AIX-MARSEILLE UNIVERSITÉ
ECOLE DOCTORALE 353
IRPHE/UMR 7342

Thèse présentée pour obtenir le grade universitaire de docteur

Discipline : Sciences pour l'ingénieur
Spécialité : Mécanique et Physique des Fluides

Baptiste NÉEL

Déstabilisation, rupture et fragmentation spontanées et stimulées de films liquides

Spontaneous, and stimulated, destabilization, rupture and fragmentation of liquid films

Soutenue le 23/11/2018 devant le jury composé de :

Mme Isabelle CANTAT	Université Rennes 1	Rapportrice
M. Christian LIGOURE	Université de Montpellier	Rapporteur
Mme Laurence TALINI	Université Pierre et Marie Curie	Examinatrice
M. Luc DEIKE	Princeton University	Examinateur
M. Nicolas BRÉMOND	ESPCI	Examinateur
M. Emmanuel VILLERMAUX	Aix-Marseille Université	Directeur de thèse

Numéro national de thèse/suffixe local : 2018AIXM0578/034ED353

Résumé

Placée sous le signe de la fragmentation liquide, cette thèse met l'emphase sur une série d'étapes pouvant, d'un film suspendu, mener à une assemblée de gouttes : déstabilisation, rupture puis fragmentation. Elle prend appui sur des expériences originales, analysées à l'aide de modèles à la portée générale.

En guise de prologue, capillarité, cisaillement et viscosité sont discutées à travers l'étude de la déstabilisation Marangoni d'un filament d'huile visqueuse déposé à la surface de l'eau. La mise en mouvement du filament, pilotée par une différence de tensions de surface, produit une cascade critique auto-similaire, accélérée jusqu'à la dilution complète de l'huile, miscible à l'eau.

Sur un film, l'effet Marangoni créé par un déficit localisé de tension de surface, dont le support (la température ou un soluté) diffuse, engendre sa déstabilisation, étudiée au deuxième chapitre. L'analyse linéaire exhibe une échelle de temps inertielle basée sur le cisaillement surfacique, sur laquelle s'établit un écoulement interstitiel, caractérisé expérimentalement. Le scénario introduit un nombre de Péclet, critère pour la rupture spontanée des films épais.

Les conséquences sur la stabilité finale du film sont explorées au troisième chapitre, avec la revue des possibles régularisations. La dynamique de rupture est interprétée en termes de choc.

Enfin, suivant la rupture d'un film en divers points, la collision de cylindres liquides est isolée en tant que mécanisme individuel de fragmentation. L'analyse détaillée de l'impact révèle la transition entre deux régimes, vers des gouttes de plus en plus fines.

Mots-clés Fragmentation liquide, capillarité, effet Marangoni

Abstract

This thesis deals primarily with liquid films fragmentation. It consists, thanks to quantitative and original experiments, in the transformation of a free suspended film into a collection of droplets: destabilization, rupture, and fragmentation.

In a prologue, notions of capillarity, momentum transfer and viscosity are introduced by the Marangoni-driven destabilization of a thin thread of viscous oil on water. The difference of surface tension feeds an accelerated, critical, self-similar cascade which ends up with the complete dilution of oil into water.

When applied to a free film, the Marangoni effect driven by a localized deficit of surface tension, whose carrier (temperature or a solute) is diffusing into the liquid, destabilizes it (chapter two). The linear instability analysis points out the crucial role of an inertial timescale based on the surface shear stress. Experiments validate the prediction of an interstitial flow, which digs out the film in the case of a surface tension deficit. These observations offer new insights into a long-standing problem, namely the spontaneous nucleation of holes on planar liquid films.

The third chapter investigates the consequences of the linear instability, as far as the film final stability is concerned, reviewing possible regularizations. The rupture dynamics is described within the framework of shocks.

In the final chapter, the collision of liquid cylinders is identified as an individual mechanism for liquid fragmentation. The impact dynamics is analyzed, leading to two principal fragmentation regimes. The onset to the splashing one, which produces fine and fast droplets, is described.

Keywords Liquid fragmentation, capillarity, Marangoni effect

Remerciements

Qu'on se le dise, car c'est finalement une chose somme toute plutôt peu anticipée quand on se lance dedans, tout fier et enthousiaste : une thèse, c'est du boulot. Beaucoup de boulot, même. Qui n'aboutit pas toujours. C'est ainsi, aidé par son directeur, et ses pair-e-s doctorant-e-s et chercheur-e-s, que l'on apprend la frustration. L'autonomie, bon gré, mal gré. La prise d'initiatives, la curiosité, tous azimuts, à cadrer, mais aussi la demande de soutien, qu'il soit scientifique, humain, matériel, bibliographique. Un apprentissage de la recherche, en somme. Qui ne peut se faire — ni la recherche, ni son apprentissage — seul. Vous voilà prévénu-e-s, une thèse, c'est donc bien sûr aussi une histoire de rencontres. De beaucoup de rencontres.

Merci Emmanuel pour tout ça, pour ce grand plongeon dans l'aventure scientifique. L'exigence, la rigueur de raisonnement, la pertinence et l'intuition physiques, mais aussi le plaisir de la discussion, de la compréhension, du maniement et de l'exposition des concepts intellectuels, je crois que ce que j'étais venu chercher il y a quatre ans, je l'ai trouvé. Merci aussi, et surtout, pour la liberté et la confiance accordées en salle de manips, j'ai pu inventer, monter de toutes pièces, créer, en un mot faire des expériences littéralement originales, quoique parfois au péril de l'expérience...

Merci à vous, Mesdames et Messieurs qui avez examiné mes travaux de thèse, Mme Cantat et M. Ligoure, de vous être en plus pliés aux délais de l'université. Mme Talini, MM. Brémond et Deike, pour cette intense et très plaisante session de questions, votre intérêt et votre curiosité à propos de mes travaux.

Aloïs, Guillaume, Maximilien, Élias, Basile, Jean-Baptiste, Émilie, Amélie, Thomas, Fabien, Eduardo, doctorants de l'IRPHE, et d'ailleurs, et d'ailleurs pas tous doctorants, Henri, Hugo, Thomas, Lucie, Daniel, Dijo, Matthieu, Laurent, Maxime... Merci pour les coups de main, les échanges de bons procédés, les Déj' des Docs, les soutiens — qui ne s'annoncent pas toujours —, en bref le partage du quotidien laborantin, tout ce qui fait qu'il a été très agréable de travailler quatre ans ici ! Et parce qu'un labo ne tournerait pas sans elles et eux, merci à tout le staff d'entretien, technique, administratif, les petites mains, les chaleureux sourires et les tomates, pour tout ce qu'on ne voit pas et qui est bien là, Saadia, Julie, Cathy, Adrien, Saïda, Solange, Patrice, Lucienne, Sandra, Karine, Mireille.

Juliette, la figure 0 te revient haut la main, avec l'accord délirant des auteurs. Merci pour la trouvaille (et tout ce qui ne trouverait pas sa place ici) ! S'il m'était possible de dédicacer séparément les quatre années de cet excellent temps passé à Marseille, la première le serait à Giulio et Dilan, la deuxième à William, Héloïse et Justine, la troisième à Prude et Bisou et la dernière à Macro et Paco et Ivana, merci d'avoir partagé un quotidien plutôt intense, en colocation, en gestion hippique, en logistique épique. La décence m'interdit de les (sur)nommer toutes et tous individuellement dans ces pages, alors merci aux membres absolus, relatifs, universels et intemporels du Pompier Poney Club, c'est précisément votre indécence qui va me manquer.

Last but not least, comme je vais bientôt être forcé de dire, la famille et les amis de toujours, en quatre ans, vous en avez eu du temps, pour déménager, vous marier, redéménager, avoir des enfants, à nouveau emménager, finir vos thèses (enfin, presque), déménager — à l'étranger parfois. Nathalie, Éric, Antonin, Clément, Marceau, Marie-Valentine, Jean-Baptiste, Moustik, Marien, Jérémy, Popi, Amélie, Joris, Marguerite, Alexis, Charlie, Mathilde, Antoine, le temps qui court ne vous a finalement pas empêché de m'apporter, indéfectible, votre précieux soutien.

FIGURE 0 – Image © Plonk & Replonk.

Table des matières

Résumé **i**

Abstract **iii**

Remerciements **v**

Introduction **1**
Tension de surface . . . 1
Lames, lamelles, films . . . 3
Fragmentation . . . 6
Problématique . . . 9

1 Prologue : Instabilité Marangoni d'un filament visqueux **13**
Introduction . . . 13
1.1 Sur l'expansion d'une goutte visqueuse . . . 15
1.1.1 Dispositif expérimental . . . 15
1.1.2 Phénoménologie . . . 17
1.1.3 Résumé . . . 22
1.2 Étalement d'un mince filament visqueux . . . 23
1.2.1 Instabilité linéaire . . . 26
1.2.2 Cascade auto-similaire . . . 27
1.3 Capillarité et viscosité . . . 28
1.3.1 Ondes de surface en viscosité non nulle . . . 30
1.3.2 Tension de surface variable : mécanisme élémentaire . . . 32
1.4 Instabilité du filament . . . 34
1.4.1 Champ lointain . . . 35
1.4.2 Réponse du filament . . . 35
1.4.3 Instabilité . . . 36
Conclusion . . . 38

2 Déstabilisation spontanée de films plans **41**
2.1 Introduction . . . 43
2.2 Experiments and observations . . . 46
2.2.1 Liquid films production . . . 46
2.2.2 Methods of perturbation . . . 48
2.2.3 Imaging . . . 49
2.2.4 Qualitative observations . . . 51
2.3 A mechanism . . . 52
2.3.1 A spot of dirt . . . 55

2.3.2 Mixing analogy . . . 56
2.3.3 Consequences . . . 57
2.3.4 In two dimensions . . . 58
2.4 Detailed measurements . . . 59
2.4.1 Experiments on a Savart sheet . . . 59
2.4.2 The spot of dirt and initial response . . . 60
2.4.3 Later times . . . 62
2.4.4 The penetration of dirt : varying τ_0 . . . 64
2.5 Conclusion . . . 65

3 Rupture de films plans **73**
Introduction . . . 73
3.1 Expérience . . . 74
3.1.1 Dispositif . . . 74
3.1.2 Rupture . . . 77
3.1.3 Régularisations . . . 83
3.2 Équations de film suspendu . . . 86
3.2.1 Cas unidimensionnel . . . 87
3.2.2 Équations sans dimensions . . . 90
3.3 Le cas non diffusif . . . 91
3.3.1 Dérivation lagrangienne . . . 91
3.3.2 Perturbation gaussienne . . . 93
3.3.3 Choc . . . 94
Conclusion . . . 97

4 Collision et fragmentation de cylindres liquides **101**
Introduction . . . 101
4.1 Expériences . . . 102
4.1.1 Nombre(s) de Weber . . . 103
4.1.2 Rupture contrôlée en nappe de Savart . . . 106
4.1.3 Rupture aléatoire en nappe de Savart . . . 113
4.2 Réorganisation à la collision . . . 116
4.2.1 Dynamique initiale . . . 116
4.2.2 Rétraction . . . 118
4.2.3 Déstabilisation longitudinale . . . 119
4.3 Fragmentation . . . 124
4.3.1 Dépasser Plateau-Rayleigh . . . 125
4.3.2 Rugosité . . . 126
4.3.3 Fragmentation transverse . . . 128
Conclusion . . . 131

Conclusion **135**

Mais tout à coup je me le rappelai, les irréductibles aspérités d'un monde inhumain s'anéantirent magiquement : les syllabes du vers remplirent aussitôt la mesure d'un alexandrin, ce qu'il avait de trop se dégagea avec autant d'aisance et de souplesse qu'une bulle d'air qui vient crever à la surface de l'eau.

À la recherche du temps perdu
Marcel PROUST

Introduction

> A tube, the bore of which is so small that it will only admit a hair (*capilla*), is called a capillary tube.
>
> MAXWELL, 1878

Tension de surface

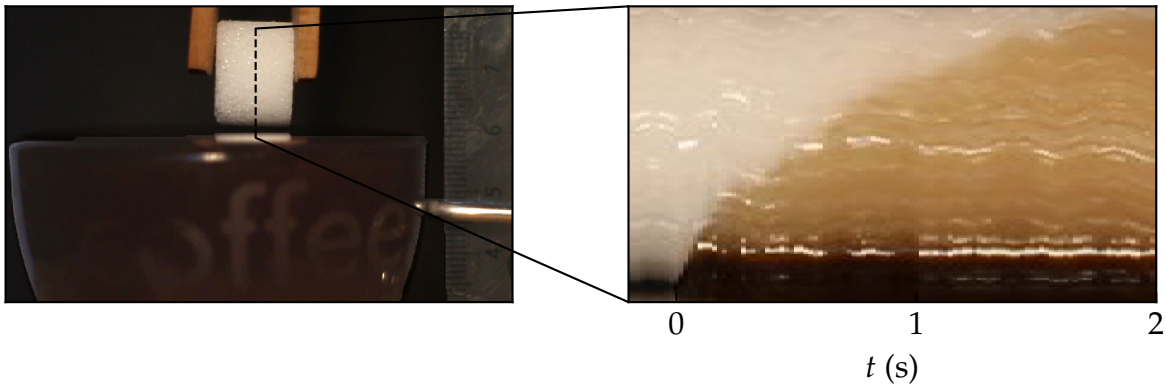

FIGURE 1 – Ascension capillaire d'un liquide (café) dans un milieu poreux (sucre), un de nos premiers contacts avec la capillarité. *Gauche :* un morceau de sucre est maintenu au-dessus d'un bain de café. *Droite :* diagramme spatio-temporel pour la tranche verticale centrale.

James Clerk Maxwell, père fondateur de l'électro-magnétisme, vient en signant l'article *Capillary Action* de la neuvième édition de l'encyclopédie *Britannica*, en plus de faire le point sur plus d'un siècle de formalisation d'une foule de phénomènes, prouver, s'il est besoin, deux points : il fut un temps où la mécanique des fluides n'était pas seulement considérée comme une science pour l'ingénieur, et où l'ambition était assumée de rassembler les savoirs en un unique ouvrage. Or donc, la capillarité, théorie principalement mise en forme au cours des XVIII$^{\text{è}}$ et XIX$^{\text{è}}$ siècles, entend décrire un faisceau de phénomènes primitivement caractérisés par leur petite taille. Un des premiers, historiquement, à défier la curiosité des savants à ce sujet, est l'ascension d'un liquide dans un tube de petit diamètre, *contre* la gravité. L'experience, nommée d'après JURIN, 1717, suivant les observations de HAUKSBEE, 1709 et motivée par la célèbre *Query 31* du traité *Opticks* (NEWTON, 1704/1718), trouve une version vulgarisée dans l'ascension d'eau dans un sucre : il s'agit bien souvent de notre premier contact, reconnu comme tel, avec la *capillarité* (figure 1). L'ascension du liquide nous renseigne sur la présence, contre l'action de la gravité, d'une

action spécifique, dénommée capillaire, en l'occurrence d'explication pas si triviale. Elle nous enseigne que cette action, qui prend le plus souvent la forme d'une force, est capable de surpasser la gravité en-deça d'une certaine taille. La longueur capillaire ℓ_c, que nous construirons plus tard, équilibre les deux effets, et est de l'ordre du millimètre pour la plupart des liquides considérés à l'air libre. Au moins un ordre de grandeur plus grand, de fait, que la taille d'un cheveu.

Il y a, dans la boîte à outils du physicien intéressé non seulement par la statique mais aussi par l'écoulement des liquides, auquel se dévoue le XIX$^{\text{è}}$ siècle, différentes propriétés pour caractériser le fluide en question, dit newtonien dans le cas le plus élémentaire. Trois, essentiellement. Deux concernent le volume : la viscosité, pour caractériser la propension du liquide à résister au mouvement et à dissiper l'énergie cinétique, et la masse volumique, ou par abus de langage la densité, qui intervient dans l'inertie du fluide et la construction du champ de pression hydrostatique — une particule fluide au repos supporte le poids de toutes ses semblables situées à sa verticale, au-dessus d'elle. La troisième caractéristique, liée à l'interface avec un autre fluide (gaz ou liquide), est la tension superficielle, assimilée, un peu à la manière d'un ballon de baudruche, à une force contractile, introduite par SEGNER, 1751. Cette dernière est bien évidemment l'actrice majeure de la capillarité. L'interprétation dominante est celle d'une force par unité de longueur : responsable, par exemple, de la rétraction d'un film d'eau savonneuse formé sur un cadre horizontal, séparé en deux parts par une aiguille juste posée sur le cadre, et percé d'un seul côté.

Dans le cas de l'ascension capillaire, la vision d'une force qui « tire » le liquide vers le haut contre les parois du tube est pourtant insuffisante. Il n'est en fait nullement besoin d'opérer avec des tubes capillaires pour voir le liquide défier la gravité : l'expérience du ménisque — cambrure de la surface à l'approche de la paroi — formé par l'eau faisant fi, localement et faiblement mais certainement, de son propre poids en remontant le bord du verre, est faite quotidiennement. Cette observation essentielle introduit à la fois la notion de mouillage, *i.e.* les propriétés d'adhésion ou répulsion d'un liquide à un substrat solide, et le rôle joué par la courbure de l'interface entre les fluides. Car la discontinuité entre les deux milieux que sépare l'interface s'accompagne, dès lors que cette dernière n'est pas plane, d'une discontinuité des pressions, comme il a été formalisé par LAPLACE, 1805 ; YOUNG, 1805, au cours de leurs recherches sur ce qui fait la cohésion des liquides. Le saut de pression, précisément, est inversement proportionnel à la courbure moyenne de l'interface et positif dans toute concavité de l'interface, le facteur de proportionnalité étant deux fois la tension de surface : une bulle de savon n'implose pas, elle explose du fait de la surpression du gaz interne. Pour une pression de gaz uniforme au-dessus du verre d'eau, et par extension au-dessus du tube capillaire (pour lequel les bords du verre ont été rapprochés au-dessous de taille critique ℓ_c), le ménisque est convexe : la pression sous la surface est plus faible qu'au centre du verre, et le liquide n'a d'autre choix, pour équilibrer le gradient hydrostatique, que l'ascension.

Entre la surface et le volume, la question a longtemps fait débat de la continuité et constance, ou non, des caractéristiques volumiques. Lorsque Carlo Marangoni, professeur de lycée à Florence, en Italie, publie, en 1872, son fameux mémoire (MARANGONI, 1872), il entend démontrer, grâce à des expériences détaillées et avec une déférence particulièrement marquée envers l'illustre M. Plateau, membre de l'Académie royale de Belgique depuis 40 ans, l'imprécision de la notion de viscosité *superficielle* avancée par le physicien belge (PLATEAU, 1868). Bien que la revue *Il Nuovo Cimento*, qui publie le mémoire original puis une traduction de la réponse de Joseph Plateau, s'en défende, la contro-

verse est lancée. À la place de la notion de viscosité superficielle, dont la valeur dans les couches fluides superficielles serait différente de celle du volume, Marangoni propose par analogie avec les solides celle d'élasticité de surface pour expliquer la dynamique d'une aiguille aimantée posée à la surface d'un bain puis placée au milieu, expérience centrale dans la controverse. Il avance également l'idée de la probable existence d'une sorte de pellicule qui se formerait à la surface. Devant le violent rejet par Plateau, Marangoni défend cette dernière proposition dans les numéros 1, 2 et 3 du troisième volume la revue italienne, en la rebaptisant contamination, ou pollution de la surface, d'après les travaux de Quincke (QUINCKE, 1870 ; MARANGONI, 1878).

Le XIX$^{\text{è}}$ siècle est donc, dans la visée dynamique, consacré à la recherche de la nature des surfaces libres, comme le résument les historiques de PLATEAU, 1868 ; DUCLAUX, 1870 ; KELVIN, 1871 ; MAXWELL, 1878, et plus de cent ans après POMEAU et VILLERMAUX, 2006. Il est également l'âge d'or de la thermodynamique, et les contributions majeures de DUPRÉ, 1869 ; GIBBS, 1874-1878 viennent considérer les phénomènes interfaciaux d'un point de vue énergétique. Dans le liquide, par définition cohésif, les molécules s'attirent les unes les autres, et il faut fournir un travail pour les séparer, *i.e.* pour créer de la surface. La tension superficielle, faisant le pont avec les précédentes définitions, est également cette énergie par unité de surface. Libre, cette énergie tend à être, à l'équilibre, minimale. De là découle le principe de minimisation de la surface d'un volume donné de liquide, à l'origine de la forme complexe prise par un film de savon suspendu à une charpente polyédrique quelconque ; de la forme sphérique des gouttes affranchies de la gravité ; ou encore de la déstabilisation d'une colonne liquide, pour ne citer que les remarquables observations de PLATEAU, 1873. L'interprétation énergétique permet finalement, avec succès et en invalidant l'hypothèse d'une « couche superficielle » plus épaisse qu'une molécule, de donner à la tension de surface un ordre de grandeur (ADAMSON & GAST, 1997). Pour $k_B T$ l'échelle d'énergie thermique, du même ordre de grandeur que les interactions moléculaires dans le liquide (k_B est la constante de Boltzmann, T la température thermodynamique), à appliquer sur la surface d^2, avec d la taille typique moléculaire (entre l'angström et le nanomètre), la tension de surface est évaluée aux températures courantes entre 1 et 100 mJ m^{-2}. Soit la valeur de la tension de surface pour les liquides usuels.

Lames, lamelles, films

Fascinante, poétique, irisée, la bulle de savon est également au cœur des préoccupations du XIX$^{\text{è}}$ siècle. Qu'on ne s'y trompe pas, c'est bien de stabilité des *films*, ou lames pour reprendre le vocable en usage, qu'il est question : une fine couche de liquide présentant au moins une surface *libre*, en contact avec un autre fluide, couramment l'air. Si l'on songe à la suite de Plateau que « tous [les liquides] doivent être susceptibles de se convertir en lames minces » (PLATEAU, 1867, §41), on mesure l'intérêt et les potentiels impacts de l'étude.

