localized to the contact line when $\Phi \rightarrow 0$.
- ³⁹J. Eggers, "Toward a description of contact line motion at higher capillary numbers," *Phys. Fluids* **16**, 3491 (2004).
- ⁴⁰We have compared our results for Ca_c to Eq. (9) of Ref. 16, by taking $L = l_c/10$ (l_c being the capillary length) and by varying the geometric parameter $\theta_{\text{eq}}/\theta_{\text{pin}}$ from 0.1 to 10.
- ⁴¹Note that for increasing viscosity, which in this case corresponds to an increasing microscopic length l of the silicon oil polymer chains, the critical capillary number is slightly increasing. This is consistent with the typical scaling of $\text{Ca} \propto 1/\ln(L/l)$.
- ⁴²We have equated the absolute values of the viscous term, $3\eta U/(pb^2)$, and the gravitational term, $(\sin \alpha - \cos \alpha \nabla h)/l_c^2$, which appear in the full lubrication equation. This provides an objective cross-over height that is determined directly from experimental measurements; close to the contact line we know the slope ∇h from measurements using a laser sheet,²⁷ α is the inclination angle of the plane, while $|U|$ is simply the normal velocity of the contact line.
- ⁴³M. Bestehorn and K. Neuffer, "Surface patterns of laterally extended thin liquid films in three dimensions," *Phys. Rev. Lett.* **87**, 046101 (2001).
- ⁴⁴P. G. de Gennes, X. Hua, and P. Levinson, "Dynamics of wetting: Local contact angles," *J. Fluid Mech.* **212**, 55 (1990).

H. Article « Meandering rivulets on a plane : a simple balance between inertia and capillarity ? », accepté à *Phys. Rev. Lett.*

Meandering rivulets on a plane : a simple balance between inertia and capillarity ?

Nolwenn LE GRAND-PITEIRA,* Adrian DAERR, and Laurent LIMAT

*Laboratoire de Physique et Mécanique des Milieux Hétérogènes,
10 rue Vauquelin 75005 Paris France, UMR CNRS 7636
and Matière et Systèmes Complexes, University Paris 7, UMR CNRS 7057*
(Dated: March 27, 2006)

Experiments on streams of water flowing down a rigid substrate have been performed for various plate inclinations and flow rates, and we focused on the regime of stationary meanders. The outcome is that (i) the flow is highly hysteretic: the shape of the meanders varies with flow rate only for increasing flow rates, and the straight rivulet regime does not appear for decreasing flow rate. (ii) A simple force balance, including inertia, capillary forces, and also hysteresis of wetting, accounts well for the experimental instability threshold flow rate and for the final radius of curvature of the meanders.

PACS numbers: 47.20.-k, 68.08.Bc, 47.60.+i, 47.20.Ma

Meandering is ubiquitous in nature and most familiar from rivers, but can also be seen at a much smaller scale like on window-panes during a rainfall. Recently, Drenckhan et al. [1] identified regular meandering patterns of rivulets, confined between two vertical plates, and charged with surfactants, mimicking undulations of foam Plateau borders. This observation confirms the generality of the pattern and suggests that a well defined mechanism is at work in rivulets, able to select a given meandering length scale. Understanding this mechanism and the properties of the resulting meanders is by itself a fundamental challenge which can also have implications in other fields of physics. For instance, Bruinsma [2] pointed out a possible analogy with the statistical mechanics for directed polymers inside a random matrix. The stability and characteristics of meandering rivulets may also be of importance to several industrial processes. In heat exchangers, changes between different flow regimes can cause drastic modifications of heat transfer [3]. Meander formation can also be an undesirable feature in coating processes [4].

For rivers [5, 6], it seems asserted that erosion is the key mechanism, but the meandering on non-erodible surfaces is still an essentially open problem. Culkin [7] and Nakagawa [8, 9] reported significant experimental work on streams running down an inclined plate. Nakagawa identified four regimes depending on flow rate: drops, meanders, unstable stream (the main rivulet oscillates and splits into several smaller ones) and a restable stream (the rivulet restabilizes into a straight rivulet of variable width, forming a braided pattern [10]). He stresses that he never obtained straight rivulets (of constant width); though this regime has been reported by Schmuki and Laso [11] who also investigated the effects of viscosity and surface tension, showing that meandering is suppressed at high viscosities. All in all, meandering has been observed in a wide variety of configurations, but little or no general conclusions have been drawn. In several studies the order parameter is the ratio of the length of the

meanders over the length of the inclined plane (termed sinuosity, well known in a geological context), a quantity difficult to interpret physically.

Stability analyses of rivulets, some neglecting longitudinal flow [12, 13], are mainly focused on varicose modes and not sinuous modes, i.e. are not dealing with the meandering instability. Only two recent papers deal with meandering threshold [2, 14].

This paper studies the shape and behavior of meandering rivulets as a function of two control parameters (flow rate and plate inclination), and discusses physical interpretations, focusing on the role of hysteresis. Up to now, there has been no quantitative study of the morphology of meanders on non-erodible surfaces in well controlled and reproducible conditions, and in addition, no comparison with simple hydrodynamic models. Our paper is a first step in this direction. In the present paper, experiments were only performed at low viscosity (that of water), corresponding to common natural situations.