Bien qu'aujourd'hui le sens de « film » renvoie premièrement à un film déposé et à la vaste problématique du mouillage, à laquelle pourra nous introduire de GENNES, BROCHARD-WYART et QUÉRÉ, 2002, la lame est historiquement suspendue, à un cadre ou charpente polyédrique, ou à l'état de bulle (LEIDENFROST, 1756 ; LAMARLE, 1865 ; PLATEAU, 1868). Les deux cas ne sont pas si semblable qu'il n'y paraît à première vue : outre la dynamique complexe de la ligne de contact entre le substrat solide et le liquide au bord d'un film déposé, il ne suffit pas de symétriser ce dernier pour obtenir une lame libre. La

condition de vitesse nulle imposée par le substrat solide, en particulier, rend la viscosité incontournable dans l'étude des films déposés, là où elle est peut être négligée, la vitesse ayant seulement à être de dérivée nulle au centre d'un film suspendu symétrique. La dynamique au bord d'un film suspendu — dont les deux interfaces sont libres — n'en est pas moins riche de sens physiques, sur lesquels il est utile, pour la suite, de s'arrêter.

Rétraction

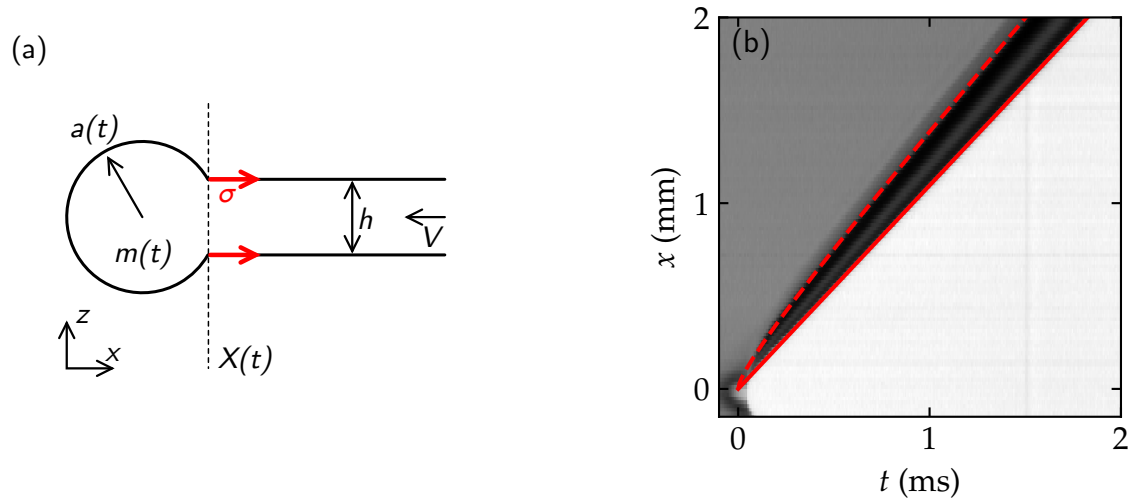

FIGURE 2 – Rétraction d'un film liquide. (*a*) Schéma de principe et notations. (*b*) Diagramme spatio-temporel d'un film d'eau d'épaisseur $h = 120$ µm percé en $t = 0$. En ligne pleine rouge est tracée la croissance du trou, à la vitesse constante $V_{TC} = \sqrt{2\sigma/\rho h}$, et en traits pointillés la croissance du bourrelet.

Considérons un liquide, de tension de surface σ, masse volumique ρ et viscosité cinématique ν, dont on forme un film plan, intégralement suspendu et d'épaisseur h uniforme et constante. Les phénomènes envisagés ci-après sont plus lents que l'échelle de temps h^2/ν : tout se passe comme si la quantité de mouvement était instantanément transmise à travers l'épaisseur du film. La vitesse dans le film, de même que toute autre grandeur prise dans le volume, est alors considérée uniforme selon l'épaisseur. On envisage de plus un écoulement uniforme, de vitesse constante V, dirigé selon l'une des deux directions formant le plan du film. Dans cette direction x orientée contre la vitesse V, le film s'interrompt en un bourrelet situé à une coordonnée $X(t)$ (figure 2a). Le film est invariant selon la direction perpendiculaire y.

On se donne pour système d'étude le bourrelet liquide, de masse variable $m(t)$ (par unité de longueur dans la direction invariante y). La conservation de celle-ci traduit simplement l'alimentation du bourrelet par le flux de matière $-\rho h(V - \dot{X})$:

$$\dot{m} = -\rho h(V - \dot{X})\,. \tag{0.1}$$

Dans tout plan de coupe xz, le film est soumis à la seule force de rétraction capillaire σ, qui s'applique aux deux interfaces. La conservation de la quantité de mouvement s'écrit dans ces conditions :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\left(m\dot{X}\right) = 2\sigma - \dot{m}V\,. \tag{0.2}$$

Loi de Taylor-Culick

Le raisonnement précédent trouve une première application dans le cas d'un film initialement au repos, $V = 0$. Un régime permanent ($\ddot{X} = 0$) est atteint pour une vitesse du bourrelet $\dot{X}$ constante, égale à V_{TC}, avec

$$V_{TC} = \sqrt{\frac{2\sigma}{\rho h}}\,. \tag{0.3}$$

Cette loi a été dérivée par TAYLOR, 1959b et CULICK, 1960, corrigeant d'un facteur $\sqrt{2}$ la formule donnée par DUPRÉ, 1867 — qui met pourtant en évidence, un siècle plus tôt, les tendances correctes. La prise en compte de la divergence radiale, dans le cas d'un film au repos percé circulairement, ne modifie pas la loi (0.3). Elle intervient en revanche dans la conservation de la matière et par suite dans la dépendance temporelle de $m(t)$. En perçant en un point à $t = 0$ un film immobile, le liquide est collecté en un tore de masse $m(t) = 2\pi^2\rho a(t)^2 X(t)$, avec $X(t) = V_{TC}t$ par (0.3) et $a(t)$ le rayon du cercle engendrant le tore. Ce liquide provient évidemment du volume $\pi X(t)^2 h$ du trou formé, d'où il vient

$$a(t) = \sqrt{\frac{X(t)h}{2\pi}} = \sqrt{\frac{V_{TC}ht}{2\pi}}\,. \tag{0.4}$$

La figure 2b illustre l'excellent accord de la théorie à l'expérience, dans le cas de l'ouverture ponctuelle d'un film d'épaisseur constante. La précision est telle qu'elle fait de la technique une méthode fiable et simple à mettre en œuvre pour mesurer l'épaisseur des films, dans la gamme 1-100 µm qui nous intéresse.

Extension de la nappe de Savart

Un second cas mérite l'analyse, d'un film évoluant à vitesse constante, et d'épaisseur lentement variable. La situation est réalisée, en suivant les expériences originales menées par SAVART, 1833b, grâce au choc, suivi de la déflection, d'un jet cylindrique laminaire sur une surface : il se forme en régime permanent une nappe liquide d'une certaine extension R. La situation est symétrique, d'axe confondu à celui du jet. Une fois sorties de la zone d'impact, dont la taille est de l'ordre du diamètre du jet, les particules fluides sont en mouvement ballistique : la vitesse V est purement radiale et constante, dès lors que la gravité est négligée. Par suite et par conservation du débit volumique, l'épaisseur décroît en raison inverse du rayon r, fait vérifié expérimentalement (CLANET & VILLERMAUX, 2002). L'extension de la nappe se fait alors à l'épaisseur $h = h_{TC}$ qui équilibre le flux entrant de quantité de mouvement à la rétraction due à la tension de surface :

$$\rho h_{TC} V^2 = 2\sigma\,. \tag{0.5}$$

L'extension R_{TC} dérive de la loi d'amincissement radial $rh(r) = \text{const.}$, évaluée en amont de la déflection (voir chapitre 2). Le modèle, fondé uniquement sur la conservation de la quantité de mouvement, ne prend toutefois pas en compte l'évacuation du liquide hors du bourrelet, c'est-à-dire l'inviolable conservation de la masse. L'extension $R = R_{TC}$ doit donc être comprise comme une valeur théorique maximale, l'extension réelle, non uniforme sur le tour de la nappe, étant en moyenne inférieure lorsqu'est considérée la dynamique d'évacuation (GORDILLO, LHUISSIER & VILLERMAUX, 2014).

Ondes variqueuses, ondes sinueuses

La tension de surface, selon l'interprétation la plus courante, est une force, par unité de longueur, de rappel. À ce titre, une interface dont la position d'équilibre stable est perturbée va être en mesure, de proche en proche, de propager cette perturbation. En d'autres termes, de générer et propager des ondes. Cas d'école, les ondes à la surface d'un bain soumis à la gravité (la surface est plane à l'équilibre) constituent l'exemple-type des ondes *dispersives*, *i.e.* dont l'enveloppe d'un paquet d'ondes se déforme en propageant ses diverses composantes à des vitesses différentes. La dérivation de la relation de dispersion des ondes gravito-capillaires fait partie du cursus élémentaire en hydrodynamique, en profondeur infinie comme à toute profondeur (LIGHTHILL, 1978). L'enseignement des ondes dans un film totalement suspendu, pour clairement établies par TAYLOR, 1959a, sort toutefois du cadre canonique.

L'analyse de la propagation fait de nouveau l'économie de la gravité, étant données les petites échelles spatiales mises en jeu, comme de la viscosité. Les ondes capillaires sont alors de deux types, pour lesquels nous envisageons d'emblée la limite d'ondes de grande longueur λ devant l'épaisseur h du film, hypothèse couramment vérifiée dans la pratique. Les ondes sinueuses, sans modification d'épaisseur ni transfert de matière le long du film, ne sont pas dispersives dans cette limite. Elles se propagent à la vitesse de Taylor-Culick précédemment dérivée :

$$\omega^2 = \frac{2\sigma}{\rho h} k^2 , \tag{0.6}$$

où $\omega/2\pi$ est la fréquence du mode $k = 2\pi/\lambda$. Plus intéressantes encore sont les ondes variqueuses, résultant d'une perturbation de l'épaisseur h du film. Le jeu des pressions de Laplace, positive dans les crêtes, négative dans les creux, génère un écoulement stabilisant. La relation de dispersion :

$$\omega^2 = \frac{\sigma h}{2\rho} k^4 , \tag{0.7}$$

est (à un facteur 2 près) celle qui régit les rides capillaires dans une flaque de faible épaisseur. Cette structure dispersive $\omega \propto k^2$ a deux conséquences remarquables. Premièrement, des modes peuvent se propager plus vite que la vitesse de Taylor-Culick et apparaître en tant que rides devant le bourrelet marquant l'ouverture d'un film (figure 2b). L'évolution typique des crêtes de ces rides, en racine du temps, en fait finalement un critère de caractérisation plus facile d'utilisation que la relation de dispersion.

Fragmentation

Instabilité de Savart-Plateau-Rayleigh-Weber-Eggers

Autre géométrie élémentaire qui a participé à l'élaboration de la notion de capillarité telle que nous la connaissons est la forme columnaire. Les veines, ou jets, observées il y a presque deux siècles par SAVART, 1833a sont connues pour se déstabiliser spontanément, d'après les observations détaillées par PLATEAU, 1849 (figure 3a). À la différence du film plan, considéré invariant selon une direction et sur lequel peuvent se propager des ondes capillaires stables, l'interface perturbée d'un cylindre liquide de rayon a doit être caractérisée par *deux* rayons de courbure. Une perturbation axisymétrique de la position

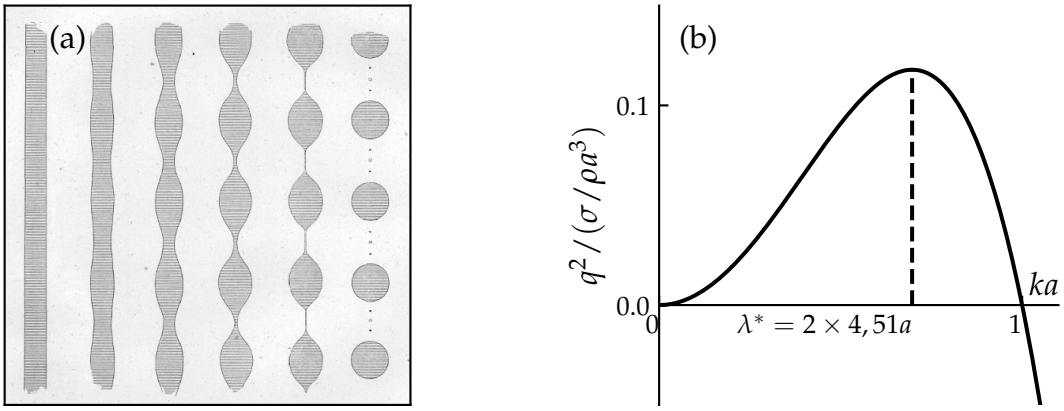

FIGURE 3 – Instabilité de Plateau-Rayleigh. (a) Déstabilisation d'un cylindre de rayon a (PLATEAU, 1849, fig. 30). (b) Relation de dispersion : taux de croissance q en fonction du nombre d'onde $k = 2\pi/\lambda$ adimensionné par a.

radiale de l'interface se traduit, après application de la loi de Laplace-Young, par des surpressions à l'endroit des creux et des dépressions à l'endroit des crêtes. Du point de vue énergétique, la perturbation de nombre d'ondes k se traduit au premier ordre par une diminution de surface, donc d'énergie surfacique $\sigma\left(1 - (ka)^2\right)$. L'écoulement résultant des creux vers les crêtes renforce la perturbation : elle est instable, pour toute longueur d'onde plus grande que le rayon du cylindre (PLATEAU, 1849). La mise en équation de l'instabilité linéaire est due à RAYLEIGH, 1878, qui donne le taux de croissance $q(k)$ d'une perturbation à la longueur d'onde $\lambda = 2\pi/k$ (figure 3b). Il est une longueur d'onde particulière λ^*, mode le plus instable, pour lequel la croissance de la perturbation est la plus rapide. Numériquement, ce mode est à l'échelle de a, le rayon initial du cylindre :

$$\lambda^* = 4.51 \times 2a\,. \tag{0.8}$$

WEBER, 1931 analyse la situation en considérant des tranches de fluide uniforme, approximation qualifiée d'ondes longues. Le formalisme permet en particulier la prise en compte de corrections visqueuses et, envisagé à des temps plus longs, de prédire la dynamique du pincement (*pinch-off* en anglais) d'où provient la séparation de la colonne de fluide en fragments (EGGERS, 1993).

Fragmentation

La figure de fragmentation idéale issue de cette instabilité est une collection de gouttes monodisperses, de diamètre individuel :

$$d_{PR} = 1.89 \times 2a\,. \tag{0.9}$$

Ce faisant, le liquide (dont le volume est évidemment conservé), présente une surface moindre au milieu extérieur, ce que l'on peut interpréter *a posteriori* comme une manifestation du principe de minimisation de l'aire d'interaction. Mais, comme l'avait déjà remarqué PLATEAU, 1849, un cylindre ne se déstabilise pas en une collection monodisperse de gouttes : une petite fraction du volume initial alimente des gouttelettes intermédiaires, nommées satellites (figure 3b et DONNELLY et GLABERSON, 1966 ; LEE, 1974).

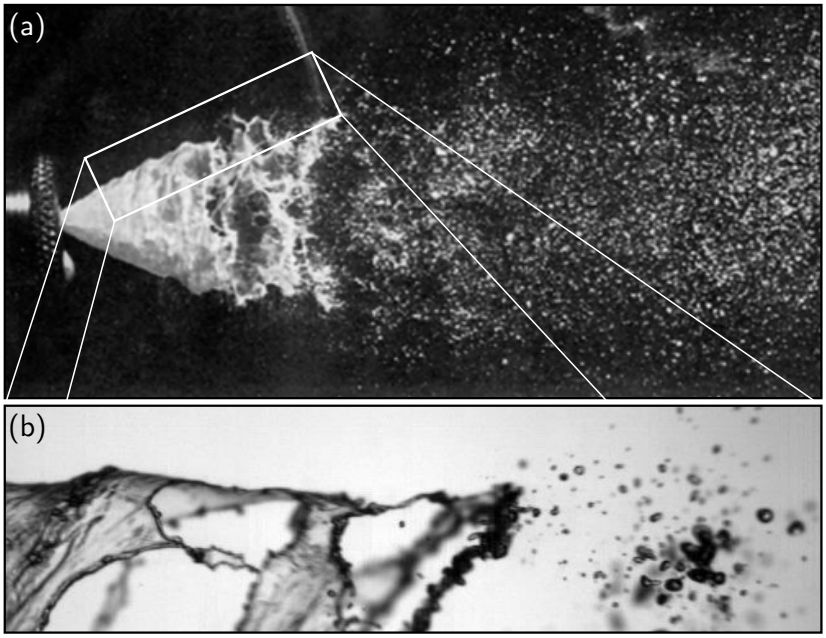

FIGURE 4 – Fragmentation en sortie d'un spray. (*a*) Illustration reproduite de DOMBROWSKI et FRASER, 1954 (fig. 22). (*b*) Détail, à la manière de Dombrowski. Noter la nucléation de trous dans la nappe et la forte dispersion des tailles de gouttes.

Si l'analyse linéaire de Rayleigh nous a introduit au champ de la fragmentation liquide — l'art de diviser un volume fluide —, la présence intrigante des gouttes satellites n'est qu'une pâle illustration de sa riche complexité. Par la réduction des volumes, rapidement en-deça de la longueur capillaire, la gravité est négligée et la fragmentation, indubitablement, intrinsèquement, est une théorie capillaire. Le problème posé est alors celui de la production de fragments, par un quelconque procédé physique : tailles, vitesses, énergies, amplitudes d'oscillation autour de la forme sphérique stable, etc. La question demeure ouverte de la taille minimale des fragments créés, naïvement bornés par la taille atomique. Le terme « atomisation », précédemment employé, laissait entendre que la division atteignait ces tailles, ce qu'aucun mécanisme n'est encore venu montrer (VILLERMAUX, 2007). Car la fragmentation s'intéresse ensuite, et même davantage qu'à la caractérisation des fragments, aux mécanismes qui mènent d'un état initial homogène à un état final fragmenté. La prépondérance du scénario de Plateau-Rayleigh, à ce titre et malgré ses limites, n'est plus à prouver. À l'autre extrémité du spectre de complexité, il s'agit en somme de la physique des brumisateurs, des sprays et jusqu'à celle de la pluie, comme les ont étudiés les pionniers DOMBROWSKI et FRASER, 1954 (figure 4). Les développements modernes complètent la figure idéale de Plateau en prenant en compte la rugosité inévitable des structures ligamentaires VILLERMAUX, MARMOTTANT et DUPLAT, 2004 ; VILLERMAUX et BOSSA, 2009.

Auto-similarité

La vision macroscopique du paragraphe précédent, de la fragmentation comme décompte de gouttes, ne doit pas occulter le fait qu'entre, par exemple, un jet (instable) et une collection de gouttes (sa conséquence naturelle), il y a un changement topologique majeur : la continuité du liquide est brisée. Tant expérimental que théorique, le défi d'infé-

rer, à partir des équations de Navier-Stokes établies dès la première moitié du XIX^{è} siècle, est considérable. Les tailles et vitesses d'exécution des mécanismes nécessitent le développement de la visualisation rapide, et de méthodes numériques et analytiques permettant d'envisager le problème sous l'angle des singularités. L'étude récente de cette classe de phénomènes critiques nous rappelle, bouclant la boucle, au rôle fondamental de la tension de surface dans les procédés de réduction des tailles (EGGERS, 1993, 1997 ; EGGERS & VILLERMAUX, 2008).

Problématique

À travers un problème somme toute particulier, celui de la rupture des films, la question générale à laquelle se rattache cette thèse est celle de la fragmentation liquide. Comment, si l'on pose la question comme on le ferait avec un solide, « casse-t-on » un liquide ? Envisagé sur un film, le raisonnement de Plateau-Rayleigh prédit cette fois une *augmentation* de l'énergie surfacique : toute perturbation, en propageant des ondes, est stable vis-à-vis de la capillarité. Comment, dans ces conditions, casse-t-on un film liquide ?

Cette thèse se propose de répondre à la question par une approche expérimentale combinant de multiples points de vue. L'ambition n'est pas moins d'isoler des mécanismes, par des expériences simples et précises. Le premier chapitre en forme de prologue discute, en prenant appui sur un phénomène critique jusqu'ici non répertorié — la déstabilisation Marangoni d'un filament visqueux déposé à la surface d'un bain d'eau —, la notion de viscosité, à la fois transmission du mouvement et dissipation d'énergie. Un mécanisme Marangoni est ensuite détaillé et défendu comme source de nucléation de trous dans les films épais, problème encore vivement débattu. Le deuxième chapitre détaille la déstabilisation linéaire du film, le troisième la rupture. Le quatrième et dernier chapitre isole expérimentalement la collision de deux cylindres liquides, proposant une géométrie inédite pour le passionnant problème de l'impact de gouttes et l'inévitable question des éclaboussures, ou *splashing*. L'ensemble forme finalement, de la déstabilisation à la fragmentation, un scénario de rupture de film.

Références

ADAMSON, A. W. & GAST, A. P. (1997). *Physical Chemistry of Surfaces* (6th ed.). Wiley & Sons.

CLANET, C. & VILLERMAUX, E. (2002). Life of a Smooth Liquid Sheet. *J. Fluid Mech. 462*, 307-340.

CULICK, F. E. C. (1960). Comments on a Ruptured Soap Film. *J. Appl. Phys. 31*, 1128-1129.

de GENNES, P.-G., BROCHARD-WYART, F. & QUÉRÉ, D. (2002). *Gouttes, bulles, perles et ondes*. Échelles. Belin.

DOMBROWSKI, N. & FRASER, R. P. (1954). A Photographic Investigation into the Disintegration of Liquid Sheets. *Phil. Trans. R. Soc. Lond., Ser. A*, *247*, 101-130.

DONNELLY, R. J. & GLABERSON, W. (1966). Experiments on the Capillary Instability of a Liquid Jet. *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, *290*(1423), 547-556.

DUCLAUX, E. (1870). Sur La Tension Superficielle Des Liquides. *Ann. Chim. Phys. 21*, 378-435.

DUPRÉ, A. (1867). Sixième mémoire sur la théorie mécanique de la chaleur. *Ann. Chim. Phys. 11*, 194-220.

DUPRÉ, A. (1869). *Théorie Mécanique de La Chaleur*. Gauthier-Villars.

EGGERS, J. (1993). Universal pinching of 3D axisymmetric free-surface flow. *Phys. Rev. Lett. 71*(21), 3458-3460.

EGGERS, J. (1997). Nonlinear Dynamics and Breakup of Free-Surface Flows. *Rev. Mod. Phys. 69*(3), 865-930.

EGGERS, J. & VILLERMAUX, E. (2008). Physics of Liquid Jets. *Rep. Progr. Phys. 71*(3), 036601.

GIBBS, J. W. (1874-1878). *On the Equilibrium of Heterogeneous Substances* (Transactions of the Connecticut Academy of Arts and Sciences). Connecticut Academy of Arts and Sciences.

GORDILLO, J. M., LHUISSIER, H. & VILLERMAUX, E. (2014). On the cusps bordering liquid sheets. *J. Fluid Mech. 754*(R1), 1-11.

HAUKSBEE, F. (1709). *Physico-Mechanical Experiments on Various Subjects*. London.

JURIN, J. (1717). An Account of Some Experiments Shown before the Royal Society ; With an Enquiry into the Cause of the Ascent and Suspension of Water in Capillary Tubes. *Phil. Trans. 30*(351-363), 739-747.

KELVIN, Lord. (1871). Ripples and Waves. *Nature*, *5*(105), 1-3.

LAMARLE, E. (1865). Sur La Stabilité Des Systèmes Liquides En Lames Minces. *Mém. de l'Acad. roy. de Belgique*, *35*.

LAPLACE, P.-S. (1805). Sur l'action capillaire. In *Traité de Mécanique céleste*. Courcier.

LEE, H. C. (1974). Drop Formation in a Liquid Jet. *IBM J. Res. Dev. 18*(4), 364-369.

LEIDENFROST, J. G. (1756). *De Aquæ Communis Nonnullis Qualitatibus Tractatus*. Ovenius.

LIGHTHILL, S. M. J. (1978). *Waves in Fluids*. Cambridge University Press.

MARANGONI, C. (1872). Sul principio della viscosità superficiale dei liquidi stabilito dal sig. J. Plateau. *Il Nuovo Cimento*, *V-VI*, 239-273.

MARANGONI, C. (1878). Difesa della teoria dell'elasticità superficiale dei liquidi. Plasticità superficiale. *Il Nuovo Cimento*, *3*(1-3), 50-68, 97-115, 193-211.

MAXWELL, J. C. (1878). Capillary Action. In *Encyclopædia Britannica* (9th ed., T. 5, p. 56-71). New York : Samuel L. Hall.

NEWTON, I. (1718). *Opticks* (2nd ed). Innys. (Date de première publication 1704)

PLATEAU, J. (1849). Recherches expérimentales et théoriques sur les figures d'équilibre d'une masse liquide sans pesanteur (2è série). *Mém. de l'Acad. roy. de Belgique*, *23*.

PLATEAU, J. (1867). Recherches Expérimentales et Théoriques Sur Les Figures d'équilibre d'une Masse Liquide sans Pesanteur (7è Série). *Mém. de l'Acad. roy. de Belgique*, *36*.

PLATEAU, J. (1868). Recherches expérimentales et théoriques sur les figures d'équilibre d'une masse liquide sans pesanteur (8è série). *Mém. de l'Acad. roy. de Belgique*, *37*.

PLATEAU, J. (1873). *Statique Expérimentale et Théorique Des Liquide Soumis Aux Seules Forces Moléculaires*. Gauthier-Villars.

POMEAU, Y. & VILLERMAUX, E. (2006). Two Hundred Years of Capillarity Research. *Phys. Today*, *59*(3), 39-44.

QUINCKE, G. (1870). Ueber Capillaritäts-Erscheinungen an der gemeinschaftlichen Oberfläche zweier Flüssigkeiten. *Pogg. Ann. 139*(1), 1-89.

RAYLEIGH, Lord. (1878). On the Instability of Jets. *Proc. London Math. Soc. s1-10*(1), 4-13.

SAVART, F. (1833a). Mémoire sur la Constitution des Veines liquides lancées par des orifices circulaires en mince paroi. *Ann. Chim. Phys. 53*, 337-386.

SAVART, F. (1833b). Mémoire sur le Choc d'une Veine liquide lancée contre un plan circulaire. *Ann. Chim. Phys. 54*, 55-87.

SEGNER, I. A. (1751). De Figuris Superficierum Fluidarum. *Commentarii Societatis Regiae Scientarum Gottingensis*, *1*, 301-372.

TAYLOR, G. I. (1959a). The Dynamics of Thin Sheets of Fluid. II. Waves on Fluid Sheets. *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, *253*(1274), 296-312.

TAYLOR, G. I. (1959b). The Dynamics of Thin Sheets of Fluid. III. Disintegration of Fluid Sheets. *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, *253*, 313-321.

VILLERMAUX, E. (2007). Fragmentation. *Annu. Rev. Fluid Mech. 39*(1), 419-446.

VILLERMAUX, E. & BOSSA, B. (2009). Single-Drop Fragmentation Determines Size Distribution of Raindrops. *Nat. Phys. 5*(9), 697-702.

VILLERMAUX, E., MARMOTTANT, P. & DUPLAT, J. (2004). Ligament-Mediated Spray Formation. *Phys. Rev. Lett. 92*(7), 074501.

WEBER, C. (1931). Zum Zerfall eines Flüssigkeitsstrahles. *Z. Angew. Math. Mech. 11*(2), 136-154.

YOUNG, T. (1805). An Essay on the Cohesion of Fluids. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. 95*(0), 65-87.

Chapitre 1

Prologue : Instabilité Marangoni d'un filament visqueux

Introduction

Benjamin Franklin, après l'observation du dépôt d'une goutte d'huile à la surface de l'eau, faite sur le bassin du parc de Clapham (Londres), s'est astreint à toujours avoir dans un creux de sa canne un peu d'huile, dans le but de reproduire l'expérience en toute occasion (FRANKLIN, 1774). En ces temps de navigation et de découverte du monde clôturant l'époque moderne, la question est de savoir si, comme le clament de nombreux témoignages de marins, et même consignés par Aristote, Pline et Plutarque, l'huile a ou non la vertu de calmer les flots (van BEEK, 1842). Par la répétition de l'expérience en divers plans d'eaux, interprétée en termes d'attraction et de répulsion mutuelle des deux liquides, Franklin en conclut à la faculté qu'a l'huile de diminuer, sinon d'anéantir, les rides initiales générées par le vent.

FIGURE 1.1 – Iridescence produite lors de l'expansion d'une goutte d'essence de lavande déposée à la surface de l'eau (MARANGONI, 1865).

C'est de nouveau dans un parc, au jardin des Tuileries (Paris), que Carlo Marangoni mène ses observations (MARANGONI, 1865). La capacité de l'huile à supprimer les rides capillaires établie depuis Franklin, le savant italien cherche à comprendre son expansion rapide sur une eau *calme*. L'expérience, pourtant aisée à réaliser (figure 1.1), dépend fortement de la surface disponible à l'huile : l'observation en un grand bassin gagne en simplicité ce qu'elle perd en contrôle, dans sa version effectuée en laboratoire. La description

des phénomènes est détaillée, de l'iridescence centrale à l'avancée rapide d'un front (~ 1 m s^{-1}). Les faits sont finalement interprétés, à l'aide d'un large faisceau d'observations, en termes de différences de *forces contractiles*, participant du mouvement de formalisation de la notion plus générale de tension de surface (lire également MARANGONI, 1872).

Hommage est ainsi rendu au physicien italien en nommant *Marangoni* la contrainte tangentielle née d'une variation de tension de surface, cisaillement qui se transmet depuis la surface vers le cœur du liquide, de proche en proche par viscosité. L'inévitable rupture de l'équilibre mécanique à l'interface, discutée dans ce même moment de formalisation de toute une variété de phénomènes capillaires (lire par exemple DUPRÉ, 1867), engendre un écoulement également nommé Marangoni. La présomption de mouvement perpétuel évoquée par DUPRÉ, 1867 choque toutefois, et il est utile d'insister sur la nécessite de la viscosité, cette fois comme *dissipation*. Le rôle exact de la viscosité est cependant confirmé et formalisé plus tard, en partie à l'occasion de l'analyse des expériences de BÉNARD, 1901 par PEARSON, 1958. La déstabilisation en cellules hexagonales d'un film liquide chauffé par le fond est interprétée dans un premier temps par RAYLEIGH, 1916 comme une instabilité de volume, due à la variation de la masse volumique (donc de la flottabilité) avec la température. Inspirée par celle de Rayleigh, l'analyse de Pearson considère alternativement une dépendance en température de la tension de surface, concluant à la concurrence des deux mécanismes déstabilisateurs. Le gradient de tension superficielle dû à un flux de chaleur, modulé spatialement, sortant d'un bain liquide est mis en balance avec la viscosité du liquide en un nombre sans dimension, nommé *Ma* d'après le physicien florentin, dans la lignée des travaux de SCRIVEN et STERNLING, 1960 (NIELD, 1964).

Le problème initialement considéré de l'étalement d'huile à la surface de l'eau dérive d'une telle interprétation, comme l'explique qualitativement MARANGONI, 1865. Il peut devenir d'une importance stratégique dans ses conséquences et motivations pratiques, par exemple en matière de séchage par démouillage (LEENAARS, HUETHORST & VAN OEKEL, 1990 ; de GENNES, BROCHARD-WYART & QUÉRÉ, 2002) ; de pollution environnementale, où les implications peuvent être catastrophiques (HOULT, 1972 ; DIPIETRO, HUH & COX, 1978) ; ou, plus inattendu, de problèmes respiratoires (JENSEN & GROTBERG, 1992). De récentes études sur le sujet soulignent, en plus d'un intérêt renouvelé, la complexité des écoulements générés, en lien avec l'environnement (évaporation, mélange, etc. ROCHÉ et al., 2014 ; KEISER, BENSE, COLINET, BICO et REYSSAT, 2017 ; WODLEI, SEBILLEAU, MAGNAUDET et PIMIENTA, 2018).

La narration complète du phénomène nous conduit finalement, dans le cas d'une huile (partiellement ou totalement) miscible à l'eau, à l'étude de la dilution de la première dans la seconde. Fait initialement étudié dans le contexte de la turbulence et la lignée de KOLMOGOROV, 1941, un écoulement, spécifiquement un écoulement cisaillé, affecte qualitativement les propriétés « statiques » d'un phénomène diffusif. Le temps de mélange, temps auquel une distribution initiale d'une substance miscible au substrat s'est sensiblement diluée, s'en trouve généralement diminué. En effet les flux diffusifs (de concentration, de chaleur) répondent au gradient de la grandeur considérée, ce même gradient pouvant être extrêmement sensible à l'advection du substrat fluide. L'échelle spatiale de Batchelor met en compétition les deux effets, et il est d'une importance primordiale de déterminer, passé le temps de mélange, son évolution. Que cette échelle diminue vers 0 à temps long, et la diffusion comme source ultime de dissipation ne pourra plus régulariser la tendance : il s'agit là de la marque d'une classe de phénomènes critiques (BATCHELOR, 1959 ; VILLERMAUX, 2012, 2019).

Ce prologue prend appui sur une expérience de Marangoni revisitée pour discuter

différentes notions, en particulier la viscosité en tant que vecteur de la quantité de mouvement, dont la compréhension est requise dans la suite de la thèse. L'étalement d'une goutte visqueuse sur un bain liquide (section 1.1) est considéré comme un état de base pour l'analyse de la même expérience, réalisée en géométrie linéique (section 1.2). La géométrie est primordiale, puisque le filament déposé, à la différence de la goutte, est instable, initiant une cascade accélérée de déstabilisations auto-similaires, qui trouve son point d'arrêt dans la dilution finale de l'huile. La discussion sur la génération d'ondes à la surface d'un bain visqueux est étendue à un modèle de tension superficielle variable (section 1.3), avant de mener l'analogie avec l'étude du phénomène critique observé, cœur du chapitre (section 1.4). On remarquera finalement que s'il s'intéresse en premier chef à la déstabilisation d'un filin visqueux, ce chapitre ne perd pas de vue l'étude des films minces, également caractérisé par un grand rapport d'aspect.

1.1 Sur l'expansion d'une goutte visqueuse flottant à la surface de l'eau

1.1.1 Dispositif expérimental

Une goutte d'huile minérale, miscible à l'eau, est déposée à la surface d'un bain d'eau initialement au repos, reprenant l'expérience de MARANGONI, 1865. L'huile lubrifiante (référencée 75-H-90,000 chez la marque déposée UCON, commercialisée chez Dow) est régulièrement utilisée comme additif en solution aqueuse, par exemple dans le but de varier la viscosité d'un fluide sur plusieurs ordres de grandeurs. Elle est ici manipulée pure et possède une viscosité cinématique $\nu = 0.017\ \mathrm{m^2\ s^{-1}}$, soit 17 000 fois celle de l'eau.

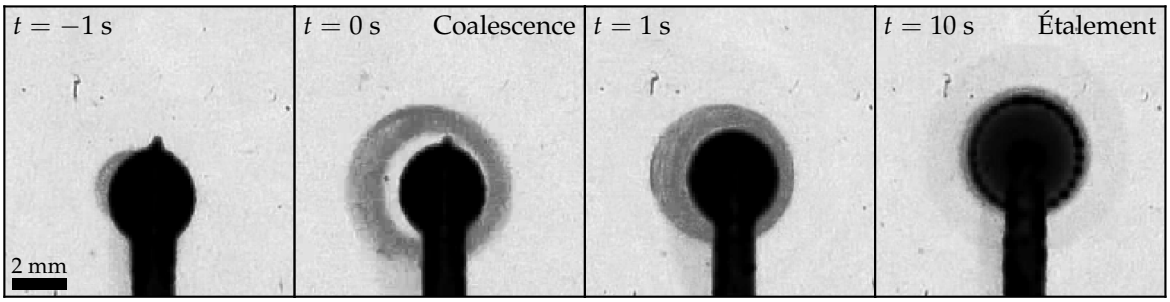

FIGURE 1.2 – Dépôt et maintien, à l'aide de la pointe d'une aiguille, d'une goutte d'huile visqueuse, miscible à l'eau, sur un bain d'eau. L'opération est visualisée à la verticale, en rétro-éclairage, de l'encre bleue (érioglaucine) étant dissoute dans l'huile.

La goutte, une fois délicatement déposée à la surface de l'eau, est maintenue en place de la façon la moins intrusive possible, à l'aide de la pointe qui a servi au dépôt (figure 1.2). L'étalement est enregistré selon deux points de vue signitificatifs :

— à la verticale de la surface (figures 1.2 et 1.4a),
— et par le côté, légérement incliné par-dessous la surface libre, à travers la paroi transparente de la cuve (figure 1.4b).

La distinction visuelle entre l'huile, transparente et d'indice de réfraction $n = 1.4661$ (d'après la documentation) et l'eau, d'indice $n = 1.33$ légèrement inférieur, n'est pas toujours aisée. Selon les configurations d'éclairage et d'observation, l'étalement de la goutte est autrement révélé en incorporant dans l'huile :

— du bleu brillant FCF, également nommé érioglaucine, une encre sombre dissoute dans l'huile et visualisée en rétro-éclairage,
— ou de la fluorescéine, ensuite excitée en volume par un réseau de diodes électroluminescentes (en anglais LED, figure 1.4c), ou par un plan laser vertical interceptant la surface libre horizontale, et par là un rayon de la goutte (figure 1.8), lorsqu'une puissance d'éclairage plus importante est requise.

Des particules de vélocimétrie PIV (*Particle Image Velocimetry*) incorporées dans la goutte, de même que des bulles d'air, fortuitement prisonnières de l'huile visqueuse et de temps de migration long devant celui de l'expérience, se sont révélées d'excellents traceurs. Qualitativement, l'incorporation d'encre ou de fluorescéine dans l'huile n'a pas eu d'effet notable sur les expériences, comme il a été vérifié par le placement d'un motif quadrillé, lors de l'observation en rétro-éclairage diffus du bain, entre la source lumineuse et le fond du bain (voir, dans la configuration expérimentale suivante, la figure 1.13). D'après les lois générales de la réfraction, la distorsion du motif nous renseigne à la fois sur les variations verticales de la surface libre, et sur les changements de composition du bain. Bien que de manière partielle car discrétisée aux lignes du motif, elle peut donner accès à la trajectoire au cours du temps d'un front ou autre oscillation de la surface.

Différence de tensions de surface

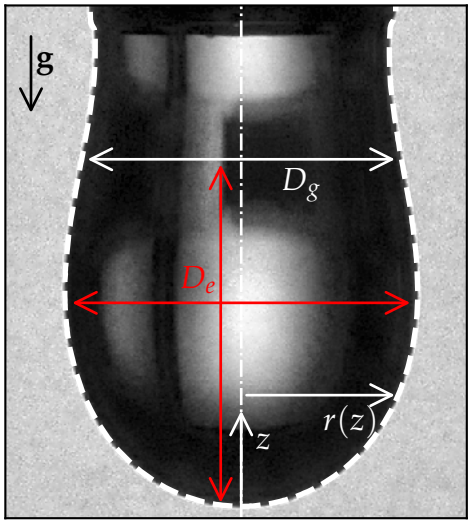

FIGURE 1.3 – Méthode de la goutte pendante (ANDREAS, HAUSER et TUCKER, 1938). La tension de surface est une fonction, tabulée, du rapport des diamètres D_g/D_e.

L'huile commerciale possède une tension de surface plus faible que celle de l'eau pure, $\sigma_H = 50$ mN m^{-1} d'après la documentation, contre $\sigma_E = 72$ mN m^{-1}, respectivement. Cette différence de tension de surface, à travers un écoulement de Marangoni, met l'huile en mouvement, en quelque sorte « tirée » par l'eau. Si, d'une expérience à une autre, et en particulier lorsque l'eau n'est pas renouvelée, la tension superficielle de l'huile est considérée comme constante, de valeur donnée par la documentation, il est d'une importance cruciale de mesurer celle du bain.

À cet effet, j'ai eu recours à la méthode de la goutte pendante. La forme statique d'une goutte liquide, petite devant la longueur capillaire et maintenue suspendue à un support

solide dans un champ de gravité **g**, est modelée et entièrement déterminée par la tension de surface. Les équations d'équilibre du liquide s'écrivent, en géométrie cylindrique (r, θ, z) (dont l'axe Oz coïncide avec la direction du champ de gravité, cette dernière étant orientée vers les z négatifs, voir figure 1.3) :

$$\partial_z p = -\rho g \tag{1.1.1a}$$

$$\Delta p = \sigma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right), \quad \text{en } r = r(z). \tag{1.1.1b}$$

La loi hydrostatique (1.1.1a) est la condition d'équilibre du volume de liquide dans le champ de pesanteur, avec p la variable de pression et ρ la masse volumique. La loi de Laplace (1.1.1b) à la surface de révolution $r = r(z)$ — la forme de la goutte —, exprime la continuité des contraintes par un saut de pression Δp à la traversée de l'interface, avec σ la tension de surface et $R_1 = r(z)\sqrt{1 + r'(z)^2}$ et $R_2 = -(r''(z)/(1 + r'(z)^2)^{3/2})^{-1}$ les rayons de courbure principaux de la surface (l'apostrophe dénote la dérivation par rapport à z).

L'intégration de (1.1.1a) depuis l'extrémité inférieure de la goutte, où $r'(z) = +\infty$ et $R_1 = R_2 \equiv R_S$, donne la forme $r = r(z)$ de la goutte pendante comme solution de l'équation maîtresse :

$$r''(z) = \frac{1 + r'(z)^2}{r(z)} + \left(1 + r'(z)^2\right)^{3/2} \left(\frac{z}{\ell_c^2} - \frac{2}{R_S} \right), \tag{1.1.2}$$

avec $\ell_c = \sqrt{\sigma/\rho g}$ la longueur capillaire. Dans cette étape, la pression ne dépend évidemment que de l'altitude z.

À la coûteuse optimisation de l'équation (1.1.2) sur les contours expérimentaux de la goutte, on préfère la méthode proposée par ANDREAS, HAUSER et TUCKER, 1938. La tension superficielle est directement le résultat d'une fonction H, tabulée, du rapport de deux diamètres (à l'équateur D_e et à la gorge D_g, voir figure 1.3), paramètres physiques plus aisés et rapides à manipuler. L'erreur faite par l'approximation numérique, 3×10^{-4} au maximum pour les expressions explicites de H, approchées et dérivées par MISAK, 1968, figure bien en-deça de l'erreur obtenue en effectuant une mesure moyenne sur plusieurs gouttes.

Expérimentalement, le diamètre équatorial D_e est détecté (et vérifié *a posteriori*) comme le (double du) maximum du profil $r(z)$ de la goutte, obtenu par seuillage (figure 1.3). La mesure du diamètre de gorge D_g à l'altitude $z = D_g$ suit immédiatement, puis donne, via la fonction H tabulée par MISAK, 1968, la valeur σ de la tension de surface du liquide constitutif de la goutte pendante par :

$$\sigma = \frac{\rho g D_e^2}{H(D_g/D_e)}. \tag{1.1.3}$$

1.1.2 Phénoménologie

Étalement visqueux

Au dépôt, la coalescence de la goutte et du bain génère un train d'ondes capillaires, de nombre d'onde typique $k = 2\pi/a$, avec $a \sim 1$ mm la taille caractéristique de la goutte. Le paquet d'ondes se déplace à la vitesse capillaire $v_C \sim \sqrt{\sigma k/\rho}$, typiquement 0.1 à 1 m s^{-1}, valeur 1000 fois plus élevée que les échelles observées et décrites ci-après. S'établissent ensuite deux zones distinctes, présentées selon deux points de vue différents figure 1.4 :

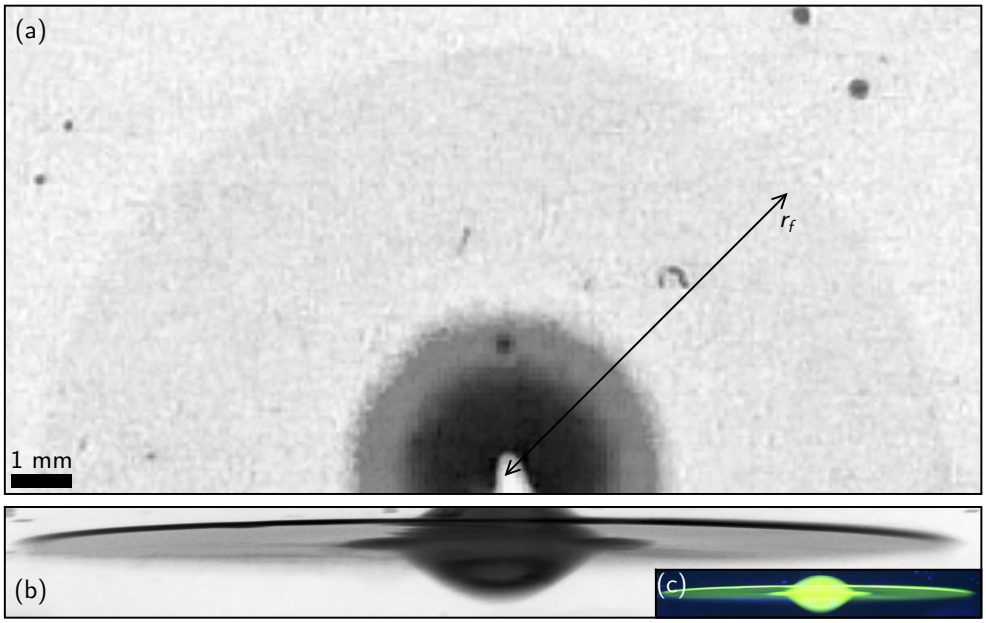

FIGURE 1.4 – Vues de gouttes au cours de leur étalement. (a) La goutte, colorée, est vue par le dessus, 18 secondes après sa coalescence avec le bain. On distingue en niveaux de gris une nappe circulaire entourant la goutte, d'un rayon r_f égal à 7.5 mm. (b) La goutte et sa nappe sont visualisées par le côté, légèrement de biais sous la surface de l'eau. (c) L'image originale est obtenue grâce à un réseau de LED bleues excitant la fluorescéine incorporée dans la goutte.