Experimental set-up – Figure 1a shows a schematic diagram of the experimental set-up. De-ionized water is injected at the top of an inclined plate (1.20 m long and 50 cm wide). The substrate is a Mylar sheet (plastic sheets of polyethylene terephthalate (PET)), flattened on

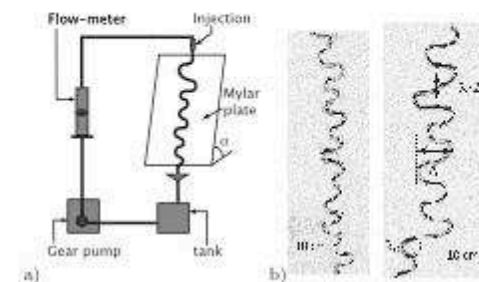


FIG. 1: a) Experimental setup b) Stationary meanders for $\alpha = 32^\circ$. $Q=1.08 \text{ mL/s}$ for the left picture and $Q=1.40 \text{ mL/s}$ for the right one.

a rigid plate. It insures partial wetting conditions for water (advancing and receding contact angles of respectively $\theta_a = 70^\circ$ and $\theta_r = 35^\circ$) and reduces problems of static electricity compared to other common plastics. The tilt angle α of the plate can be changed at will between 0° and 87° . The water is collected in a tank and pumped back to the top of the plate by a gear pump providing an adjustable and constant flow rate Q , checked with a precision flow-meter. Pictures and movies of the experiments were taken by a digital camera placed 1 m above the plate and perpendicular to the latter.

Meandering thresholds – For increasing flow rates, the following regimes are observed. (i) Drops. Individual drops periodically detach from the injector [15]. (ii) Straight rivulets. The liquid flows down forming a straight continuous ridge along the direction of steepest descent. (iii) Meandering rivulets. Above a critical flow rate Q_{c1} , depending on the plate inclination, the straight stream is unstable. Perturbations (surface defects, injection noise, air movement, ...) appear as small bends of typical size comparable to the rivulet width w . These bends initially amplify laterally and downwards and eventually reach a stationary shape. It can take 10 minutes to one hour for a meander to fully develop along the whole length of the plate, but the resulting path is completely stationary (Fig. 1b). Snapshots of a settled meander, taken every 2 minutes during 24 hours, confirmed that it did not move at all throughout that time lapse. Using either a steady pump or a constant level tank, differently designed injectors and a long plate to check whether the behavior of the rivulet depended on the distance to the injector, we have verified that the meandering regime existed independently of injection conditions, confirming previous findings by other groups. (iv) Dynamic regime. Above a second critical flow rate Q_{c2} , meanders no longer remain stable. The rivulet sweeps from side to side, similar to the free edge of a garden hose [16], frequently breaking up into sub-rivulets. (v) Restable regime. For even higher flow rates, the rivulet restabilizes and becomes straight again, but its width now varies like braids [10].

Fig. 2a displays the critical flow rates for the onset and disappearance of stationary meanders as a function of plate inclination α . The decrease of the second critical flow rate Q_{c2} with α is similar to that of Q_{c1} , but we have no explanation for it yet. The dependency of Q_{c1} on α can be understood from the balance of forces acting on the rivulet: gravity, surface tension, inertia and contact line pinning forces. For the lateral stability of a straight rivulet, gravity does not intervene (Fig. 2b). Surface tension opposes the bending of the rivulet and, once integrated across the cross-section, can be seen as a line tension of the liquid rim [17] creating a normal force F_γ straightening the rivulet. Taking into account the interfacial energies and the capillary pressure inside the rivulet, one gets $F_\gamma = C(\theta)\gamma w/r_c$, where

$C(\theta)$ is a constant ($C(\theta) \approx \theta^2/3$ in the limit of a small average contact angle θ), γ the surface tension, w the width of the rivulet and r_c the initial radius of curvature. Pinning forces are reactive (therefore stabilizing forces) and act normal to the contact line. Their upper bound is given by the advancing and receding contact angles: $F_h \leq F_h^{\max} = \gamma(\cos \theta_r - \cos \theta_a)$. Instability will arise when inertia ($F_i = \rho S v^2/r_c$, where ρ stands for the density of the liquid, S for the cross-section of the rivulet and v for the RMS velocity (\approx average velocity) inside the rivulet) becomes stronger than both line tension and pinning ($F_i \geq F_\gamma + F_h^{\max}$). The onset of meandering is therefore given by:

$$\rho \frac{Q_{c1}^2}{S r_c} = \gamma \left[\frac{C(\theta)w}{r_c} + (\cos \theta_r - \cos \theta_a) \right] \quad (1)$$

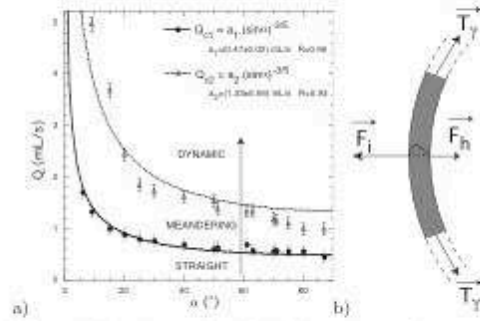


FIG. 2: a) Meandering thresholds for increasing flow rates b) Forces acting on a meander, in the plane of the plate.

Without the pinning term, this balance was also suggested by Drenckhan *et al.* [1] for meanders in foams. If the pinning term can be neglected, or else if r_c scales as w with flow rate, the first critical flow rate scales as $\rho Q_{c1}^2/S \propto \gamma v$. Let us now assume that the flow inside the rivulet is a Poiseuille flow ($v \propto w^2 g \sin \alpha / \nu$, where ν denotes the kinematic viscosity), and approximate the cross-section of the rivulet to a disc segment with $\pi/4$ contact angle ($S = (\pi - 2)w^2/8$). Using flow rate conservation ($Q = Sv$) leads to the scaling

$$Q_{c1} \propto \left[(\gamma/\rho)^{4/5} (\nu/g)^{3/5} \right] (\sin \alpha)^{-3/5}. \quad (2)$$

This scaling matches the experimental data very well (Fig 2a). If we keep the theoretical prefactor evaluating to about 2.3, we obtain flow rates 5 times too small. Rough estimates of the force terms in equ (1), using experimental data for typical threshold conditions, show that pinning is not completely negligible [18]. We thus expect equ (2) to underestimate the threshold. It is satisfying that the order of magnitude of the forces, and their scaling, are correctly estimated. The scaling of equ (2) is close to that predicted by Bruinsma [2].

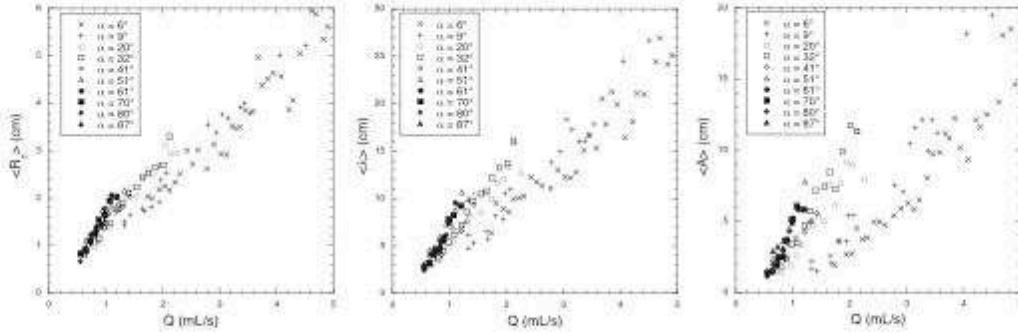


FIG. 3: Experimental data for the mean radius of curvature, wavelength and amplitude for numerous plate inclinations.

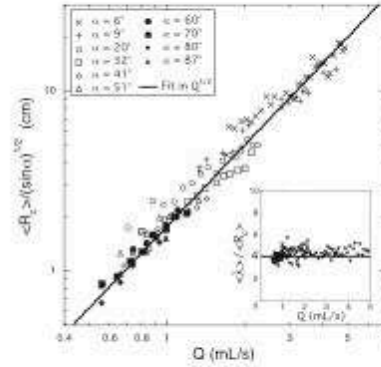
If the flow rate is now decreased while in the meandering regime, meanders remain remarkably stable: they keep their path, but become thinner, until they break up into drops. In particular there is no sinusoidal/straight rivulet transition: below Q_{c3} the rivulets meander instead of becoming straight. This strong hysteresis is a consequence of pinning effects. For all features of a meander with a radius of curvature greater than $C(\theta)w/(\cos\theta_r - \cos\theta_a) \approx 0.4w$, i.e. for all but very small scales, contact line pinning forces (now acting in the opposite direction) will dominate restoring capillary forces (equ. (1)), even if inertial forces tend to zero.

Shape of the stationary meanders – All the experimental data presented here were obtained for increasing flow rates. For numerous meanders achieved for plate inclinations varying between 6° and 87° , we measured the mean radius of curvature $\langle R_c \rangle$ at the apex of the curves (mean taken over all curves of a given rivulet), mean wavelength $\langle \lambda \rangle$, and mean amplitude $\langle A \rangle$ (see figures 1b and 3). All three parameters increase monotonically with the inclination of the plate α and the flow rate Q .