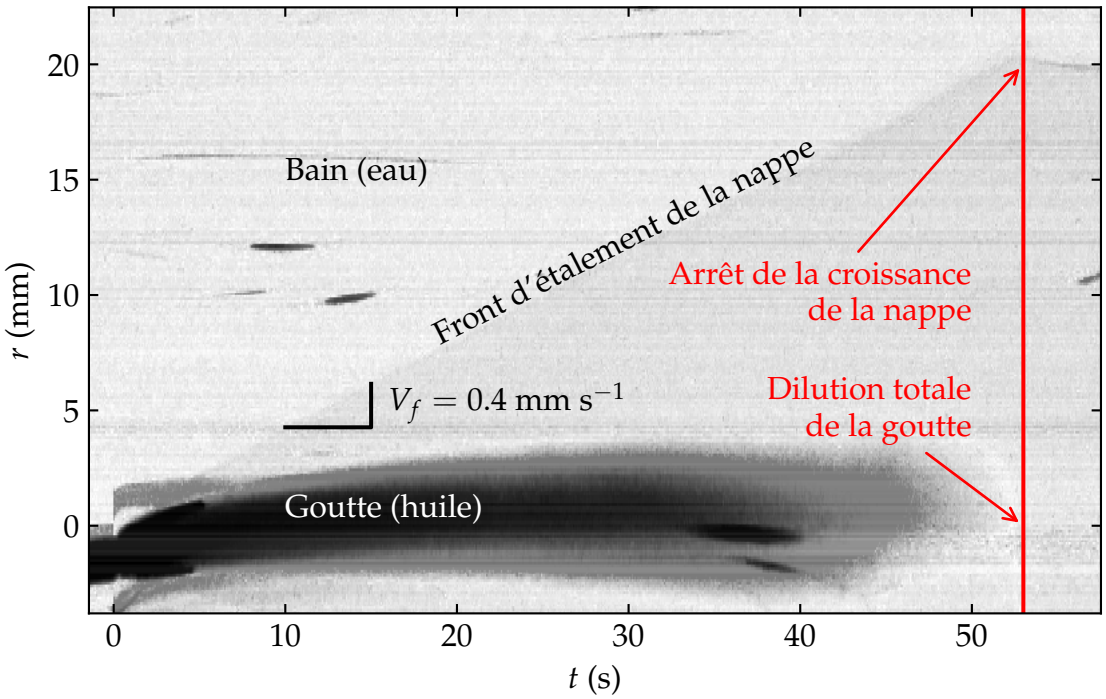

FIGURE 1.5 – Étalement radial (rayon r) d'une goutte d'huile minérale, miscible à l'eau, sur un bain d'eau. La goutte, dans laquelle a été préalablement dissout de la fluorescéine, est éclairée en volume par un réseau de LED. L'épaisseur de la jupe est estimée par conservation du volume initial à $e \approx 8$ µm.

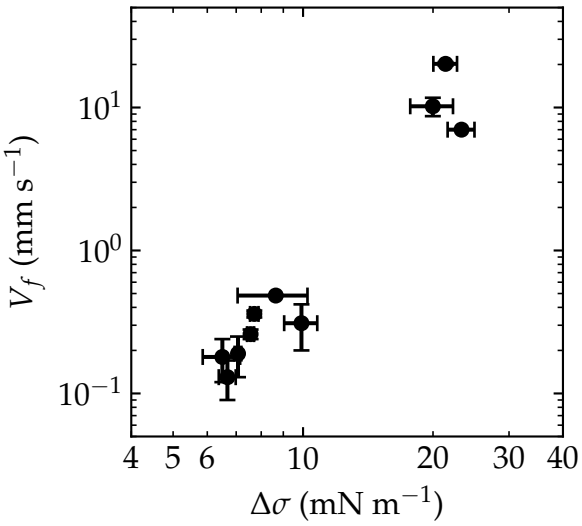

FIGURE 1.6 – Vitesse d'étalement en fonction du moteur de l'écoulement Marangoni $\Delta\sigma$.

1. le cœur de la goutte, conservant jusqu'à un temps élevé la majeure partie du liquide, agit comme un réservoir.
2. une jupe, ou nappe, d'huile, se répand à la surface de l'eau.

De manière surprenante au regard des différents régimes algébriques d'étalement connus (HOULT, 1972 ; TANNER, 1979 ; DENKOV, COOPER & MARTIN, 1999 ; VERNAY, RAMOS, WÜRGER & LIGOURE, 2017), la croissance du front de la jupe est linéaire, de vitesse constante V_f (figure 1.5). Le moteur de l'étalement de cette nappe est un écoulement de Marangoni, qui s'établit en raison de la plus grande valeur de tension de surface de l'eau, vis-à-vis de l'huile. L'écoulement est caractérisé directement par la différence des tensions superficielles $\Delta\sigma = \sigma_E - \sigma_H > 0$, avec σ_E et σ_H les tensions respectives de l'eau et de l'huile. Fait expérimental notable, la vitesse du front V_f est très sensible à l'état de surface de l'eau, en d'autres termes à la valeur de sa tension superficielle. Cette dernière, initialement celle de l'eau pure, est progressivement diminuée par adjonction de faibles quantités d'huile, négligeables en ce qui concerne les variations de viscosité ou de masse volumique du bain. La variabilité de V_f, mesurée pour différentes valeurs de $\Delta\sigma$, le moteur de l'écoulement de Marangoni, présente une croissance algébrique rapide (figure 1.6).

De façon plus spectaculaire encore, la croissance de la nappe s'arrête dès l'instant où la goutte-réservoir achève de se vider, *i.e.* à sa dilution totale dans le bain. L'évènement a typiquement lieu quelques dizaines de secondes après la coalescence, comme il a été mis en exergue dans la figure 1.5. L'épaisseur e de la nappe est à ce point estimée grossièrement, par conservation du volume d'huile initial $\pi d_g^3/6$, où d_g est le diamètre de la goutte initiale, dans le volume de la nappe $\pi e d_M^2/4$, où d_M est le diamètre d'expansion maximal de cette dernière. Pour des gouttes typiquement millimétriques, la nappe atteint un diamètre de quelques centimètres, donnant l'échelle de l'épaisseur autour de $e \sim 10$ µm.

Profilométrie

La coloration de l'huile, alternativement par une encre ou par de la fluorescéine éclairée en volume par un réseau de LED, donne un accès qualitatif au profil radial d'épaisseur

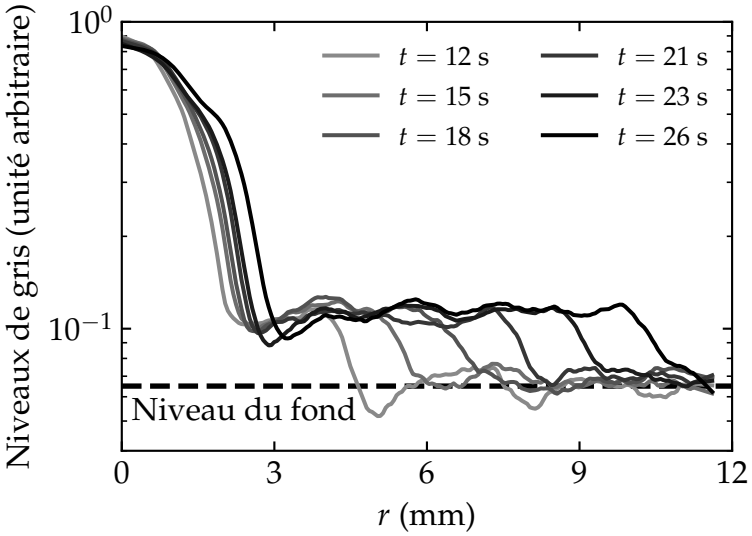

FIGURE 1.7 – Profils radiaux de niveaux de gris au cours de l'étalement d'une goutte. Cette dernière est préalablement colorée avec de la fluorescéine et éclairée en volume à l'aide d'un réseau de LED. On retrouve l'avancée à vitesse constante $V_f = 0.3$ mm s^{-1} du front de la nappe.

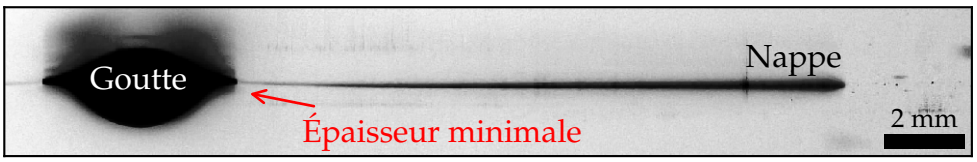

FIGURE 1.8 – Coupe radiale d'une goutte en train de s'étaler, mise en évidence par un plan laser vertical et observée par le côté, sous la surface de l'eau. Le bain est éclairé par le dessus.

dans la goutte. La mesure, intégré verticalement, gomme tout effet de diffusion mutuelle dans cette direction, aussi ne sommes-nous pas en mesure de relier quantitativement — ce qui sera fait au chapitre 3 — l'épaisseur de la nappe au niveau de gris des images. La figure 1.5 tirait déjà profit, en cartographie bidimensionnelle, du principe précédent. Il n'est pas étonnant, de ce fait, de retrouver la croissance linéaire du front d'étalement de la nappe en traçant, comme c'est le cas figure 1.7, des profils radiaux d'intensité lumineuse à différents instants successifs.

Cette visualisation met de plus en évidence, dans le cas de la coloration de l'huile par fluorescéine (respectivement par érioglaucine), l'existence d'un minimum d'intensité (resp. d'un maximum), correspondant, au premier ordre, à un minimum d'épaisseur de la nappe. On retrouve, par l'observation d'une coupe radiale effectuée à l'aide d'un plan laser vertical, la présence de ce minimum d'épaisseur (figure 1.8). La croissance algébrique de ce dernier, lente devant l'avancée du front de la nappe (voir le diagramme spatio-temporel figure 1.5), est à relier au régime d'affaissement et d'étalement visqueux du cœur de la goutte sur l'eau.

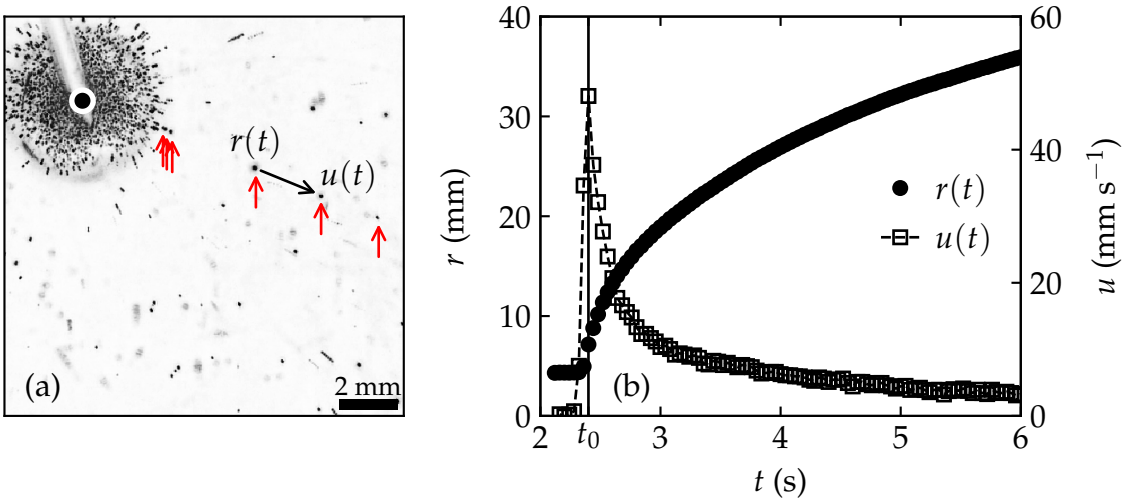

FIGURE 1.9 – Vélocimétrie par suivi individuel de traceurs. (a) Superposition de 6 instants successifs. Les flèches rouges mettent en évidence la trajectoire radiale d'une particule PIV incorporée dans la goutte (en haut à gauche). (b) Trajectoire ($r(t)$, •) et vitesse ($u(t) = \dot{r}(t)$, □) radiales d'une particule au cours du temps t. Le temps t_0 est défini comme l'instant de vitesse maximale sur la trajectoire.

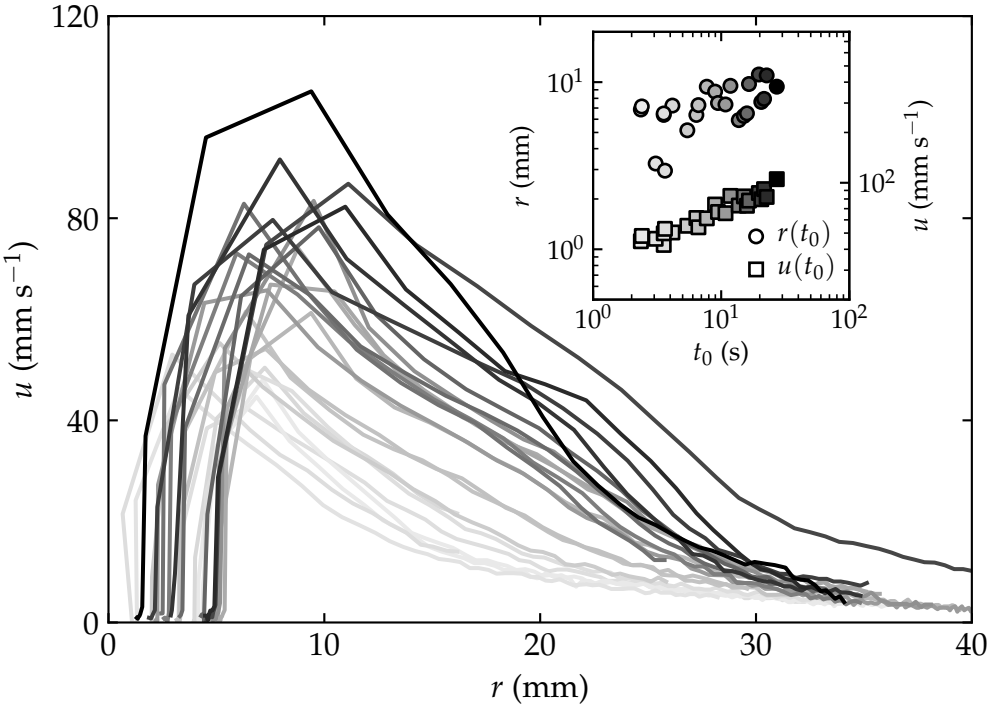

FIGURE 1.10 – Espace des phases $\{r(t), u = \dot{r}(t)\}$ pour un faisceau de trajectoires $r = r(t)$ au cours de l'étalement d'une goutte d'huile à la surface de l'eau. La durée de chaque trajectoire étant petite devant celle de l'étalement, il s'agit d'une représentation fidèle du champ de vitesse $u_r(r,t)$. *Insert :* Caractérisation de l'élargissement des profils par le rayon d'occurrence du maximum de vitesse ($r(t_0)$, ○) et sa valeur ($u(t_0)$, □). Le niveau de gris des lignes et symboles dénote la position temporelle t_0 de chaque trajectoire le long de l'étalement de la goutte.

Vélocimétrie

Des particules de vélocimétrie PIV, de diamètre $d_p = 10$ µm et de densité proche de 1, sont incorporées à l'huile avant son dépôt, de manière à suivre l'écoulement dans la goutte et la nappe. La viscosité importante de l'huile domine complètement la dynamique des traceurs, que l'on considère donc passifs au regard des très faibles valeurs ($10^{-9} - 10^{-8}$) de leur nombre de Stokes. L'objet visqueux à l'étude étant relativement petit et la densité de particules suffisamment faible pour être en mesure de les distinguer individuellement, il s'agit ici de suivi lagrangien de particules (*Particle Tracking Velocimetry* ou PTV en anglais), et non d'une mesure eulérienne (*Particle Image Velocimetry*, ou PIV). Les trajectoires des traceurs, strictement radiales, sont mesurées au cours du temps t — compté à partir du dépôt de la goutte — selon les coordonnées polaires $(\theta, r(t))$ centrées sur la goutte. La vitesse radiale $u(t) = \dot{r}(t)$ est calculée par différences finies (voir un exemple de trajectoire sur la figure 1.9).

Une fois la goutte déposée ($t > 0$), chaque traceur, localisé initialement dans la goutte, migre lentement ($u \lesssim 1$ mm s^{-1}) vers la périphérie de cette dernière. Arrivé à un certain rayon $r(t_0)$, il subit une forte accélération suivie d'une décélération plus graduelle, au cours de laquelle la vitesse décroît lentement vers 0. La vitesse maximale $u(t_0)$ atteinte entre les deux phases définit le temps t_0 (figure 1.9). Ce dernier est une fonction de la position initiale du traceur dans la goutte : une distribution volumique homogène des traceurs assure un débit de traceurs hors de la goutte, et en conséquence à une répartition des temps t_0, réguliers tout le long de l'étalement. L'accélération subie par les traceurs (donc par le fluide), de l'ordre de 1 m s^{-2}, est évidemment le reflet des forces à l'œuvre à l'immédiate périphérie de la goutte. On en conclut que la dynamique d'extension de la nappe, pilotée par des contraintes tangentielles de surface (Marangoni), est localisée à la proximité immédiate de la goutte, comprise comme réservoir.

La durée d'une trajectoire individuelle, quelques secondes, est considérée faible devant le temps total d'étalement de la goutte, plusieurs dizaines de secondes : le champ de vitesse n'a alors pas significativement évolué, de sorte qu'à tout instant t la vitesse $u(t)$ du traceur passif peut être confondue à la vitesse eulérienne radiale $u_r(r(t), t)$, évaluée à la position courante $r(t)$ du traceur. L'espace des phases $\{r, \dot{r}\}$ pour l'ensemble des trajectoires offre alors un bon aperçu du champ de vitesse $u_r(r, t)$ à différents instants t (figure 1.10). Signe d'une évolution temporelle lentement variable, imputée à l'étalement visqueux du cœur de la goutte, les trajectoires ne se confondent pas en une seule. Les profils, en l'occurrence, s'étalent en largeur comme en amplitude : le rayon $r(t_0)$ auquel advient le maximum de vitesse $u(t_0)$, de même que ce dernier, croissent algériquement avec t_0, selon une puissance inférieure à 1 (figure 1.10, insert).

1.1.3 Résumé

À première vue, l'expérience du dépôt d'une goutte d'un liquide visqueux à la surface d'un liquide infiniment moins visqueux, miscible, brille par la simplicité de son énoncé. *A priori*, la goutte, maintenue par capillarité à la surface du fait de ses petites dimensions — et même si le liquide qui la constitue est légèrement plus dense que celui du bain —, s'étale horizontalement grâce à la gravité et diffuse lentement selon la verticale descendante. Si les faits présentés ci-dessus confirment cette interprétation pour le cœur de la goutte, il a de plus été mis en évidence les points suivants.

— L'affaissement visco-gravitaire de la goutte se double d'une vidange *active* de la

goutte, dès lors envisagée comme un réservoir.

— Le moteur de cette vidange trouve son origine dans la différence des tensions de surface $\Delta\sigma = \sigma_E - \sigma_H$ positive entre le bain σ_E et la goutte σ_H, *i.e.* dans une contrainte Marangoni.

— Des mesures de vitesse et d'épaisseur ont localisé l'accélération du fluide, et par suite l'action de la contrainte et l'écoulement Marangoni, en périphérie immédiate de la goutte.

— L'écoulement de vidange du cœur alimente dans le même temps une nappe d'épaisseur lentement variable, dont le front est poussé à vitesse constante.

— Confirmation de la contrainte Marangoni dans son rôle de moteur de l'écoulement, la vitesse de vidange est extrêmement sensible à l'état de la surface du bain, caractérisée en première approximation par sa tension de surface σ_E.

À la lumière du dernier point, précisons que les mesures ont été menées avec tout le soin qui convient aux phénomènes superficiels d'échelles spatiales petites devant la longueur capillaire.

Enfin et en toute rigueur, la contrainte Marangoni relie, via la viscosité, la contrainte tangentielle dans le liquide immédiatement sous la surface au *gradient* de tension superficielle. Les faits présentés ci-dessus vont dans le sens d'une échelle d'application du gradient fixée par le système. Elle peut être vue comme le résultat d'une compétition entre la diffusion mutuelle des deux liquides dans la direction verticale (et donc l'homogénéisation de leur propriétés de surface), et l'advection horizontale du liquide visqueux, de plus faible tension. Le front de la nappe d'étalement, en particulier, ne joue pas de rôle majeur dans la dynamique Marangoni à l'œuvre proche de la goutte, il en est davantage une conséquence, de mesure commode.