The magnitude of inertial and capillary forces depends on the shape of the rivulet path. The equilibrium of gravity, inertia, capillarity and pinning forces can therefore be used to solve for the expected radius of curvature of stationary meanders. Again, gravity does not matter if we are interested in the curvature at the vertical segments of the meander. The force balance at the threshold of depinning/motion then reads:

$$(\rho Q^2/S - C(\theta)\gamma w)/R_c = \gamma(\cos\theta_r - \cos\theta_a) \quad (3)$$

This is the same as equation (1) except that R_c is now the final radius of curvature of the bends in the meander, which scales between 1 and 6 cm (see figure 3) and is much larger than the initial radius of curvature r_c considered for the threshold of the instability. An order of magnitude calculation [18] shows that the capillary contribution $C(\theta)\gamma w/R_c$ now becomes smaller than pinning, and is also smaller than inertia $\rho Q^2/(S R_c)$. We there-

FIG. 4: Comparison of the data to the model for the mean radius of curvature. Insert: ratio of the wavelength to the radius of curvature for all plate inclinations α .

fore neglect the capillary part and, assuming a Poiseuille flow, one gets the following scaling law for the radius of curvature:

$$\langle R_c \rangle \propto \frac{\rho(g/\nu)^{1/2}}{\gamma(\cos\theta_r - \cos\theta_a)} Q^{3/2} \sqrt{\sin\alpha} \quad (4)$$

This expression has been tested on our data (Fig. 4) and the scaling law fits the data reasonably well. The same scaling seems to hold for amplitude and wavelength.

Some sets of data, for a given inclination, seem to have a slightly different slope from the proposed scaling law. A first possible explanation lies in the neglected capillary term, which would add a contribution to the radius of curvature in $-Q^{1/4} \sin^{-1/4}\alpha$, which is more important at low inclinations and low flow rates, and diminishes the final radius. A second important point is the reduction of the effective slope through sinuosity S (ratio of total length of the rivulet to the distance between its endpoints). The slope $\sin\alpha$ has to be replaced by $\sin\alpha/S$ in equ (4), and since S increases with Q and α [8], the

exponents of Q and α should be smaller than the ones in equ 4. Last not least, the Poiseuille flow assumption might need to be corrected. Indeed, flow visualizations with methylene blue dye show regions with zero or even backward recirculating flow, already mentioned by [19]. The Reynolds number based on the rivulet size is of order 500-1000.

Discussion – The scenario of development of meanders may be summed up as follows. Stable rivulets become unstable when inertia dominates capillary and pinning forces. The destabilizing term diminishes as a perturbation grows (and so its radius), so the hysteresis of wetting eventually re-stabilizes the perturbation. In the final state, pinning forces should therefore be maximally mobilized, with the critical advancing contact angle on the outside of the curve and the critical receding contact angle on the inside. Cross-section measurements by Nakagawa and Scott [8] seem to corroborate this, but more quantitative measurements are planned.

As shown in fig 1b, the final meanders are made up of circular segments. The ratio $\langle \lambda \rangle / (R_c)$ is expected to be close to 4 for paths made of half-circles possibly followed by horizontal segments. This is confirmed by the insert in fig 4 within experimental scatter.

In order to understand how the rivulet switches from one bend to the next, gravity has to be taken into account to explain why the rivulet does not follow the circular path back uphill. If weight is strong enough, it will exceed pinning at a critical orientation of the rivulet with respect to the slope, $\sin \Phi = \gamma(\cos \theta_r - \cos \theta_a) / \rho g S \sin \alpha$ which will define the inflection points on the path. If pinning always remains stronger, the rivulet can become horizontal without slipping: horizontal segments appear, in which the velocity decreases and the cross-section increases until gravity becomes dominant. Both scenarios seem to correspond to observed patterns, but the effect on the amplitude of the meanders is not clear yet.

A last point remains to be discussed: above Q_{c1} perturbations are stabilized at large scales because the destabilizing forces decrease for smaller curvatures, but why do no new perturbations appear at small scales? A possible reason might lie in the considerable drop of the mean flow velocity (by more than a factor 2) at the transition from straight-to-meandering, which has been revealed by injection of methylene blue dye into the rivulets. The formation of a meandering path decreases the mean slope seen by the rivulet, and consequently the equilibrium velocity. The rivulet therefore becomes stable again in the meandering part, and remains unstable in the parts which have not yet developed bends. It would be interesting to perform velocity measurements to see whether the second threshold Q_{c2} is defined by the same critical local velocity as Q_{c1} .

Concerning the influence of viscosity on meanders, Schmuki and Laso [11] showed that viscosity damped meanders. Our scaling laws are in agreement with this ob-

servation: for higher viscosity, both the critical flow rate for the onset of meandering and the radius of curvature increase. Other experiments, varying viscosity, should be carried out to quantitatively determine the influence of viscosity on meandering.

Acknowledgments – We thank B. Andreotti and T. Podgorski for stimulating discussions and critical reading of the manuscript.

* Electronic address: nlegrand@pmh.espci.fr

- [1] W. Drenckhan, S. Gatz and D. Weaire, *Phys. Fluids*, **16**, 3115-3121 (2004)
- [2] R. Bruinsma, *J. Phys. France*, **51**, 829-845 (1990).
- [3] E. N. Ganic and M. N. Roppo, *ASME J. Heat Transf.*, **102**, 342-346 (1980)
- [4] S. F. Kistler and P. M. Schweizer, *Liquid film coating*, edited by Chapman & Hall (1997)
- [5] L.B. Leopold and M.G. Wolman, *Bull. Geol. Soc. Am.*, **71**, 769-794 (1960)
- [6] T.B. Liverpool and S.F. Edwards, *Phys. Rev. Lett.*, **75**(16), 3016-3019 (1995)
- [7] J. B. Cullin, *Ph. D. Northern University, Illinois*, (1982); J. B. Cullin and S.H. Davis, *AIChE Journal*, **30**, 263-267 (1984)
- [8] T. Nakagawa and J. C. Scott, *J. Fluid Mech.*, **149**, 89-99 (1984)
- [9] T. Nakagawa, *J. Multiphase Flow*, **18**, 455-463 (1992)
- [10] K. Mertens et al, *Nature* **430** (2004) 165 and K. Mertens et al, *J. Fluid. Mech.* **531** (2005) 49
- [11] P. Schmuki and M. Laso, *J. Fluid Mech.*, **215**, 125-143 (1990)
- [12] S. H. Davis, *J. Fluid Mech.*, **98**(2), 225-242 (1980); K. Sekimoto, R. Oguma and K. Kawazaki, *Ann. Phys.*, **176**, 359-392 (1987)
- [13] G.W. Young and S.H. Davis, *J. Fluid Mech.*, **176**, 1-31 (1987); R.V. Roy and L.W. Schwartz, *J. Fluid. Mech.*, **391**, 293-318 (1999)
- [14] H. Kim, J. Kim and B. Kang, *J. Fluid Mech.*, **498**, 245-256 (2004)
- [15] N. Le Grand, A. Daerr and L. Limat, *J. Fluid Mech.*, **541**, 293-315 (2005)
- [16] S. Kuronuma and M. Sano, *J. Phys. Soc. Jpn*, **72**, 3106-3112 (2003)
- [17] Two forces act normal on a meander section S : pressure $-S\Delta p$ and surface tension. The surface tension is made up of two parts: the water-air interface of length ℓ contributes a term $\gamma\ell$, the straight mylar-water interface of length w contributes a term $-\gamma w \cos \theta$ corresponding to the energy difference between wet and dry Mylar, θ being an average contact angle. The effective rivulet line tension is $T_\gamma = \gamma(\ell - w \cos \theta) - S\Delta p$. Approximating the water-air interface by a circular arc of radius r intersecting the solid plate at the contact angle θ , we find that $\ell = 2\theta r$, $w = 2r \sin \theta$, $\Delta p = \gamma/r$ (neglecting the longitudinal rivulet curvature) and $S = \theta r^2 - (1/2)wr \cos \theta$. The line tension becomes $T_\gamma = (1/2)\gamma w(\theta/\sin \theta - \cos \theta) = C(\theta)\gamma w$.
- [18] For the contact angles given in the text, the pinning force is around $F_b = 35 \text{ g.s}^{-2}$. Inertial and capillary terms evaluate to $\rho S v^2 = \rho Q^2 / S = 50 \text{ g.cm.s}^{-2}$ and $C\gamma w = 6 \text{ g.cm.s}^{-1}$ for $Q = 1 \text{ mL.s}^{-1}$, $w = 4 \text{ mm}$.
- [19] J. Walker, *Am. Sci.*, **253**, 132-137 (1985)

Bibliographie générale du manuscrit



- ABLETT R., 1923, An investigation of the angle of contact between paraffin wax and water, *Phil. Mag.*, **46**, p. 244-256
- ANAND A. & BEJAN A., 1986, Transition to meandering Rivulet flow in a vertical parallel-plate channels, Technical briefs, *J. Fluids Eng.*, **108**, p. 269-272
- BANKOFF S.G., 1971, Minimum thickness of a draining film, *Int. J. Heat Mass Transf.*, **14 (12)**, p. 2143-2146
- BEN AMAR M., CUMMINGS L. & POMEAU Y., 2001, Singular points on a receding contact line, *C. R. Acad. Sci.*, **329 (IIb)**, p. 277-282
- BEN AMAR M., CUMMINGS L. & POMEAU Y., 2003, Transition of a moving contact line from smooth to angular, *Phys. Fluids*, **15**, p. 2949-2960
- BIKERMAN J.J., 1950, Sliding of drops from surfaces of different roughness, *J. Colloid Sci.*, **5**, p. 349-359
- BLAKE T.D., 1993, Dynamic contact angles and wetting kinetics, *Wettability*, Ed. J.C. Berg (Marcel Dekker, New York), p. 251-309
- BLAKE T.D. & HAYNES J.M., 1969, Kinetics of liquid/liquid displacement, *J. Coll. Int. Sci.*, **30**, p. 421-423
- BLAKE T.D. & RUSCHAK K.J., 1979, A maximal speed of wetting, *Nature*, **282**, p. 489-491
- BLAKE T.D. & RUSCHAK K.J., 1997, Wetting : static and dynamic contact lines, *Liquid Film Coating - Scientific Principles and their Applications*, Éd. Kistler S.F. & Schweitzer P.M., Chapman & Hall, p. 63-97
- BRUINSMA R., 1990, The statistical mechanics of meandering, *J. Phys. France*, **51**, p. 829-845
- COX R.G., 1986, The dynamics of the spreading of liquids on a solid surface. Part 1 : Viscous flows, *J. Fluid Mech.*, **168**, p. 169-194
- CUBAUD T. & MASON T., 2006, Folding of viscous threads in diverging microchannels, *soumis à Phys. Rev. Lett.*
- CULKIN J.B., 1982, Rivulet meandering, Thèse de doctorat, Northern University, Illinois, États Unis d'Amérique
- CULKIN J.B. & DAVIS S.H., 1984, Meandering of water rivulets, *AIChE Journal*, **30**, p. 263-267
- DAVIS S.H., 1980, Moving contact lines and rivulet instabilities. Part 1. The static rivulet, *J. Fluid Mech.*, **98**, p. 225-242
- DE GENNES P.-G., 1979, Écoulements viscométriques de polymères enchevêtrés, *C. R. Acad. Sci.*, **288 (IIb)**, p. 219
- DE GENNES P.-G., 1985, Wetting : statics and dynamics, *Reviews of Modern Physics*, **57 (3)**, p. 827-862