1.2 Étalement d'un mince filament visqueux

L'expérience d'étalement de goutte, entendue comme un prérequis (voir la partie précédente 1.1), est modifiée de la façon suivante : un filin, ou filament, de la même huile minérale, miscible et visqueuse, de diamètre initial h, est déposé linéairement à la surface d'un bain d'eau, par le moyen d'une tige en métal maintenue à une faible distance du bain. La vitesse de dépôt V_d, typiquement 1 à 10 cm s^{-1}, est supposée suffisamment lente pour ne pas entraîner de liquide — huile ou eau — à la suite de la tige, et dans le même temps suffisamment rapide devant la vitesse d'étalement de la nappe d'huile (figure 1.11). Après cette phase d'étalement, similaire à celle documentée précédemment, la forme rectiligne du filament se déstabilise spontanément, pour former des oscillations, sinusoïdales dans un premier temps. Du fait de l'allongement du filament visqueux déstabilisé, de nouvelles portions linéaires apparaissent bientôt, qui se déstabilisent à leur tour. Le filament forme alors, en cascade, des volutes de plus en plus resserrées, qui s'enroulent autour d'elles-mêmes avant de se diluer complètement dans le bain. L'observation du phénomène se fait à l'aide d'érioglaucine dissoute dans l'huile, visualisée en rétro-éclairage. Au premier ordre, l'adjonction du colorant ne perturbe pas l'installation, comme nous avons eu l'occasion de le vérifier à l'aide d'un motif quadrillé interposé entre la source lumineuse et le bain (figure 1.13).

L'âme centrale du filin est détectée automatiquement grâce à un algorithme de détection de crêtes (module *Ridge Detection* du logiciel ImageJ), et vérifiée individuellement

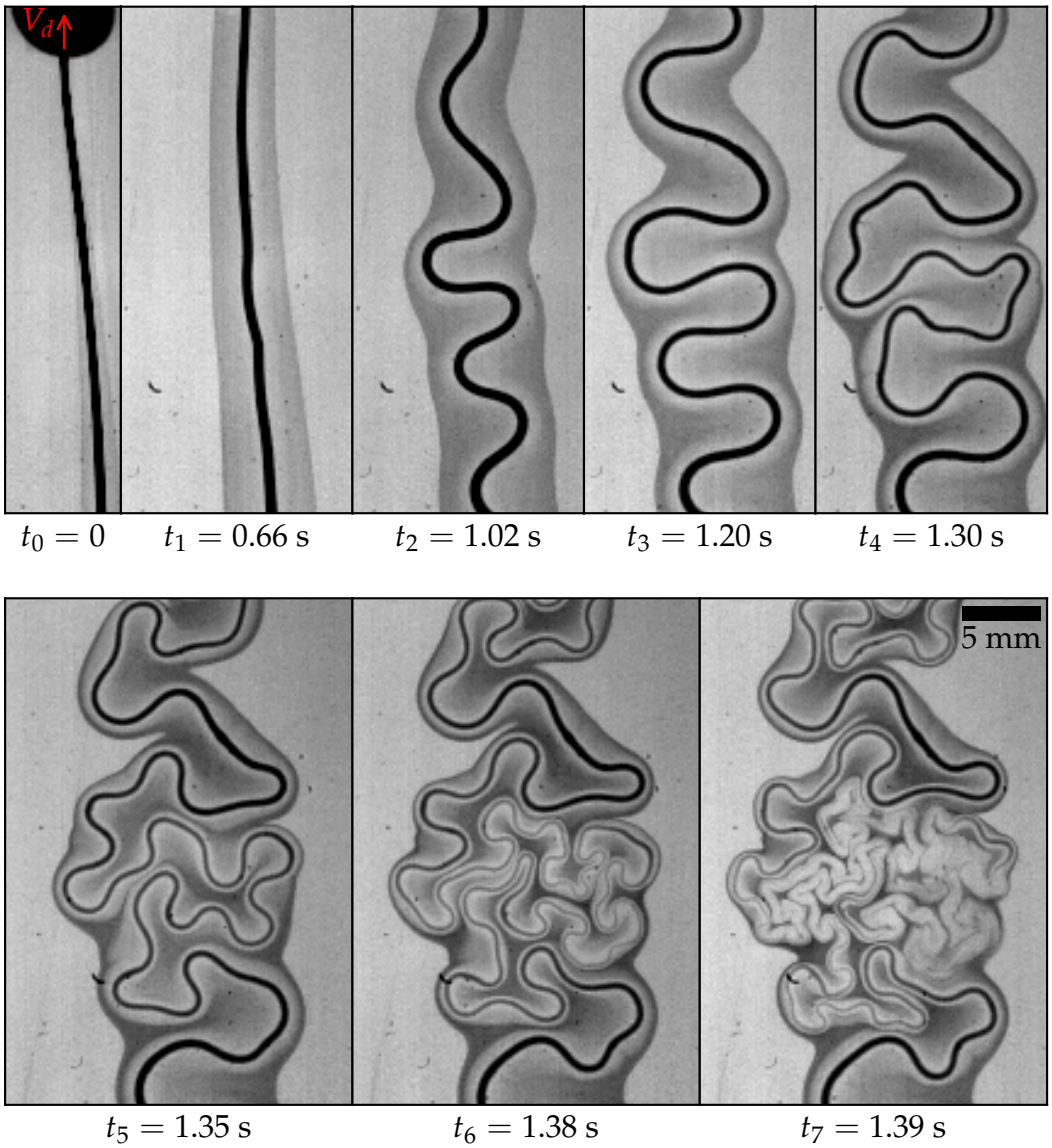

FIGURE 1.11 – Dépôt d'un filin d'huile à la surface de l'eau, à la vitesse $V_d = 5$ cm s^{-1} grande devant la vitesse d'apparition de la nappe dans le sillage (t_0 et t_1). Les images sont contrastées de façon à révéler la présence de la nappe. Les intervalles de temps d'une image à la suivante sont en progression décroissante géométrique, de raison légèrement inférieure à 2.

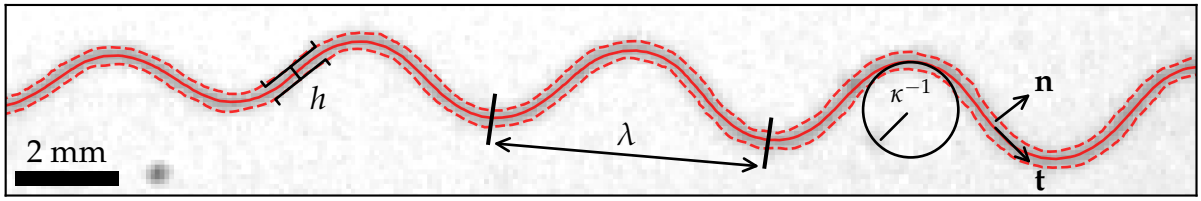

FIGURE 1.12 – Détection du filament d'huile, coloré par dissolution d'érioglaucine. Sont définis l'épaisseur du filament h, la longueur d'onde de l'instabilité λ, le rayon de courbure κ^{-1} et le repère local $\{\mathbf{t}, \mathbf{n}\}$.

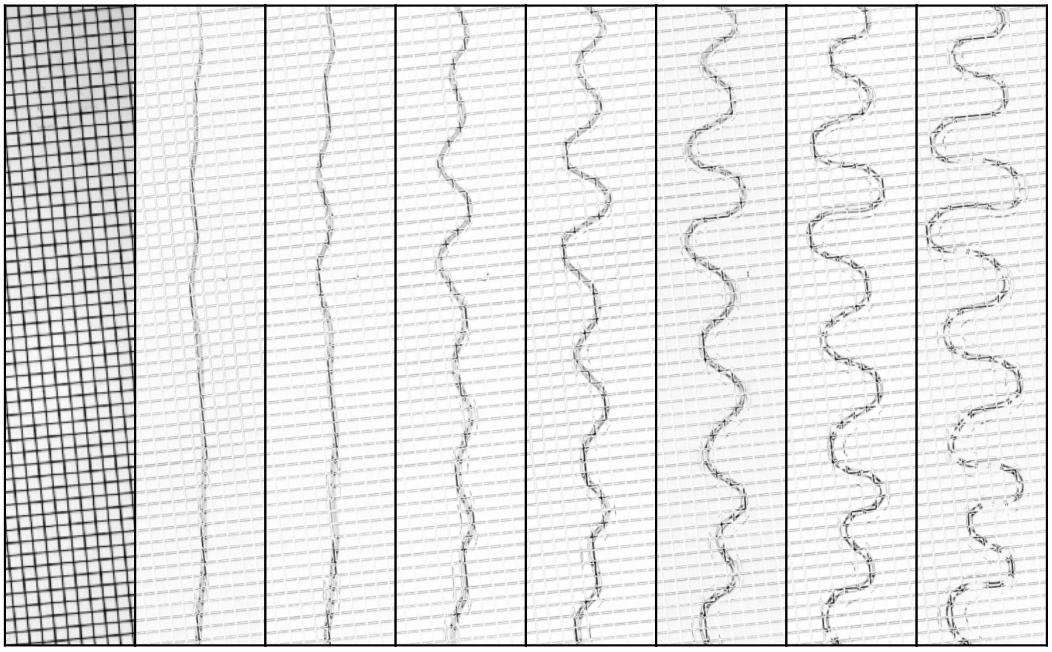

FIGURE 1.13 – Mise en évidence de la déstabilisation à l'aide d'un motif quadrillé (première image) interposé entre la source lumineuse diffuse et le bain, retranché aux images de la série suivant. La réfraction des rayons lumineux, à la fois à l'interface et due à la variation d'indice entre l'huile et l'eau, révèle la position du filament. L'échelle est donnée par le pas de la grille, égal à 2 mm, et les images sont séparées de 0.24 s.

(figure 1.12). Elle est représentée par une courbe bidimensionnelle $\{x(s), y(s)\}$ paramétrée par son abscisse curviligne $s = \int \sqrt{\mathrm{d}x^2 + \mathrm{d}y^2}$. La courbure κ du filin, donnée éminemment porteuse de sens physique, est ensuite calculée selon

$$\kappa = \frac{x'y'' - x''y'}{(x'^2 + y'^2)^{3/2}}, \tag{1.2.1}$$

via l'interpolation, à tout instant, des données expérimentales sur une spline bidimensionnelle cubique (figure 1.12 et diagramme spatio-temporel de la figure 1.14). Il va sans dire que les bornes du filament sont sélectionnées avec soin, de manière à éviter toute dérive résiduelle dans la direction du dépôt. La paramétrisation par l'abscisse curviligne peut également donner accès à la composante normale de la vitesse du filin.

Le filament, à la manière de la goutte de la partie 1.1, s'étale et se dilue dans le bain. De la sorte, son épaisseur, ou sa concentration, varie en temps et dans la direction x normale au filament (figures 1.12 et 1.16 pour les instants suivant le dépôt). La visualisation, basée sur l'absorption de lumière par une encre, permet seulement de relier qualitativement les niveaux de gris à la quantité c d'huile traversée par la lumière. En particulier, elle peine à distinguer l'épaisseur du filin, grandeur qui se rattache à un point de vue cinématique, de la concentration d'huile (miscible à l'eau), notion à rapprocher du mélange des deux phases. Elle permet néanmoins de mesurer, par l'ajustement d'une courbe adaptée (par exemple une gaussienne aux instants finaux, figure 1.17), l'amplitude et la largeur des profils de coupe du filament.

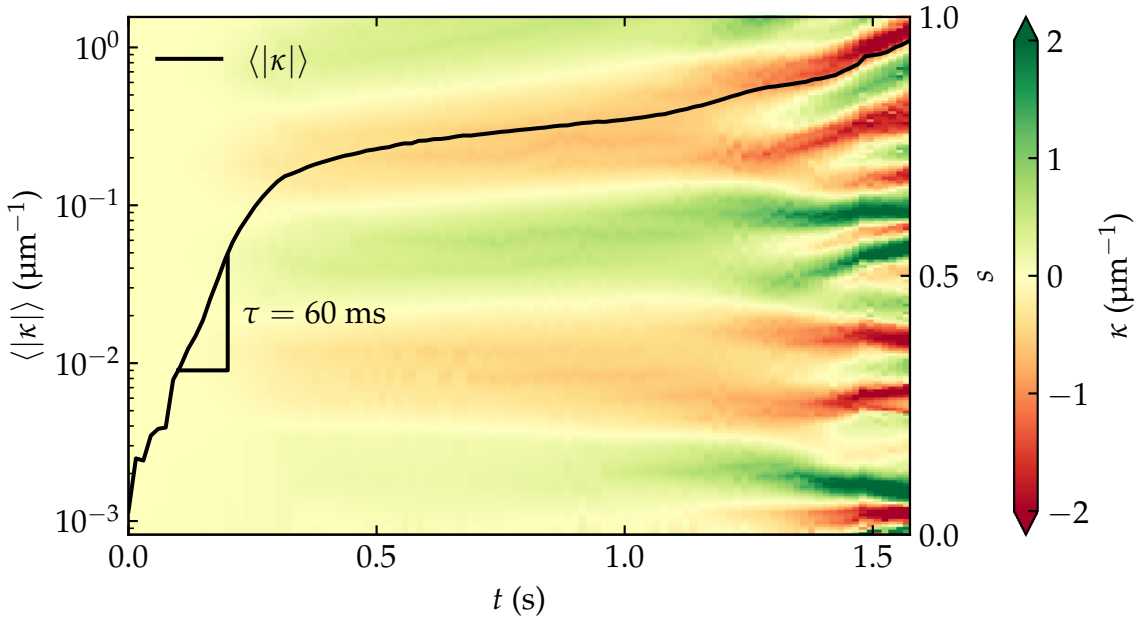

FIGURE 1.14 – Courbure du filament en fonction du temps t. La moyenne de la courbure absolue $\langle|\kappa|\rangle$ est tracée en échelle semi-logarithmique, mettant en évidence une croissance exponentielle de base τ à temps courts. Le diagramme spatio-temporel représente, en carte colorée, la courbure le long de l'abscisse curviligne s.

1.2.1 Instabilité linéaire

Peu après le dépôt, dans un temps toutefois suffisamment long pour que le filament soit considéré uniforme et immobile sur la longueur observée, celui-ci se déstabilise spontanément (instants t_0 à t_2 de la figure 1.11). La caractérisation de la partie linéaire de l'instabilité est effectuée grâce à la courbure, cette dernière étant initialement nulle tout le long du filament. La moyenne est calculée sur la courbure absolue $\langle|\kappa|\rangle$ (par symétrie, la courbure signée, alternativement positive puis négative, est en moyenne nulle, $\langle\kappa\rangle = 0$), qui croît exponentiellement avec le temps (figure 1.14, axe de gauche). Le temps de croissance τ est mesuré pour plusieurs diamètres h du filament, exhibant une croissance algébrique rapide (figure 1.15a).

De même, la longueur d'onde λ de l'instabilité est mesurée (figure 1.12) et reliée à h (figure 1.15b). Exception faite des dimensions du bain, le diamètre initial du filin h, au moins un ordre de grandeur plus petit que celles-ci, est la seule échelle de longueur introduite dans le problème. C'est, comme semble l'indiquer la croissance essentiellement linéaire, bien que légèrement plus rapide, de λ avec h, l'échelle pertinente de l'instabilité.

Au cours de cette première étape de déstabilisation, le filament, tant en largeur qu'en épaisseur, évolue peu relativement à son extension longitudinale L (figure 1.16a). Les profils de concentration c dans la direction y normale au filament, images inversées de l'intensité lumineuse, signalent tout de même un affaissement de l'âme du filin, piloté par la diffusion de l'huile dans l'eau et l'étalement visqueux. De manière remarquable, la largeur du filament *croît*, malgré une élongation L déjà sensible (figure 1.16b). Dès lors, une description purement cinématique du filin vu comme un cylindre de diamètre h et longueur L, semble, même à temps courts, vouée à l'échec : l'analyse ne pourra se passer de l'étalement du cœur.

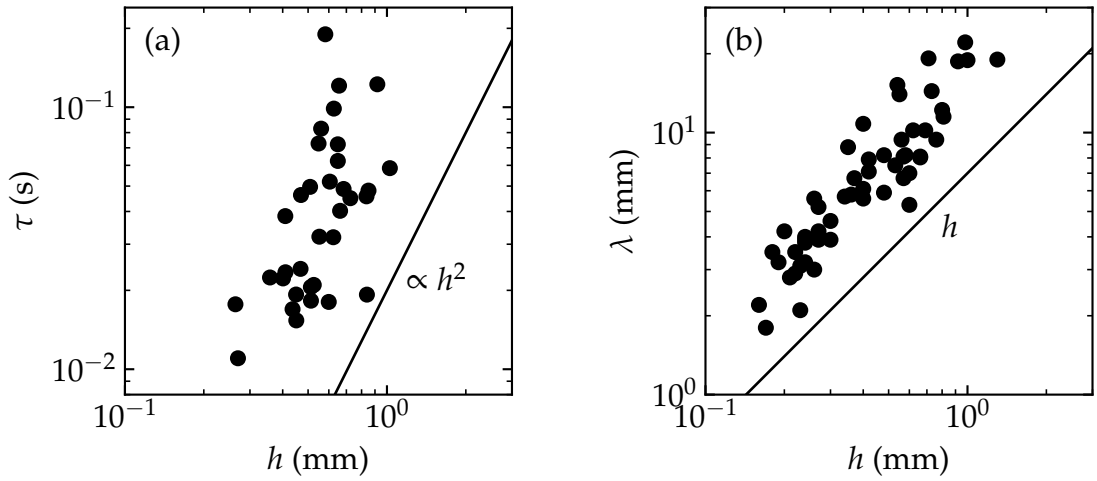

FIGURE 1.15 – Instabilité linéaire du filament. (a) Temps de croissance τ et (b) longueur d'onde λ en fonction du diamètre du filament h. Les lois d'échelles sont dérivées à la section 1.4.

1.2.2 Cascade auto-similaire

Passée la phase initiale de croissance exponentielle de la courbure, cette dernière sature — en moyenne, ainsi que le long de l'abscisse curviligne, ainsi que l'illustre le plateau central, figure 1.14. La mesure moyenne de la courbure le long du filament, grandeur intégrée par excellence, ignore et manque toutefois l'allongement L du filament, observé aux temps t_1 à t_3 (et au-delà) de la figure 1.11, ainsi que sur les figures 1.13, 1.16b et plus loin 1.18. Durant cette phase, la courbure varie effectivement peu : le filament visqueux, qui s'allonge de manière dramatique, crée de nouveaux segments linéaires, *i.e.* de courbure nulle, sans modifier drastiquement la courbure des portions déjà convexes et concaves. Dès lors que la longueur de ces segments atteint la valeur courante de la longueur d'onde de l'instabilité du filament, ils sont prêts à se déstabiliser.

Cette étape élémentaire {1. déstabilisation, 2. étirement, 3. émergence de portions linéaires} peut alors de nouveau se produire, comme il est observé sur les temps t_4 à t_7 de la figure 1.11. L'apparition de nouvelles cellules de courbure de signe opposé, remarquée sur la figure 1.14 à partir de t = 1.4 s, en est une autre démonstration. Le mécanisme décrit est celui d'une *cascade* faite de déstabilisations successives, observée sur un objet étonnant de simplicité.

Le filament, de même qu'une goutte d'huile posée sur l'eau (partie 1.1), commence par s'étaler lentement, de sorte que son diamètre apparent $h(t)$, dans un premier temps, croît malgré l'élongation du filament (figure 1.16). Puis l'étalement ralentit et, par conservation de la matière, le filament s'amincit à mesure qu'il s'allonge (figure 1.17b pour les instants finaux). Au fur et à mesure des étapes de la cascade, le temps de croissance et la longueur d'onde de la déstabilisation diminuent en conséquence : la cascade s'accélère. Il en résulte un phénomène critique et auto-similaire : en un temps fini t_c, l'amplitude c de la concentration et la largeur h du profil s'annulent (figure 1.17). La dilution de l'huile dans l'eau est dès lors opérée et complète, le moteur Marangoni $\Delta\sigma$ est réduit à zéro, le mélange dans le volume aux temps ultérieurs peut suivre son cours selon des procédés diffusifs et de flottabilité classiques.

De façon plus spectaculaire, la longueur totale $L(t)$ du filament étiré diverge dans ce

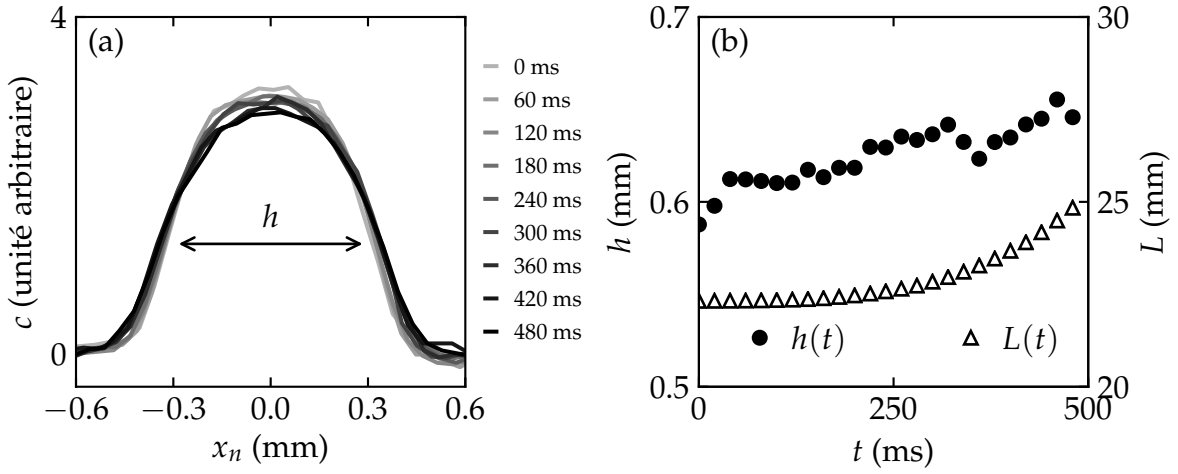

FIGURE 1.16 – Diffusion et étalement initiaux du filament. (a) Profils observés en coupe normale au filament, de coordonnée x_n. (b) Largeur h (•) et longueur L (△) du filament au cours du temps.

même temps t_c (figure 1.18). La divergence de la longueur confirme le caractère critique de la cascade, par la croissance algébrique $L(t) = L_0(1 - t/t_c)^{-\alpha}$, avec L_0 la longueur initialement déposée et $\alpha > 0$ l'exposant critique pour L (figure 1.18b). L'exposant critique est estimé expérimentalement autour de $\alpha \simeq 0.6$. En l'état, la précision des expériences n'a pas permis d'imputer sa variabilité à une grandeur physique. Enfin, à la connaissance de la loi de calibration de l'intensité lumineuse près et par conservation de la matière, le produit Lhc est constant au cours du temps : la somme des exposants critiques est nulle. Plus précisément, la somme des exposants, positifs, de h et c (respectivement 0.1 et 0.5 dans l'expérience illustrée figure 1.17) est égale à α (estimé à 0.6 pour la même expérience, figure 1.18).