- DE GENNES P.-G., 1986, Deposition of Langmuir-Blodgett layers, *Colloid Polymer Sci.*, **264**, p. 463-465
- DE GENNES P.-G., HUA X. & LEVINSON P., 1990, Dynamics of wetting : local contact angles, *J. Fluid Mech.*, **212**, p. 55-63
- DE GENNES P.-G., BROCHART-WYART F., QUÉRÉ D., 2002, Gouttes, bulles, perles et ondes, *Éd. Belin*, Collection Échelles, 256 pages
- DE LANGRE E., 2001, Fluides et solides, *Éd. de l'École Polytechnique*, 134 pages
- DELON G., 2006, Nature de la transition d'entraînement d'un film liquide, *Thèse de doctorat, Université de Paris 7, France*, à paraître
- DERJAGUIN B.V. & LEVI S.M., 1964, Film coating theory, *Focal Press*, London.
- DRENCKHAN W., GATZ S. & WEAIRE D., 2004, Wave patterns of a rivulet of surfactant solution in a Hele-Shaw cell, *Phys. Fluids*, **16 (8)**, p. 3115-3121
- DURAND M., MARTINOTY G. & LANGEVIN D., 1999, Liquid flow through aqueous foams : from the Plateau border-dominated regime to the node-dominated regime, *Phys. Rev. E*, **60 (6)**, p. R6307-6308
- DURAND M. & LANGEVIN D., 2002, Physicochemical approach to the theory of foam drainage, *Eur. Phys. J. E.*, **7**, p. 35-44
- DUSSAN V. E.B., 1979, On the spreading of liquids on solid surfaces : Static and dynamic contact lines, *Ann. Rev. Fluid Mech.*, **11**, p. 371-400
- DUSSAN V. E.B., 1985, On the ability of drops or bubbles to stick to non-horizontal surfaces of solids, Part 2 : small drops or bubbles having contact angles of arbitrary size, *J. Fluid Mech.*, **151**, p. 1-20
- DUSSAN V. E.B. & CHOW R. T.-P., 1983, On the ability of drops or bubbles to stick to non-horizontal surfaces of solids, *J. Fluid Mech.*, **137**, p. 1-29
- EGGERS J., 2004-a, Hydrodynamic theory of forced dewetting, *Phys. Rev. Lett.*, **93**, p. 094502-1-4
- EGGERS J., 2004-b, Towards a description of contact line motion at higher capillary numbers, *Phys. Fluids*, **16**, p. 3491-3494
- FURMIDGE C.G.L., 1962, Studies at phase interfaces, I. The sliding of liquid drops on solid surfaces and a theory for spray retention, *J. Colloid Sci.*, **17**, p. 309-324
- GANIC E.N. & ROPPO M.N., 1980, An experimental study of falling liquid film breakdown on a horizontal cylinder during heat transfer, *ASME J. Heat Transf.*, **102**, p. 342-346
- GOLESTANIAN R. & RAPHAËL E., 2001, Relaxation of a moving contact line and the Landau-Levich effect, *Europhys. Lett.*, **55 (2)**, p. 228-234
- GOLESTANIAN R. & RAPHAËL E., 2003, Roughening transition in a moving contact line, *Phys. Rev. E*, **67**, p. 031603-1-14

- GORYCKI M.A., 1973, Hydraulic drag ; a meander-initiating mechanism, *Geol. Soc. Am. Bull.*, **84**, p. 175-186
- GUYON E., HULIN J.-P., PETIT L., 2001, Hydrodynamique physique, Nouvelle édition revue et augmentée, Éd. CNRS, EDP Sciences, Collection Savoirs actuels, Paris, 676 pages
- HOCKING L.M., 2001, Meniscus draw-up and draining, *Eur. J. Appl. Math.*, **12**, p. 105-208
- HUH C. & SCRIVEN L.E., 1971, Hydrodynamic model of steady movement of a solid/liquid/fluid contact line, *J. Coll. Int. Sc.*, **35 (1)**, p. 85-101
- JOANNY J.F. & DE GENNES P.-G., 1984, A model for contact angle hysteresis, *J. Chem. Phys.*, **81 (1)**, p. 552-562
- KIM H.-Y., LEE H.-J. & KANG B.-H., 2002, Sliding of liquid drops down an inclined solid surface, *J. Colloid Sci.*, **247**, p. 372-380
- KIM H., KIM J. & KANG B., 2004, Meandering instability of a rivulet, *J. Fluid Mech.*, **498**, p. 245-256
- KISTLER S.F. & SCHWEITZER P.M., 1997, Liquid film coating – Scientific principles and their technological implications, Éd. Chapman & Hall, 783 pages
- KOEHLER S.A., HILGENFELDT S., STONE H.A., 1999, Liquid flow through aqueous foams : The node-dominated foam drainage equation, *Phys. Rev. Lett.*, **82 (21)**, p. 4232-4235
- KOEHLER S.A., HILGENFELDT S. & STONE H.A., 2000, A generalized view of foam drainage : Experiment and theory, *Langmuir*, **16**, p. 6327-6341
- KOEHLER S.A., HILGENFELDT S., WEEKS E.R. & STONE H.A., 2002, Drainage of a single Plateau borders : Direct observation of rigid and mobile interfaces, Rapid communications, *Phys. Rev. E*, **66**, 040601(R), 4 pages
- LE GRAND N., DAERR A., LIMAT L., 2005, Shape and motion of drops sliding down an inclined plane, *J. Fluid Mech.*, **541**, p. 293-315
- LE GRAND-PITEIRA N., DAERR A., LIMAT L., 2006, Meandering rivulets on a plane : a simple balance between inertia and capillarity ?, accepté à *Phys. Rev. Lett.*
- LEOPOLD L.B. & WOLMAN M.G., 1960, River meanders, *Geol. Soc. Am. Bull.*, **71**, p. 769-794
- LIMAT L. & STONE H.A., 2004, Three-dimensional lubrication model of a contact line corner singularity, *Europhys. Lett.*, **65**, p. 365-371
- LIN S.P. & REITZ R.D., 1998, Drop and spray formation from a liquid jet, *Annu. Rev. Fluid Mech.*, **30**, p. 85-105
- LIVERPOOL T.B. & EDWARDS S.F., 1995, Dynamics of a meandering river, *Phys. Rev. Lett.*, **75 (16)**, p. 3016-3019
- MAHADEVAN L., RYU W. & SAMUEL A.D.T., 1998, Fluid rope trick investigated, *Nature*, **391**, p. 140
- MARSHALL J.S. & ETTEMA R., 2000, Rivulet dynamics with variable gravity and wind shear, *Proceedings of the 5th microgravity fluid physics and transport phenomena conference*, p. 1217-1227

- MERTENS K., PUTKARADZE V., VOROBIEFF P., 2004, Braiding patterns on an inclined plane, *Nature*, **430 (8)**, p. 165
- MERTENS K., PUTKARADZE V., VOROBIEFF P., 2005, Morphology of a stream flowing down an inclined plane. Part 1. Braiding, *J. Fluid Mech.*, **531**, p. 49-58
- MUGELE F. & BARET J.-C., 2005, Electrowetting: from basics to applications, *J. Phys.: Condens. Matter.*, **17**, p. R705-R774
- MYSELS K., SHINODA K., FRANKEL S., 1959, Soap Films, Studies of their thinning, New York, *Éd. Pergamon*
- NAKAGAWA T. & SCOTT J.C., 1984, Stream meanders on a smooth hydrophobic surface, *J. Fluid Mech.*, **149**, p. 89-99
- NAKAGAWA T., 1992, Rivulet meanders on a smooth hydrophobic surface, *J. Multiphase Flow*, **18 (3)**, p. 455-463
- NGAN C.G. & DUSSAN V. E.B., 1982, On the nature of the dynamic contact angle : an experimental study, *J. Fluid Mech.*, **118**, p. 27-40
- PATIST A., OH S.G., LEUNG R., SHAH D.O., 2001, Kinetics of micellization : its significance to technological processes, *Colloids and Surfaces A : Physicochem. Eng. Aspects*, **176**, p. 3-16
- PETROV P.G. & PETROV J.G., 1992, A combined molecular-hydrodynamic approach to wetting kinetics, *Langmuir*, **8**, p. 1762-1767
- PITOIS O., FRITZ C. & VIGNES-ADLER M., 2005, Liquid drainage through aqueous foam : study of the flow on the bubble scale, *J. Coll. Int. Sci.*, **282**, p. 458-465
- PODGORSKI T., FLESSELLES J.-M. & LIMAT L., 1999, Dry arches within flowing films, *Phys. Fluids*, **11**, p. 845-852
- PODGORSKI T., 2000, Ruissellement en conditions de mouillage partiel, Thèse de doctorat, Université de Paris 6, France, 186 pages
- PODGORSKI T., FLESSELLES J.-M. & LIMAT L., 2001, Corners, cusps and pearls in running drops, *Phys. Rev., Lett.*, **87**, p. 036102-036105
- POMEAU Y., 2000, Représentation de la ligne de contact mobile dans les équations de la mécanique des fluides, *C. R. Acad. Sci., Mécanique des fluides*, **328 (IIb)**, p. 411-416
- POMEAU Y., 2002, Recent progress in the moving contact line problem : a review, *C. R. Mécanique*, **330**, p. 207-222
- POSKANZER A.M. & GOODRICH F.C., 1975, Surface viscosity of Sodium Dodecyl Sulfate solutions with and without added dodecanol, *J. Phys. Chem.*, **79 (20)**, p. 2122-2126
- PROCTER & GAMBLE, Material Safety Data Sheet, Fairy Liquid Original, [www.pgprof.com/uk/ki_ss_pdf/MSDS_Fairy_Liquid_Original_Hand_Dishwash_Detergent_\(750ml_1.5L_5L\).pdf](http://www.pgprof.com/uk/ki_ss_pdf/MSDS_Fairy_Liquid_Original_Hand_Dishwash_Detergent_(750ml_1.5L_5L).pdf)
- RIO E., 2005, Gouttes, flaques et arches sèches : des lignes de contact en présence d'un écoulement, Thèse de doctorat, Université Paris 6, 244 pages