L'élongation divergente du filament en un temps et sur une surface finis mène inévitablement à des repliements, circonvolutions et divers autres phénomènes d'évitement et de réarrangement, comme on peut en avoir un aperçu au derniers instants t_6 et t_7 de la figure 1.11. Autre signe spectaculaire du caractère auto-similaire de la cascade, ces circonvolutions reproduisent leur forme aux différentes étapes (et donc échelles, figure 1.19). Certes, les volutes contraignent fortement le développement de l'instabilité, qui malgré tout ne cesse d'accélérer. La cause de l'arrêt, brusque, de la croissance du filament, se trouve dès lors dans la diminution de la taille transverse, corollaire de l'élongation (figure 1.17).

1.3 Capillarité et viscosité

L'expérience simple de dépôt puis déstabilisation, sur un bain liquide, d'un filament d'huile visqueuse, miscible et de tension superficielle inférieure à celle du bain, a pour intérêt majeur d'introduire et discuter des notions essentielles à la suite de cette thèse. Un filament d'huile visqueuse n'est évidemment pas un film liquide, l'objet principal de ce travail, mais l'analogie vaut par les points suivants. En premier lieu, les deux objets sont caractérisés par un grand rapport d'aspect, *i.e.* la présence d'au moins une dimension grande devant les autres : l'épaisseur du film et le diamètre initial du filament, commu-

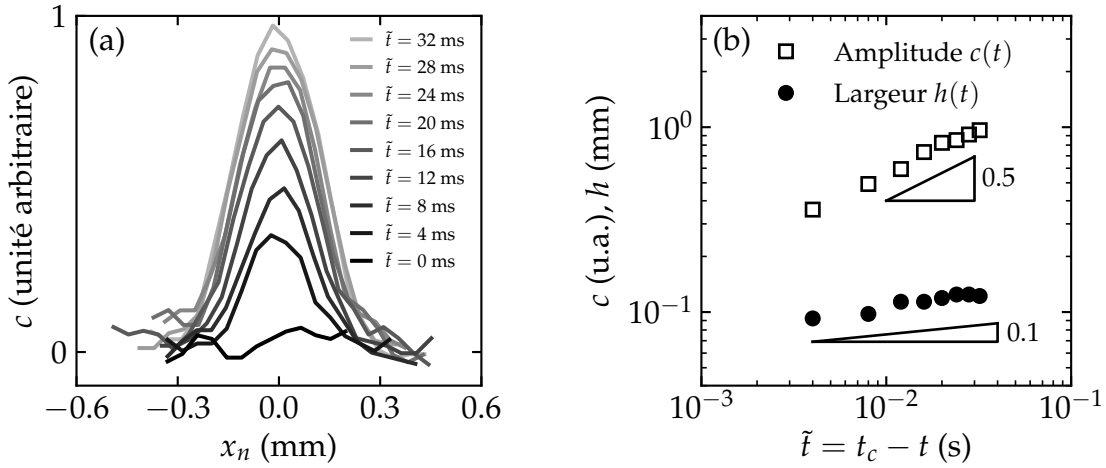

FIGURE 1.17 – Épaisseur du filament au cours du temps à l'approche du temps critique. (a) Profils observés en coupe normale au filament. (b) Amplitude c (□) et largeur h (•) du filament.

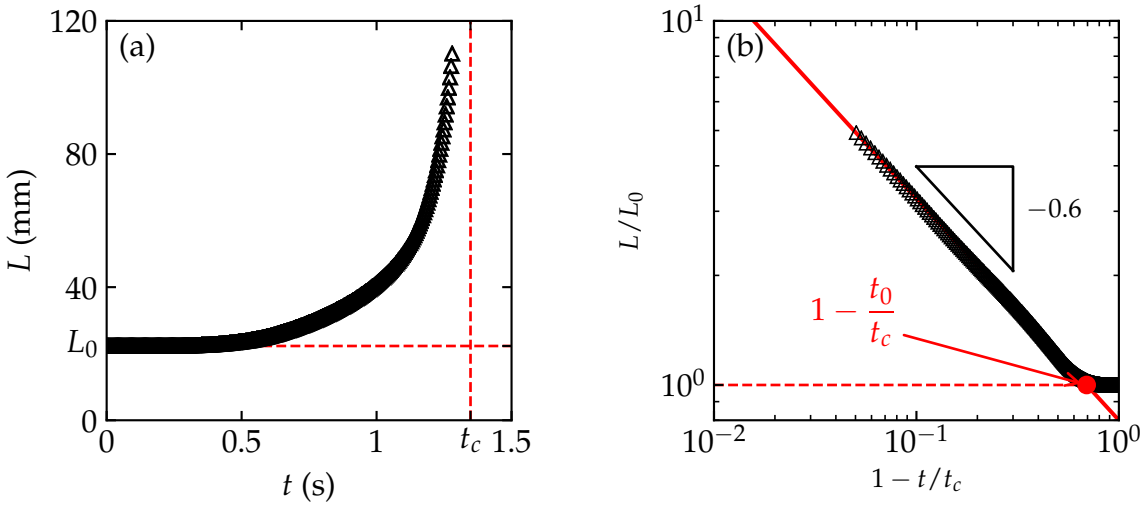

FIGURE 1.18 – Concentration du filament visqueux $L(t)$ en fonction du temps t, (a) compté à partir du dépôt. (b) La longueur du filament, normalisée par L_0 sa longueur initiale, est tracée en fonction de $1 - t/t_c$, avec t_c temps critique de la divergence de L.

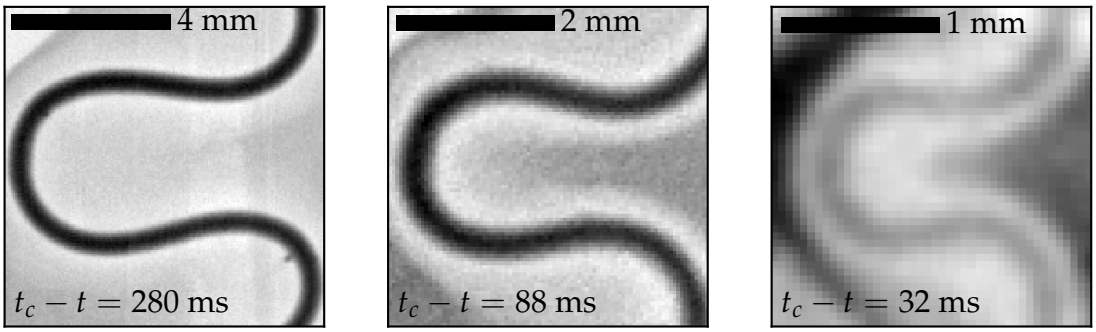

FIGURE 1.19 – Structure auto-similaire du filament, à trois étapes successives de la cascade. L'attention est attirée sur la diminution de la taille du motif.

nément nommés h. La relative indifférence de l'objet quant à son environnement fournit le deuxième point de comparaison : l'interaction avec l'air sera négligée dans le cas du film, de même que la présence du bain liquide, quelques 10 000 fois moins visqueux que l'huile. Les deux objets, enfin, de petite taille devant la longueur capillaire ℓ_c, sont extrêmement sensibles aux phénomènes pilotés par la tension superficielle, et de façon encore plus intéressante par les *variations* de tension superficielle.

Cette section, ainsi que la suivante, discutent de la transmission des phénomènes superficiels au cœur du liquide. Une première analyse de stabilité linéaire porte sur l'interface entre deux milieux infinis, l'un visqueux, l'autre non, sur laquelle est imposé un gradient de tension de surface. La section suivante 1.4 s'intéresse, à l'aide des concepts dérivés dans cette section 1.3, à l'instabilité d'une nappe visqueuse d'épaisseur finie, placée entre deux milieux non visqueux. Une coupe dans la direction invariante permettra de revenir formellement à la déstabilisation du filament déposé à la surface de l'eau, problème central de ce chapitre.

1.3.1 Ondes de surface en viscosité non nulle

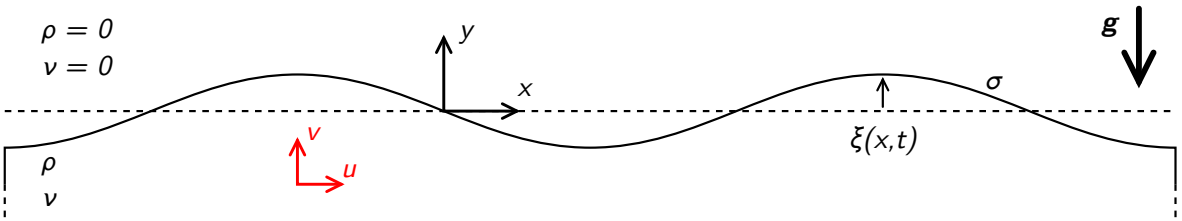

FIGURE 1.20 – Onde à la suface d'un liquide visqueux, de profondeur infinie.

Commençons par nous intéresser, à l'instar de LEVICH, 1962, à l'interface entre deux milieux infinis, admettons un liquide incompressible (de masse volumique ρ, viscosité dynamique $\eta = \rho\nu$ et profondeur infinie) surplombé d'un gaz (de masse volumique et viscosité négligeables devant celles du liquide, figure 1.20). L'interface est initialement immobile, localisée en $y = 0$, dans le champ de gravité $\mathbf{g} = -g\mathbf{y}$ constant. Elle est caractérisée par une tension de surface σ, uniforme et constante. On considère alors une perturbation de l'état de repos initial (vitesse $\mathbf{u} = \{u, v\} = 0$) par un déplacement vertical de faible amplitude ξ ainsi qu'une perturbation des champs de pression p et de vitesse verticale v (1.3.1) :

$$\xi = |\xi| e^{i(kx-\omega t)} \tag{1.3.1a}$$

$$p = -\rho g y + \delta p e^{ky+i(kx-\omega t)} \tag{1.3.1b}$$

$$v = \left(Ae^{ky} + Be^{qy}\right) e^{i(kx-\omega t)}\,. \tag{1.3.1c}$$

À la différence du cas non visqueux, deux nombres d'ondes k et q sont introduits pour décrire la pénétration de la vorticité dans le fluide. L'analyse vise à relier la pulsation complexe ω à ces nombres d'ondes en éliminant progressivement les dépendances dans les amplitudes de perturbation $\delta p, |\xi|, A$ et B.

Au premier ordre en $\mathbf{u}$ et ξ, le cœur du liquide est régi par les équations de Navier-

Stokes (1.3.2), qui décrivent la dynamique du liquide :

$$\partial_t u = -\frac{1}{\rho}\partial_x p + \nu\left(\partial^2_{xx}u + \partial^2_{yy}u\right) \tag{1.3.2a}$$

$$\partial_t v = -\frac{1}{\rho}\partial_y p + \nu\left(\partial^2_{xx}v + \partial^2_{yy}v\right) - g\,, \tag{1.3.2b}$$

et la conservation de la masse (1.3.3) :

$$\partial_x u + \partial_y v = 0\,. \tag{1.3.3}$$

À l'interface $y = \xi$, le liquide se meut à la vitesse de la surface libre :

$$v(y = \xi) = \partial_t \xi\,, \tag{1.3.4}$$

et est contraint mécaniquement en pression (1.3.5a) et en cisaillement (1.3.5b) par le biais de la tension superficielle σ entre le fluide et le milieu extérieur :

$$\tau_{yy} = -p + 2\eta\partial_y v = \sigma\partial^2_{xx}\xi \tag{1.3.5a}$$

$$\tau_{xy} = \eta\left(\partial_y u + \partial_x v\right) = 0\,, \tag{1.3.5b}$$

avec τ_{ij} le tenseur des contraintes, ici évalué en $y = \xi$.

De manière remarquable, la contribution en e^{qy} de la dynamique verticale initiale (1.3.2b), dans laquelle est injectée l'expression de la vitesse (1.3.1c), est identiquement nulle et lie les nombres d'ondes q et k :

$$q^2 = k^2 - \frac{i\omega}{\nu}\,. \tag{1.3.6}$$

Finalement, en suivant conjointement le même raisonnement pour le système d'équations (1.3.2b), (1.3.3), (1.3.4) et (1.3.5), on dérive la relation de dispersion

$$\omega^2\left(\frac{q^2+k^2}{q^2-k^2} + 2k^2\frac{(q-k)^2}{(q^2-k^2)^2}\right) = gk + \frac{\sigma}{\rho}k^3\,, \tag{1.3.7}$$

ou en se conformant à la formulation de LEVICH, 1962 :

$$4\nu^2k^4\left[\sqrt{1-\frac{i\omega}{\nu k^2}} - \left(1-\frac{i\omega}{2\nu k^2}\right)^2\right] = gk + \frac{\sigma}{\rho}k^3\,. \tag{1.3.8}$$

Faible viscosité

Le terme de droite somme les contributions usuelles de la gravité et de la capillarité en profondeur infine. Le terme de gauche module la pulsation ω par une fonction *a priori* complexe des deux nombres d'ondes, donc de la viscosité par (1.3.6). Sans surprise, la limite de faible viscosité $\eta \to 0$ annule cette modulation pour retrouver la relation de dispersion canonique des ondes gravito-capillaires en profondeur infinie, sans amortissement :

$$\omega^2 = gk + \frac{\sigma}{\rho}k^3\,. \tag{1.3.9}$$

Grande viscosité

À l'inverse, lorsque la viscosité est grande, la perturbation est totalement amortie, se traduisant par une pulsation $\omega = -i\alpha$ purement imaginaire :

$$2i\omega\nu = 2\alpha\nu = \frac{g}{k} + \frac{\sigma}{\rho}k\,. \tag{1.3.10}$$

1.3.2 Tension de surface variable : mécanisme élémentaire

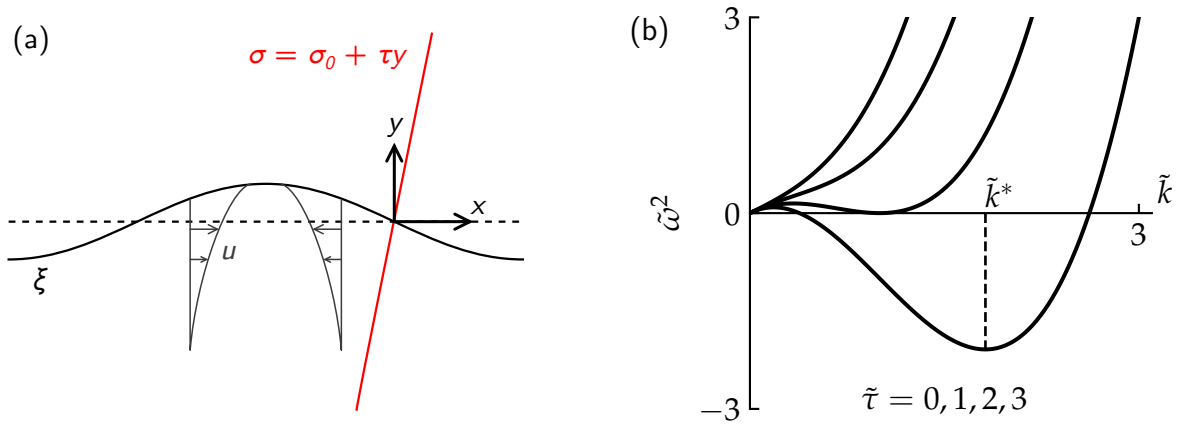

FIGURE 1.21 – Onde de suface, le liquide est visqueux et la tension de surface varie avec la coordonnée verticale. (b) Relation de dispersion en faible viscosité.

Le modèle imaginé à présent, dont l'intérêt réside dans la discussion des principes mis en jeu, introduit une variabilité de la tension de surface σ. La dépendance est prise la plus simple possible, dans la coordonnée verticale y :

$$\sigma(y) = \sigma_0 + \tau y\,, \qquad \text{avec } \tau = \partial_y\sigma\big|_0\,. \tag{1.3.11}$$

σ_0 est la tension superficielle de référence. Le gradient τ, homogène à une pression, est la contrainte de Marangoni. On pourrait se ramener à la situation décrite par PEARSON, 1958 en ajoutant une dépendance linéaire de la tension de surface en la température.

Perturber l'interface $y = \xi$, c'est lui faire explorer des zones d'altitude positive et négative. Par (1.3.11) et en raisonnant sur $\tau > 0$, c'est donc la confronter à des zones de tension superficielle, respectivement, plus forte et plus faible, d'une quantité $\tau\xi$. Par la continuité du cisaillement à l'interface (1.3.5b), l'interface va finalement faire l'expérience de différences de cisaillement, exprimées dans l'équation :

$$\begin{aligned} \tau_{xy} = \eta\left(\partial_y u + \partial_x v\right) &= \partial_x\sigma\big|_{y=\xi} = \partial_y\sigma\partial_x y\big|_\xi \\ \text{soit} \qquad \eta\left(\partial_y u + \partial_x v\right) &= \tau\partial_x\xi\,, \end{aligned} \tag{1.3.12}$$

qui remplace (1.3.5b).

Les autres équations de la section précédente 1.3.1 demeurent valides, et en injectant les mêmes perturbations de position de l'interface, de pression et de vitesse (1.3.1) dans les équations (1.3.2b), (1.3.3), (1.3.4), (1.3.5a) et (1.3.12), on obtient l'équation de dispersion suivante :

$$\left(\omega^2 + \frac{\tau k^2}{\rho}\,\frac{q^2-k^2}{q^2+k^2}\right)\left(\frac{q^2+k^2}{q^2-k^2} + 2k^2\frac{(q-k)^2}{(q^2-k^2)^2}\right) - \frac{2\tau}{\rho}\,\frac{k^3 q}{q^2+k^2} = gk + \frac{\sigma_0}{\rho}k^3\,. \tag{1.3.13}$$

Faible et grande viscosités

Développée à l'ordre 0 en ν, l'équation (1.3.13) se simplifie pour $\tau \neq 0$ en

$$\omega^2 = gk - \frac{\tau}{\rho}k^2 + \frac{\sigma_0}{\rho}k^3, \tag{1.3.14a}$$

$$\text{ou} \quad \tilde{\omega}^2 = \tilde{k} - \tilde{\tau}\tilde{k}^2 + \tilde{k}^3, \tag{1.3.14b}$$

avec $\tilde{\tau} = \tau/\sigma_0\kappa$ et $\tilde{k}$ et $\tilde{\omega}$ respectivement adimensionnées par $\kappa = \sqrt{\rho g/\sigma_0}$, l'inverse de la longueur capillaire ℓ_c, et $\sqrt{\kappa g}$. L'équation (1.3.14) présente immédiatement les signes d'une instabilité ($\omega^2 < 0$) dès lors que la contrainte de Marangoni τ dépasse la valeur critique $\tilde{\tau} = 2$, c'est-à-dire $\tau_c = 2\,\sigma_0/\ell_c$ (figure 1.21b). Pour $\tau \gg \tau_c$, le nombre d'onde le plus instable est $k^* \sim 2\tau/3\sigma_0$.

Il est remarquable que la viscosité, pourtant essentielle dans la transmission du cisaillement, n'apparaisse pas dans la contribution de Marangoni à la dispersion $\tau k^2/\rho$. Le mécanisme est détaillé ci-après, qui révèle la double intervention de la viscosité — transmission et dissipation —, opportunément, paradoxalement et exactement compensée.

La limite de grande viscosité minimise l'importance du terme de Marangoni devant la dissipation visqueuse, de sorte que l'on retrouve finalement l'amortissement à $\tau = 0$ (1.3.10).

Mécanisme Marangoni

La démarche suivie au paragraphe précédent s'est attachée avec succès à dériver la relation de dispersion (1.3.14), dont les conséquences en matière de stabilité sont déjà discutées. Les équations qui y mènent, brièvement commentées, sont également porteuses de sens sur lesquels il convient de s'attarder.

À l'ordre le plus bas, le mouvement est initié par la contrainte tangentielle, dite de Marangoni, $\sigma_x \sim ik\tau\xi$ dans le formalisme perturbatif adopté (1.3.1). La continuité des contraintes tangentielles à l'interface (1.3.12) se traduit par la modification du champ de vitesse horizontale (en première approximation), à savoir un cisaillement d'échelle U et de profondeur de pénétration δ, transmis par viscosité :

$$\eta\partial_y u \sim \eta\frac{U}{\delta} \sim ik\tau\xi\,. \tag{1.3.15}$$

Le liquide étant incompressible, les vitesses typiques horizontale U et verticale V sont liées par l'équation (1.3.3) :

$$ikU + \frac{V}{\delta} \sim 0\,. \tag{1.3.16}$$

La surface est par ailleurs libre, et un mouvement du fluide se traduit par le déplacement de l'interface $V \sim v(\xi) = -i\omega\xi$. Évaluées à l'interface $y = \xi$ et prises comme système, ces trois équations se simplifient en une relation de dispersion purement complexe

$$-i\omega\eta \sim \tau\delta^2k^2\,, \tag{1.3.17}$$

dont le comportement instable ($-i\omega > 0$) ou amorti ($-i\omega < 0$) est directement spécifié par le signe de τ. Cette conclusion est aussi, en gravité nulle ($g = 0$), celle à laquelle parvient la relation de dispersion complète (1.3.14).

L'analogie avec le second problème de Stokes, d'une plaque oscillant horizontalement au fond d'un bain (STOKES, 1856 ; SCHLICHTING, 1979), éclaire le sens de δ, considérée comme l'épaisseur de la couche limite de vorticité :

$$\delta^2 = -\frac{\nu}{i\omega}\,. \tag{1.3.18}$$

On en déduit par (1.3.17) le terme instable

$$\omega^2 \sim -\frac{\tau}{\rho}k^2\,, \tag{1.3.19}$$

où les viscosités dynamique et cinématique se sont compensées en ρ. Cette analyse du mouvement à l'ordre le plus bas met en lumière le rôle crucial et complexe de la viscosité, qui finit par disparaître de la formulation finale. Tout à la fois essentielle dans la transmission du cisaillement initié à la surface et dissipative de ce même mouvement, elle rapproche en ce sens le problème proposé d'un mécanisme de Kelvin-Helmholtz. La nature intrinsèquement hors d'équilibre de l'effet Marangoni à l'étude empêche finalement la dérivation du terme (1.3.19) par une analyse variationnelle, ou énergétique.

1.4 Instabilité du filament

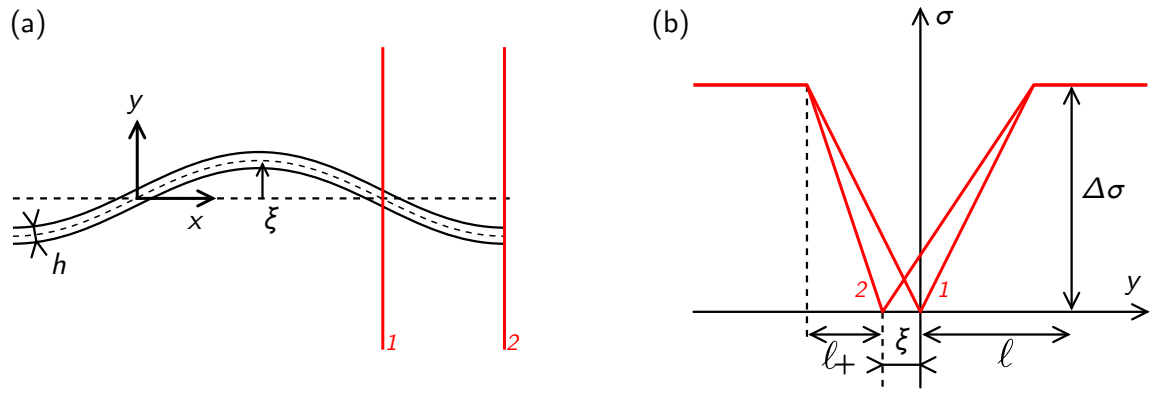

FIGURE 1.22 – Dépôt d'un filament visqueux, de diamètre h et viscosité η, à la surface xy d'un bain. (a) Une perturbation infinitésimale ξ est appliquée au filament (b) Tension de surface le long des deux profils tracés en (a) (l'épaisseur est schématiquement représentée nulle).

Le problème imaginé à la section précédente 1.3 a permis de développer quelques notions indispensables relatives à la transmission du mouvement de la surface vers le volume. Bien qu'invisible dans la formulation finale (c'est une caractéristique paradoxale que nous retrouverons aux chapitres 2 et 3), la viscosité est indispensable, dans un double jeu de transmission des contraintes et de dissipation d'énergie. Le mécanisme mis en place, sur une profondeur δ, par une variation de la tension de surface est un mécanisme de cisaillement, formellement identique à l'instabilité de Kelvin-Helmholtz.

Ces principes, sous-entendus comme acquis dans la suite de la thèse (qui s'occupe essentiellement d'inertie et de capillarité), sont ici envisagés à l'aune de la déstabilisation

du filament (section 1.2). De retour au cœur de ce chapitre, considérons ainsi un cylindre visqueux, ou filament, de diamètre h, déposé à la surface d'un bain le long d'une direction x (figure 1.22a). La viscosité du filament η surpasse de plusieurs ordres de grandeurs celle du bain, de sorte que la dynamique de ce dernier est considérée totalement inertielle. L'analyse est menée intégralement dans le plan xy formé par la surface horizontale du bain : tout se passe comme si nous étudiions un film d'huile visqueuse placé dans un volume infini d'eau, dont nous regardiions une tranche orthogonale à la direction invariante z. De ce fait, la gravité est éliminée. Le fluide visqueux est miscible au bain, et possède une tension de surface plus faible d'une quantité $\Delta\sigma$. En raison de la différence des tensions superficielles, il s'exerce de part et d'autre du filament une force par unité de longueur $\Delta\sigma$, ou plus exactement une contrainte Marangoni $\tau = \partial_y\sigma \sim \Delta\sigma/\ell$, avec ℓ l'échelle d'application du gradient (figure 1.22b). Les deux liquides étant miscibles, on considère la tension $\sigma(y)$ continue de l'un à l'autre (figure 1.22, ligne de coupe n°1).

Que la position initiale du filament soit perturbée d'une quantité ξ ($\times e^{i(kx-\omega t)}$ en formalisme perturbatif), et la symétrie de part et d'autre du filament est rompue. Les gradients τ ne s'appliquant pas sur les mêmes échelles ℓ, il en résulte une force nette sur le filament, dirigée dans le sens de l'amplification de la perturbation, prélude à l'instabilité.

1.4.1 Champ lointain

L'eau, non visqueuse et de masse volumique ρ, est décrite par les équations d'Euler pour la vitesse $\mathbf{u} = \{u, v\}$ en deux dimensions. La contrainte Marangoni à l'interface avec le filament cisaille le fluide sur une profondeur δ, seule force au premier ordre :

$$\rho\partial_t u = \frac{1}{\delta}\partial_x\sigma \tag{1.4.1a}$$

$$\rho\partial_t v = \frac{1}{\delta}\partial_y\sigma\,. \tag{1.4.1b}$$

De l'incompressibilité du fluide $\nabla.\mathbf{u} = 0$ dérive une structure harmonique du champ continu de tension de surface $\sigma(x, y)$:

$$\nabla^2\sigma = 0\,. \tag{1.4.2}$$

Or, la tension superficielle, entendue comme un champ de force scalaire, dépend directement, linéairement en première approximation, de la quantité d'huile dans l'eau, dont l'évolution est régie par les lois de la diffusion. Précisément, le terme diffusif s'annule par (1.4.2) et le champ de force est conservé :

$$\partial_t\sigma + (\mathbf{v}\nabla)\sigma = 0\,. \tag{1.4.3}$$

1.4.2 Réponse du filament

Le filament, soumis de part et d'autre à différents gradients de tension superficielle, est à la fois étiré et courbé.

Courbure

Pour amener le filament de sa position d'origine à la côte $y = \xi$ et le courber d'un rayon $R \sim 1/\xi'' = -1/k^2\xi$, il est nécessaire de dissiper par viscosité la quantité

$$\delta\dot{w} \sim -\eta\dot{\gamma}^2h^2\mathrm{d}x\,, \tag{1.4.4}$$

avec $\gamma = h/R$ la déformation du filament ($\dot\gamma$ est le taux de déformation). L'apostrophe dénote la dérivée spatiale, remplacée dès que possible par la multiplication par ik, et le point la dérivée temporelle. Il est attendu que le taux de dissipation $\delta\dot w$ équilibre le travail de la force de restauration $\tau_{yy} h\dot\xi \mathrm{d}x$, où τ_{yy} est la contrainte de pression dans la direction y. Son expression suit immédiatement :

$$\begin{aligned}\tau_{yy} &= -\frac{\eta\left(h\dot\xi''\right)^2 h}{\dot\xi}\\ &= i\omega\eta h^3 k^4 \xi\,.\end{aligned} \tag{1.4.5}$$

Étirement (sous-dominant)

L'étirement est en revanche sous-dominant. La dissipation visqueuse $\delta\dot w$ s'exprime de la même manière $\eta\dot\gamma^2 h^2 \mathrm{d}x$ (1.4.4), mais la déformation γ s'écrit dorénavant en fonction de l'étirement $\mathrm{d}s = \mathrm{d}x\sqrt{1+\xi'^2}$ du filament :

$$\dot\gamma = \frac{1}{\mathrm{d}x}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\mathrm{d}s \simeq \xi'\dot\xi'\,, \tag{1.4.6}$$

d'ordre ξ^2, effectivement négligeable devant la dissipation due à la courbure (d'ordre ξ).

Diffusion

Le filament déposé à la surface de l'eau se dilue dans celle-ci, et nous quittons ici provisoirement la vision bidimensionnelle. Plus exactement, sa concentration c diffuse, principalement dans la direction z, en compétition avec l'advection dans la direction y, le filament étant invariant selon x :

$$v\partial_y c = D\partial^2_{zz} c\,, \tag{1.4.7}$$

à l'ordre dominant, avec D le coefficient de diffusion de l'huile dans l'eau. L'échelle de vitesse v dérive d'une analyse, *à la Marangoni*, de l'équilibre mécanique horizontal, entre les contraintes Marangoni $\Delta\sigma/\ell$ et visqueuse $\eta v/\delta$, où δ est la profondeur de pénétration de la vorticité. Cette échelle est imposée par celle du gradient Marangoni, de sorte que $\ell \sim \delta$ et

$$V \sim \frac{\Delta\sigma}{\eta}\,. \tag{1.4.8}$$

L'échelle de diffusion verticale est quant à elle basée sur h, à la correction $Sc^{-1/3}$ apportée d'après Lévêque, 1928, où $Sc = \nu/D$ est le nombre de Schmidt pour l'huile. On en déduit l'échelle du gradient de tension de surface :

$$\ell \sim h^2 \frac{\Delta\sigma}{\eta D} Sc^{-2/3}\,. \tag{1.4.9}$$

1.4.3 Instabilité

On infère de l'harmonicité du champ σ (1.4.2) sa forme perturbée, de part (+) et d'autre (−) du filament :

$$\sigma_+ = \frac{y-\xi}{\ell_+}\Delta\sigma + \delta\sigma_+\, e^{i(kx-\omega t)}\, e^{-ky} \tag{1.4.10a}$$

$$\sigma_- = \frac{\xi-y}{\ell_-}\Delta\sigma + \delta\sigma_-\, e^{i(kx-\omega t)}\, e^{+ky}\,. \tag{1.4.10b}$$

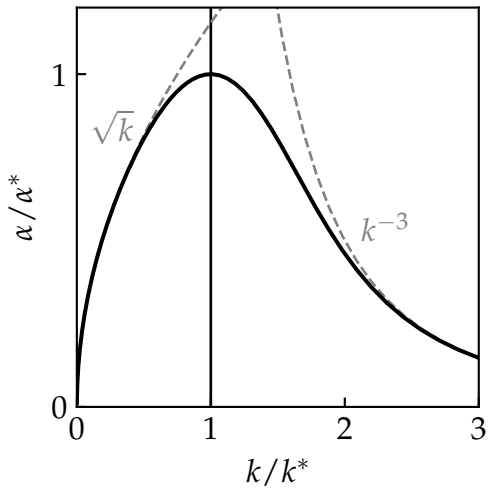

FIGURE 1.23 – Relation de dispersion pour l'instabilité de filament (équation (1.4.14)).

$\ell_\pm$ sont les largeurs des gradients de part et d'autre, tous deux égaux à ℓ à l'équilibre, et $\delta\sigma_\pm$ les amplitudes des perturbations imposées. Le filament, quant à lui, est extrait de sa position d'équilibre $y = 0$ pour explorer la coordonnée $y = e^{i(kx-\omega t)}$.

Au premier ordre, l'état de base de la contrainte Marangoni $\Delta\sigma/\ell$ est perturbé uniquement dans la direction y transverse au filament, de sorte que l'équation de conservation du champ de force (1.4.3) se simplifie, du côté + du filament (en $y = \xi$) :

$$-i\omega\sigma_+ + V_+\frac{\Delta\sigma}{\ell} = 0\,. \tag{1.4.11}$$

L'échelle de vitesse V_+ est ici celle du filament $\dot{\xi} = -i\omega\xi$, d'où on déduit l'amplitude des perturbations :

$$\delta\sigma_\pm = \mp\frac{\Delta\sigma}{\ell}\xi\,. \tag{1.4.12}$$

Cette linéarité découle de la structure harmonique du champ de tension de surface. Malgré la distortion des lignes d'iso-valeur suivant nécessairement un quelconque déplacement de la position du filament, tout se passe, à l'ordre dominant, comme si le filament explorait un champ totalement décorrélé de l'action du filament (en diffusion, en advection, etc), à la manière d'une perturbation de densité dans l'instabilité de Rayleigh-Taylor. Il s'agissait précisément de la démarche adoptée au cours de la description du mécanisme Marangoni de déstabilisation de l'interface entre deux milieux semi-infinis (section 1.3.2), ainsi justifiée *a posteriori*.

L'évolution du ligament découle finalement de l'équation de sa dynamique :

$$\rho h\ddot{\xi} = \partial_y\sigma\big|_+ + \partial_y\sigma\big|_- - \eta h^3k^4\dot{\xi}\,, \tag{1.4.13}$$

où la masse volumique de l'huile est assimilée à celle de l'eau ρ. Avec $\partial_y\sigma|_\pm = \pm\Delta\sigma/\ell \mp k\delta\sigma_\pm$, la dynamique révèle la relation de dispersion :

$$\omega^2 + i\omega\nu h^2k^4 + 2\frac{\Delta\sigma}{\rho h\ell}k = 0\,,$$

qui se simplifie par (1.4.9) en

$$\omega^2 + i\omega\nu h^2k^4 + 2\frac{\nu DSc^{2/3}}{h^3}k = 0\,. \tag{1.4.14}$$

Pour une pulsation complexe $\omega = \omega_0 + i\alpha$, avec ω_0 réel, le taux de croissance α est positif à tout $k \geq 0$. L'évolution $\alpha(k)$ à petit nombre d'onde k croît comme $\sqrt{k}$, et chute en k^{-3} à grand nombre d'onde (figure 1.23). Entre les deux, le taux de croissance est maximal (α^*) pour la valeur $k = k^*$:

$$k^* \sim \frac{1}{h} Sc^{-1/21} \quad , \qquad \alpha^* \sim \frac{\sqrt{\nu D}}{h^2} \, , \tag{1.4.15}$$

à des facteurs multiplicatifs près d'ordre 1. Ce modèle prédit donc une longueur d'onde essentiellement en h, pour une croissance du mode le plus instable en $h^2/\sqrt{\nu D}$, tendances confirmées par les expériences (figure 1.15). On remarque finalement que ni la longueur d'onde ni le taux de croissance ne dépendent dans ce modèle de $\Delta\sigma$, pourtant la force motrice de l'instabilité. Ce fait est cohérent avec l'observation de la cascade de déstabilisations. Il fonde l'analyse faite à la section 1.2 de la seule dépendance de τ et λ sur l'épaisseur h courante du filament étiré à l'infini.

Conclusion

Le fait marquant de ce prologue est bien évidemment l'observation expérimentale, dans une configuration aisément reproductible, d'un phénomène critique auto-similaire. Le dépôt d'un filin d'huile, revisitant en quelque sorte l'expérience de Marangoni du bassin des Tuileries, s'en écarte non seulement par la géométrie initiale, mais surtout par les caractéristiques du fluide déposé. La description de l'instabilité donne la part belle à la contrainte née de la différence de tensions superficielles (MARANGONI, 1865), en compétition avec la viscosité de l'huile, qui résiste en première insance via la cambrure du filament. La cascade provient de l'étirement du filament en de nouvelles portions linéaires, qui se déstabilisent à leur tour. Les étapes constituent autant de termes d'une série géométrique, analogie qui aide à comprendre le caractère auto-similaire de la cascade. L'enchevêtrement accéléré des volutes illustre, *a minima* dans les concepts et dans le terme de *cascade* déjà employé, la notion de turbulence telle que développée par KOLMOGOROV, 1941, comme transfert de la vorticité, de proche en proche des grandes échelles vers les petites, dans notre cas en deux dimensions. Les propriétés de mélange de l'huile dans le bain sous-jacent et l'étirement à l'infini du filament contribuent *in fine* à l'homogénéisation des tensions superficielles. D'un point de vue pratique, le mélange de l'huile dans l'eau est rendu, *par la seule géométrie initiale* du composé à diluer, redoutablement efficace.

Nous retrouverons en creux le point fondamental du transfert de la vorticité tout au long de la thèse : l'étude des films *minces* (vis-à-vis de cet aspect) présupposera une homogénéisation instantanée de la quantité de mouvement à travers l'épaisseur.

Références

ANDREAS, J. M., HAUSER, E. A. & TUCKER, W. B. (1938). Boundary Tension by Pendant Drops. *J. Phys. Chem. 42*(8), 1001-1019.

BATCHELOR, G. K. (1959). Small-scale variation of convected quantities like temperature in turbulent fluid. Part 1. General discussion and the case of small conductivity. *J. Fluid Mech. 5*, 113-133.

BÉNARD, H. (1901). Les tourbillons cellulaires dans une nappe liquide transportant de la chaleur par convection en régime permanent. *Ann. Chim. Phys. 23*, 62-144.

de GENNES, P.-G., BROCHARD-WYART, F. & QUÉRÉ, D. (2002). *Gouttes, bulles, perles et ondes*. Échelles. Belin.

DENKOV, N. D., COOPER, P. & MARTIN, J.-Y. (1999). Mechanisms of Action of Mixed Solid-Liquid Antifoams. 1. Dynamics of Foam Film Rupture. *Langmuir*, *15*(24), 8514-8529.

DIPIETRO, N. D., HUH, C. & COX, R. G. (1978). The Hydrodynamics of the Spreading of One Liquid on the Surface of Another. *J. Fluid Mech. 84*(03), 529-549.

DUPRÉ, A. (1867). Sixième mémoire sur la théorie mécanique de la chaleur. *Ann. Chim. Phys. 11*, 194-220.

FRANKLIN, B. (1774). Of the stilling of waves by means of oil. *Phil. Trans. 64*, 445-460.

HOULT, D. P. (1972). Oil Spreading on the Sea. *Annu. Rev. Fluid Mech. 4*(1), 341-368.

JENSEN, O. E. & GROTBERG, J. B. (1992). Insoluble Surfactant Spreading on a Thin Viscous Film : Shock Evolution and Film Rupture. *J. Fluid Mech. 240*, 259-288.

KEISER, L., BENSE, H., COLINET, P., BICO, J. & REYSSAT, E. (2017). Marangoni Bursting : Evaporation-Induced Emulsification of Binary Mixtures on a Liquid Layer. *Phys. Rev. Lett. 118*(7), 074504.

KOLMOGOROV, A. N. (1941). The local structure of turbulence in incompressible viscous fluid for very large Reynolds numbers. *C.R. Acad. Sci. U.R.S.S. 30*, 301-305.

LEENAARS, A. F. M., HUETHORST, J. A. M. & VAN OEKEL, J. J. (1990). Marangoni Drying : A New Extremely Clean Drying Process. *Langmuir*, *6*(11), 1701-1703.

LÉVÊQUE, M. A. (1928). Les lois de la transmission de chaleur par convection. *Ann. Mines*, *13*, 201-412.

LEVICH, V. G. (1962). *Physicochemical Hydrodynamics* (2nd ed.). Prentice-Hall.

MARANGONI, C. (1865). *Sull'espansione delle goccie d'un liquido galleggianti sulla superfice di altro liquido* (Università di Pavia, Pavia).

MARANGONI, C. (1872). Sul principio della viscosità superficiale dei liquidi stabilito dal sig. J. Plateau. *Il Nuovo Cimento*, *V-VI*, 239-273.

MISAK, M. D. (1968). Equations for Determining 1/H versus S Values in Computer Calculations of Interfacial Tension by the Pendent Drop Method. *J. Colloid Interface Sci. 27*(1), 141-142.

NIELD, D. A. (1964). Surface tension and buoyancy effects in cellular convection. *J. Fluid Mech. 19*(3), 341-352.

PEARSON, J. R. A. (1958). On Convection Cells Induced by Surface Tension. *J. Fluid Mech. 4*(5), 489-500.

RAYLEIGH, Lord. (1916). On Convection Currents in a Horizontal Layer of Fluid, When the Higher Temperature Is on the under Side. *Phil. Mag. 32*(192), 529-546.

ROCHÉ, M., LI, Z., GRIFFITHS, I. M., LE ROUX, S., CANTAT, I., SAINT-JALMES, A. & STONE, H. A. (2014). Marangoni Flow of Soluble Amphiphiles. *Phys. Rev. Lett. 112*(208302).

SCHLICHTING, H. (1979). *Boundary-Layer Theory* (7th ed.) (J. KESTIN, Trad.). McGraw-Hill.

SCRIVEN, L. E. & STERNLING, C. V. (1960). The Marangoni Effects. *Nature*, *187*(4733), 186-188.

STOKES, G. G. (1856). On the Effect of the Internal Friction of Fluids on the Motion of Pendulums. *Trans. Cambridge Philos. Soc. 9*(2), 8-106.

TANNER, L. H. (1979). The Spreading of Silicone Oil Drops on Horizontal Surfaces. *J. Phys. D : Appl. Phys. 12*(9), 1473.

van BEEK, M. A. (1842). Mémoire concernant la propriété des huiles de calmer les flots, et de rendre la surface de l'eau parfaitement transparente. *Ann. Chim. Phys. 4*, 257-289.

VERNAY, C., RAMOS, L., WÜRGER, A. & LIGOURE, C. (2017). Playing with Emulsion Formulation to Control the Perforation of a Freely Expanding Liquid Sheet. *Langmuir*, *33*(14), 3458-3467.

VILLERMAUX, E. (2012). On Dissipation in Stirred Mixtures. *Adv. Appl. Mech. 45*, 91-107.

VILLERMAUX, E. (2019). Mixing Versus Stirring. *Annu. Rev. Fluid Mech. 51*(1).

WODLEI, F., SEBILLEAU, J., MAGNAUDET, J. & PIMIENTA, V. (2018). Marangoni-driven flower-like patterning of an evaporating drop spreading on a liquid substrate. *Nat. Commun. 9*(1).

Chapitre 2

Déstabilisation spontanée de films plans

Les films épais, pour insensibles qu'ils soient aux forces de van der Walls — de rayon d'action moléculaire —, sont pourtant renommés pour leur instabilité. La bulle de surface, bulle d'air piégée à la surface d'un bain d'eau, en est l'exemple type. Un mécanisme Marangoni est proposé, détaillé et mis à l'épreuve, qui incrimine les pollutions des films (thermiques, composés volatils solubles, etc.). Un déficit local de tension, en particulier, tend à déstabiliser et vider le film localement, de manière catastrophique. Ainsi, un film liquide, même épais, peut nucléer un trou en dépit des actions régularisatrices de la tension de surface et de la diffusion.

Ce chapitre est composé d'un article publié en 2018 au *Journal of Fluid Mechanics*.

Références

NÉEL, B. & VILLERMAUX, E. (2018). The spontaneous puncture of thick liquid films. *J. Fluid Mech. 838*, 192-221.