- QUILLET C. & BERGE B., (2001), Electrowetting: a recent outbreak, *Cur. Opin. Coll. Interf. Sci.*, **6**, p. 34-39
- RAME E., GAROFF S. & WILLSON K.R., 2004, Characterizing the microscopic physics near moving contact lines using dynamic contact angle data, *Phys. Rev. E*, **70**, p. 031608-1-9
- RIBE N.M., 2003, Periodic folding of viscous sheets, *Phys. Rev. E*, **68**, 036305, 6 pages
- RIO E., 2005, Gouttes, flaques et arches sèches : des lignes de contact en présence d'un écoulement, Thèse de doctorat, Université Paris 6, 244 pages
- RIO E., DAERR A., ANDREOTTI B. & LIMAT L., 2005, Boundary conditions in the vicinity of a dynamic contact line : experimental investigation of viscous drops sliding down an inclined plane, *Phys. Rev. Lett.*, **94**, p. 0245031-4
- RIO E. & LIMAT L., 2006, Wetting hysteresis of a dry patch left inside a flowing film, *Phys. Fluids*, **18**, p. 032102
- RHODORSIL huiles, *Éd. par Rhône-Poulenc*
- ROY R.V. & SCHWARTZ L.W., 1999, On the stability of liquid ridges, *J. Fluid Mech.*, **391**, p. 293-318
- RUIJTERS M.J., BLAKE T.D. & DE CONINCK J., 1999, Dynamic wetting studied by molecular modeling simulations of drop spreading, *Langmuir*, **15**, p. 7836-7847
- SCHMUKI P. & LASO M., 1990, On the stability of rivulet flow, *J. Fluid Mech.*, **215**, p. 125-143
- SEKIMOTO K., OGUMA R. & KAWASAKI K., 1987, Morphological stability analysis of partial wetting, *Ann. Phys.*, **176**, p. 359-392
- SHEN A.Q., GLEASON B., MCKINLEY G.H. & STONE H.A., 2002, Fiber coating with surfactant solutions, *Phys. Fluids*, **14 (11)**, p. 4055-4068
- SNOEIJER J.H., 2006, Free surface flows with large slopes : beyond lubrication theory, *Phys. Fluids*, **18**, p. 021701
- SNOEIJER J.H., RIO E., LE GRAND N., & LIMAT L., 2005, Self-similar flow and contact line geometry at the rear of cornered drops, *Phys. Fluids*, **17**, p. 072101-1-12.
- SNOEIJER J., EGGERS J., LIMAT L. & STONE H.A., 2006, Cornered drops and rivulets, to be published
- STONE H.A., LIMAT L., WILSON S.K., FLESSELLES J.-M. & PODGORSKI T., 2001, Corner singularity of a contact line moving on a solid surface, *C. R. Physique*, **3**, p. 103-110
- STONE H. A., KOEHLER S.A., HILGENFELDT S. & DURAND M., 2003, Perspectives on foam drainage and the influence of interfacial rheology, *J. Phys. : Condens. Matter*, **15**, p. S283-S290
- THIELE U., NEUFFER K., BESTEHORN M., POMEAU Y. & VELARDE M.G., 2001, Sliding drops in the diffuse interface model coupled to hydrodynamics, *Phys. Rev. E*, **64**, p. 06160-1-12
- VOĬNOV O.V., 1976, Hydrodynamics of wetting, *Fluid Dyn.*, **11**, p. 714-721

- WALKER J., 1985, The amateur scientist. What forces shape the behavior of water as a drop meanders down a windowpane ? *Am. Sci.*, **253 (sept.)**, p. 132-137
- WEAIRE D., PITTET N., HUTZLER S., PARDAL D., 1993, Steady-state drainage of an aqueous foam, *Phys. Rev. Lett.*, **71 (16)**, p. 2670-2673
- YOUNG G.W. & DAVIS S.H., 1987, Rivulet instabilities, *J. Fluid Mech.*, **176**, p. 1-31