J. Fluid Mech. (2018), vol. 838, pp. 192–221. © Cambridge University Press 2018 192
doi:10.1017/jfm.2017.877

The spontaneous puncture of thick liquid films

B. Néel[1] **and E. Villermaux**[1,2,†]

[1]Aix Marseille Université, CNRS, Centrale Marseille, IRPHE, Marseille, France
[2]Institut Universitaire de France, Paris, France

(Received 6 June 2017; revised 26 October 2017; accepted 30 November 2017)

We call thick those films for which the disjoining pressure and thermal fluctuations are ineffective. Water films with thickness h in the 1–100 μm range are thick, but are also known, paradoxically, to nucleate holes spontaneously. We have uncovered a mechanism solving the paradox, relying on the extreme sensitivity of the film to surface tension inhomogeneities. The surface tension of a free liquid film is lowered by an amount $\Delta\sigma$ over a size a by chemical or thermal contamination. At the same time this spot diffuses (within a time a^2/D, with D the diffusion coefficient of the pollutant in the substrate), the Marangoni stress $\Delta\sigma/a$ induces an inhomogeneous outward interstitial flow which digs the film within a time $\tau_0 \sim \sqrt{\rho h a^2/\Delta\sigma}$, with ρ the density of the liquid. When the Péclet number $Pe = a^2/D\tau_0$ is larger than unity, the liquid substrate motion reinforces the surface tension gradient, triggering a self-sustained instability insensitive to diffusional regularisation. Several experimental illustrations of the phenomenon are given, both qualitative and quantitative, including a precise study of the first instants of the unstable dynamics made by controlled perturbations of a Savart sheet at large Pe.

Key words: interfacial flows (free surface), thermocapillarity, thin films

1. Introduction

Free liquid films – by free, we mean not confined between surfactant layers – are formed in various instances: they arise as a result of various jet impacts (Savart 1833) or splashes in the form of ejecta sheets (Worthington 1908), they constitute the shell bounding surface bubbles (Blanchard 1963), they can also be made on purpose through the extrusion of a liquid stream through a slit or annular thin jet in some spreading applications, in liquid propulsion devices or ornamental fountains (Dombrowski & Fraser 1954). Liquid films are of course also involved in various flows of effluents down inclined plates and coating processes (Craster & Matar 2009; Kalliadasis *et al.* 2012).

Suspended liquid films, that is, those not lying on a solid surface, usually break up through their boundary. There, surface tension forces are unbalanced, pulling the liquid of the film into a receding rim, which undergoes a capillary instability, before forming ligaments and isolated drops (Ranz 1959; Huang 1970; Lhuissier & Villermaux 2011). The receding motion can in some special instances be so fast that it triggers a shear instability with the surrounding environment (Lhuissier & Villermaux 2009*b*).

† Email address for correspondence: villermaux@irphe.univ-mrs.fr

Liquid films also happen to puncture far from their boundaries, nucleating a hole or a collection of adjacent holes on the plane of the film. These holes, if large enough in radius compared to the film thickness (Taylor & Michael 1973), may open irreversibly for the same reason mentioned above: at a hole edge, surface tension is no longer balanced. The criterion is identical for polymeric membranes (Ilton, DiMaria & Dalnoki-Veress 2016) and is somewhat different for charged liquids (Betterton & Brenner 1999). In a film of simple liquid, a hole radius, when initially large enough, grows in size at the constant Taylor–Culick speed $\sqrt{2\sigma/\rho h}$, where ρ is the liquid density, σ its surface tension and h the thickness of the film (Taylor 1959*b*; Culick 1960). If a hole has too small a radius, it heals (Courbin & Stone 2006).

While the sequence of phenomena occurring after a hole has been formed and opens in the plane of a film is well described and relatively well understood, the fundamental question of the hole nucleation process itself has been less explored. There are in fact many answers to this question, because there are many ways a film may puncture. We review them below, along with their domain of application, in order to motivate the need for a new study.

1.1. *Extremely thin films: thermal fluctuations*

Extremely small, thin objects are sensitive to thermal fluctuations. The minimal energy input to open a hole irreversibly is the surface energy σh^2 (the hole radius must be of the order of the film thickness h, or more), if σ is the surface tension of the liquid. That energy can, provided a scenario leading to film rupture exists, be supplied by the quantum k_BT from the liquid thermal bath, leading to $h \sim \sqrt{k_BT/\sigma} \approx 10^{-10}$ m in water at ambient temperature, a critical film thickness of the order of the interatomic distances. This thermally activated puncture scenario may thus at most apply to extremely thin films, such as Newton black films (Casteletto *et al.* 2003).

1.2. *Very thin films: van der Waals forces*

Intermolecular forces have different origins depending on whether the molecules are charged, permanently dipolar or dipolar by induction. These forces, called generically van der Waals forces (Israelachvili 1991), are attractive over a range of distances which compares to the size of the molecules itself, namely a few nanometres. The corresponding disjoining pressure $-A/h^3$, where A is a Hamaker constant (Derjaguin, Churaev & Muller 1987), is responsible for puncturing very thin films up to a few tens of nanometres (Vrij 1966; Reiter 1992; Erneux & Davis 1993; Sharma & Reiter 1996; Champougny *et al.* 2017), but does not operate with much thicker films, despite the fact that appreciably thicker films, of the order of 200 nm (Thoroddsen *et al.* 2012), and even more (Nierstrasz & Frens 1998) have been claimed to be sensitive to this effect.

1.3. *External solicitations*

A liquid film can be penetrated by a sharp solid object (with a radius of curvature smaller than the film thickness), a projectile (Courbin & Stone 2006), a concentrated air jet (Berendsen *et al.* 2012; Lhuissier, Brunet & Dorbolo 2016), a focused laser beam (Wedershoven *et al.* 2015) or a spark (McEntee & Mysels 1969; Lhuissier & Villermaux 2009*a*), whose action is applied for a sufficiently long time. Like all fragile objects, liquid films are also sensitive to the unsteadiness of their environment. The application of a pressure gradient, or pressure difference across a film sets it

in motion, and the corresponding acceleration may, because the film is a density interface when surrounded by a gas, lead to destabilisation through a Rayleigh–Taylor mechanism. An impulsive pressure wave (Bremond & Villermaux 2005), or a violent explosion (Vledouts *et al.* 2016) causes the film, accelerated perpendicular to its plane, to grow thickness modulations which ultimately cause its puncture with a well prescribed wavelength. The same phenomenon is responsible for the crumpling of liquid bells, and the formation of transverse indentations at the edge of flapping liquid sheets (Lhuissier & Villermaux 2012*b*). It may affect films of arbitrary thicknesses: the studies just mentioned had films of thickness from microns to tens of microns.

1.4. *Internal flaws and defects*

Solid hydrophobic particles introduced into a film can, when their size compares with the film thickness, lead to its rupture as they force the two interfaces of the film to pinch at the surface of the particle. Anti-foaming agents have taken advantage of this effect for a long time (Garrett 1992; de Gennes 1998). However, flaws, impurities or defects in the liquid may not be solid. Immiscible oil droplets (Dombrowski & Fraser 1954), or bubbles (Lhuissier & Villermaux 2013) also act as efficient hole nucleation sites in water films for precise reasons that remain largely elusive. Denkov (2004) notes that when by chance an oil droplet reaches an aqueous interface, the resulting surface tension contrast (oils have usually a weaker surface tension than water) drives a well-defined outward superficial flow. Vernay, Ramos & Ligoure (2015), adapting this result to a radially expanding liquid sheet loaded with partially miscible oil droplets, argue that it is responsible for the film piercing, which they do observe experimentally. We will come back on this point.

1.5. *Surface inhomogeneities and Marangoni stresses*

Chemical and temperature inhomogeneities at the surface of a liquid translate into inhomogeneities of surface tension. The corresponding Marangoni surface stress (Marangoni 1878) is communicated to the bulk of the liquid by viscosity in a way that can be dramatic when the liquid is shallow as in films (Scriven & Sternling 1960). In the Bénard problem of a liquid layer heated from below, for instance, the mean temperature decays from the hot plate to the liquid free surface. Since surface tension of a liquid typically decreases with temperature, this gradient yields a surface shear stress when the interface is distorted, setting the liquid into motion towards the cooler areas, where the surface tension is higher (Levich & Krylov 1969). There, the film thickens when at the same time the flow away from the hotter regions results in film thinning. Any initial disturbance of the film thickness or of the interface temperature is thus amplified. This instability may lead to film rupture, and local drying of the heating plate (Vanhook *et al.* 1997; Boos & Thess 1999; Kabova *et al.* 2006), namely the analogue of hole formation. This effect, which may also be due to differential evaporation in mixtures (Guéna, Poulard & Cazabat 2007) is, for this reason, used as an efficient cleaning process (Leenaars, Huethorst & Van Oekel 1990; Matar & Craster 2001). Other experiments of Marangoni stress induced spreading flows include those of Roché *et al.* (2014) and Hernández-Sánchez, Eddi & Snoeijer (2015) suggesting that this kind of mechanism can affect films up to a millimetre thick.

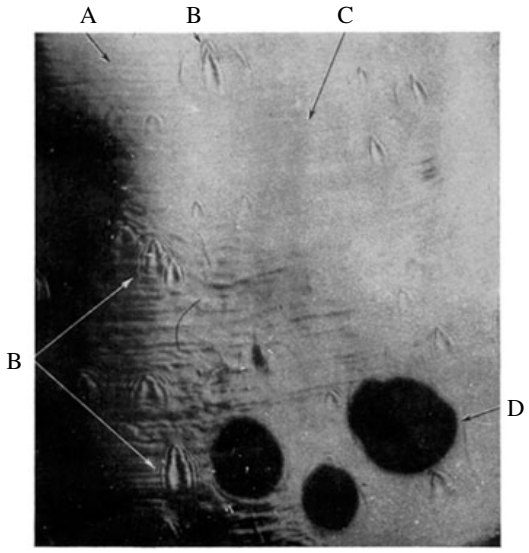

FIGURE 1. A free mercury film puncturing spontaneously, adapted from Dombrowski & Fraser (1954). Waves (A), precursors (B), folds (C) of unknown origin are seen on the film, causing the opening of holes (D).

1.6. *The enigma of thick, spontaneously puncturing films*

Yet, if the case of extremely thin or very thin films (§§ 1.1 and 1.2) is satisfactorily understood, the case of thick films, being sensitive to neither thermal fluctuations nor to a disjoining pressure, remains an enigma in the absence of sustained temperature or pollutant concentration gradient (§ 1.5). Even the precise role of defects (§ 1.4), when they are temperature or soluble chemical agent spots localised in space in, or at the surface of the film, needs to be clarified. A fundamental issue is to know whether a localised surface inhomogeneity spontaneously leads to film rupture in a finite time (Bowen & Tilley 2013), besides the possible role of surfactants (Jensen & Grotberg 1992, 1993). The problem is particularly acute for liquid films with high superficial energy like water (Lhuissier & Villermaux 2012*a*) or mercury (Dombrowski & Fraser 1954) whose surface is easily contaminated by ambient pollutants, those films being known to puncture spontaneously, for yet unknown reasons (see figure 1), even if thick in the sense of the above classification.

We present new facts regarding this issue interpreted by an original analysis, suggesting that a sufficiently large and strong chemical or thermal inhomogeneity deposited on a thick film can lead to its catastrophic puncture.

The method for preparing thick, stationary clean liquid films is first presented in § 2. In this section also, we explain how we perturb the surface properties of films, as well as the imaging tools we use to document the piercing phenomenon, which we illustrate qualitatively. A possible mechanism explaining the self-amplification of surface defects is presented in § 3. In order to examine its relevance, we come back to precise experiments in § 4, which we analyse thoroughly, before we conclude in § 5.

2. Experiments and observations

2.1. *Liquid films production*

We produce stationary, clean water films freely expanding in ambient air using a method initiated by Savart (1833), which is a convenient set-up to study a wealth

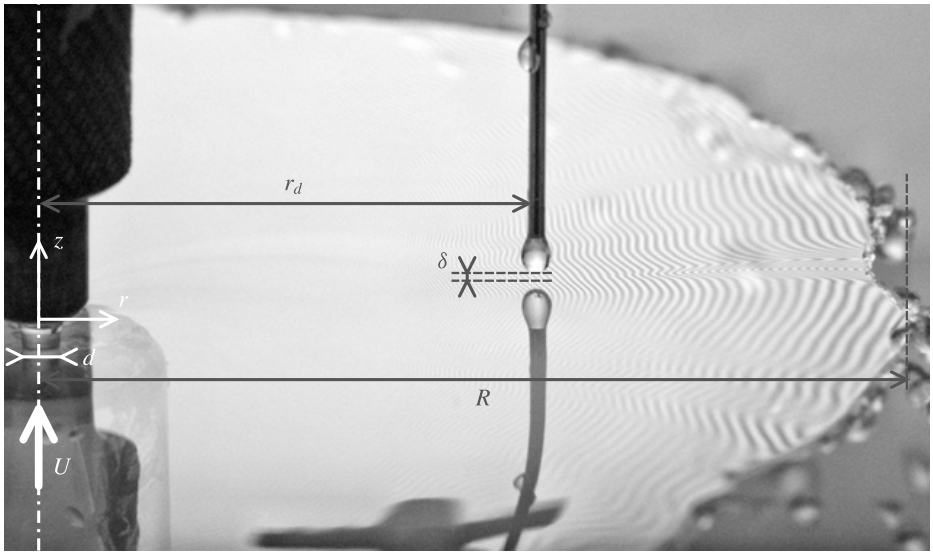

FIGURE 2. Clean films production: a radially expanding film with extension R is produced by the impact of a liquid jet of velocity U and diameter d on a solid surface. A disturbance for the film surface tension is made at radius r_d by approaching a drop of volatile liquid at a distance δ from the film.

of phenomena associated with the cohesion of liquids (see Villermaux & Almarcha (2016) and references therein). It consists of a liquid jet impacting normally onto a solid disk, thus producing a stationary, radially expanding sheet thinning with the distance from the impact point (figure 2). The only control parameters defining the extension of the sheet are the impacting jet diameter d and the Weber number

$$We = \frac{\rho U^2 d}{\sigma}, \tag{2.1}$$

where U is the jet velocity, ρ the liquid density and σ its surface tension (for water, $\rho = 10^3$ kg m^{-3} and $\sigma \approx 70$ mN m^{-1}). As long as the interaction with the ambient air is negligible (Villermaux & Clanet 2002), and so are the viscous losses at the impacting disc (Villermaux, Pistre & Lhuissier 2013), the sheet is continuous up to a radius R typically given by the radial location of the so-called nodes at its rim (Gordillo, Lhuissier & Villermaux 2014), written as

$$R = \frac{4}{5} R_{TC}, \quad \text{with} \quad \frac{R_{TC}}{d} = \frac{We}{16}, \tag{2.2}$$

where R_{TC} denotes the Taylor–Culick radius (Taylor 1959*b*; Culick 1960). With $d =$ 3 mm and $U = 3$ m s^{-1} typically, we have $We = O(10^2)$, and $R \approx 5$ cm. The film formed in this way has a thickness $h(r)$ decreasing as the inverse of the distance to the impact point r as

$$h(r) = \frac{d^2}{8r}, \tag{2.3}$$

ranging from 200 μm close to the impact point, to 10 μm close to the sheet rim. The velocity U is conserved along a radial trajectory, a feature enabling to study in space r a phenomenon which would have occurred in time t on a film at rest by a

	Diffusivity in water D ($\times 10^{-9}$ m^2 s^{-1})	$Sc = \nu/D$	Liquid volatility p_V (kPa)	Solubility in water k_H (mol kg^{-1} bar^{-1})
Acetone	1.3	3.1×10^3	30	30
Ethanol	1.2	1.1×10^3	7.8	200
IPA	1	2.6×10^3	5.3	100
Water	—	—	3.2	—
Heat	140	7	—	—

TABLE 1. Properties of the substances used for the σ-perturbation, given at 25 °C: diffusion coefficient in water D, Schmidt number, vapour pressure p_V and Henry's law constant k_H. Data from Pratt & Wakeham (1975), Vargaftik, Vinogradov & Yargin (1996), Lide (2010) and Linstrom & Mallard (2017).

simple transform $\Delta r = U\Delta t$. The films thus produced are insensitive to gravity since the Froude number $U^2/(gR)$ is much larger than unity. They are, in addition, thanks to the large interfacial area generated by the radial expansion of the sheet in a relatively short time ($R/U = O$ (10 ms)), self-cleaned (Marmottant, Villermaux & Clanet 2000).

2.2. *Methods of perturbation*

We alter the film surface properties from the outside in different ways, the objective being to perturb its surface tension locally in a controlled manner. This is achieved either by:

(i) projecting droplets of chemical substances different from water, but soluble in it like acetone, ethanol or isopropyl alcohol (IPA),
(ii) suspending at a controlled distance δ from the film a drop of known size $2a$, evaporating in the surrounding air and incorporating as dissolved gas in the film (see figure 2), a method initially mentioned by Maxwell (1875),
(iii) suspending a paper strip of known width, imbibed with the same volatile liquids,
(iv) approaching the tip of a soldering iron (typically $T = 300$ °C), warming up the air around it and the film.

The perturbing chemical substances were chosen to be volatile and their vapour soluble in water (see their properties in table 1).

The distance δ separating the perturbation from the film, carefully measured, is varied from a centimetre, down to a fraction of a millimetre. The film is moving with velocity U in a quiescent atmosphere: there forms an inevitable Blasius boundary layer around it. The latter sets a critical distance that grows with the distance r to the jet impact as $\sqrt{\nu_a r/U} \sim 1$ mm, with ν_a the air viscosity, and above which no effect could be seen and hardly measured: most of the observations were done with drops of pure substances evaporating in air, or the hot tip warming up the air, inside this boundary layer. Transfers across the boundary layer made the actual size of the perturbation $2a$ on the film slightly different from the typical size of the drop (typically 1 mm) or iron pan (typically 0.3 mm).

In all cases, the surface tension of the water film is lowered locally by a small amount $\Delta\sigma$, compared to its base value $\sigma \approx 70$ mN m^{-1}. For instance, as can be seen from figure 3 collecting data of surface tension for different mixtures and temperatures (Vargaftik *et al.* 1983; Vazquez *et al.* 1995; Enders *et al.* 2007),

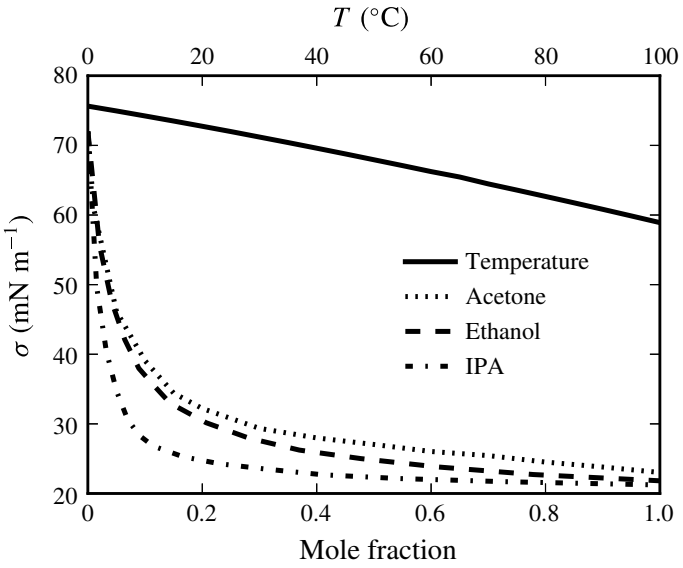

FIGURE 3. Surface tension dependences of isopropyl alcohol (IPA), ethanol (Vazquez, Alvarez & Navaza 1995) and acetone (Enders, Kahl & Winkelmann 2007) solutions on their mole fraction in water. Dependence of water surface tension on temperature T (Vargaftik, Volkov & Voljak 1983).

decreasing by 1 mN m^{-1} the surface tension of water implies warming up the liquid by 5 °C, or diluting it with traces of ethanol. It will be seen that, as small as they may seem to be, these local changes of the water composition have dramatic consequences on the film stability. Occasionally, we produced an ethanol film by the same method as the one described in § 2.1, which we perturbed by approaching a water droplet. In that case, the surface tension of the film was locally increased.

2.3. *Imaging*

The liquid film is stationary; it is perturbed either in a stationary fashion by altering locally its environment through the vapour composition (temperature) field introduced by a steady evaporating drop (hot source), or the perturbation is itself transient when a droplet is projected on the film. Still pictures were used to measure the perturbed film thickness fields, and high-speed imaging was useful for documenting the transients. Two main visualisation techniques were used, as detailed below.

2.3.1. *Interferometry*

In a first configuration, the liquid film is horizontal and lit by a monochromatic ($\lambda = 589$ nm) low-pressure sodium lamp placed above, with an inclination angle of approximately $i \approx 45°$ (figure 4*a*). The reflected interference pattern is a series of stripes, each tracing a given film thickness (figure 5*a*). The film thickness increment Δh between two adjacent bright or dark fringes is $\Delta h = \lambda/(2n \cos i_r)$, with n the refractive index of the liquid and i_r the refracted angle in the liquid (Isenberg 1992). The slow $1/r$ film thickness decrease in (2.3) can be measured this way (Clanet & Villermaux 2002). Here, it is used to set an absolute reference from which the relative thickness is computed sequentially from one fringe to another (figure 5*b*). In this way, following distorted fringes, the whole film thickness field may be interpolated. With water we have $\Delta h \approx 0.25$ μm, so this quantitative technique, of which we will

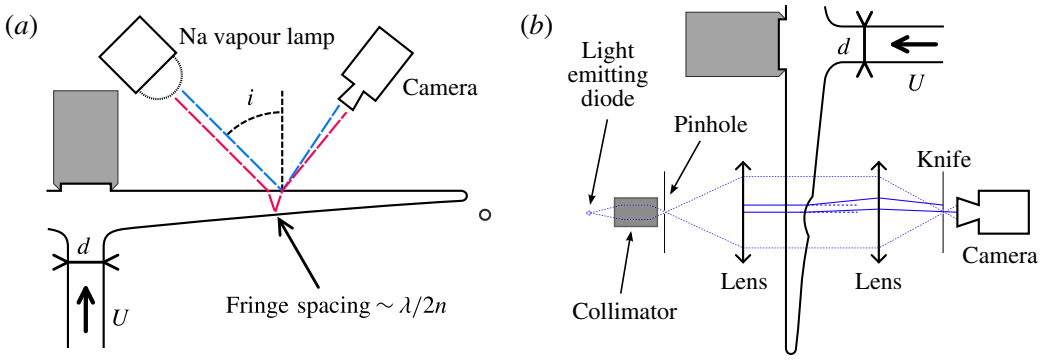

FIGURE 4. (Colour online) Visualisation techniques. (*a*) Interferometry: a sodium vapour lamp imprints stripes on the sheet. Two consecutive fringes are separated by a constant thickness jump $\Delta h = \lambda/2n \cos i_r$, with i_r the refracted angle inside the sheet. (*b*) Schlieren: modulations of the thickness of the sheet, located in the plane of observation, deviate parallel light as would optical lenses.

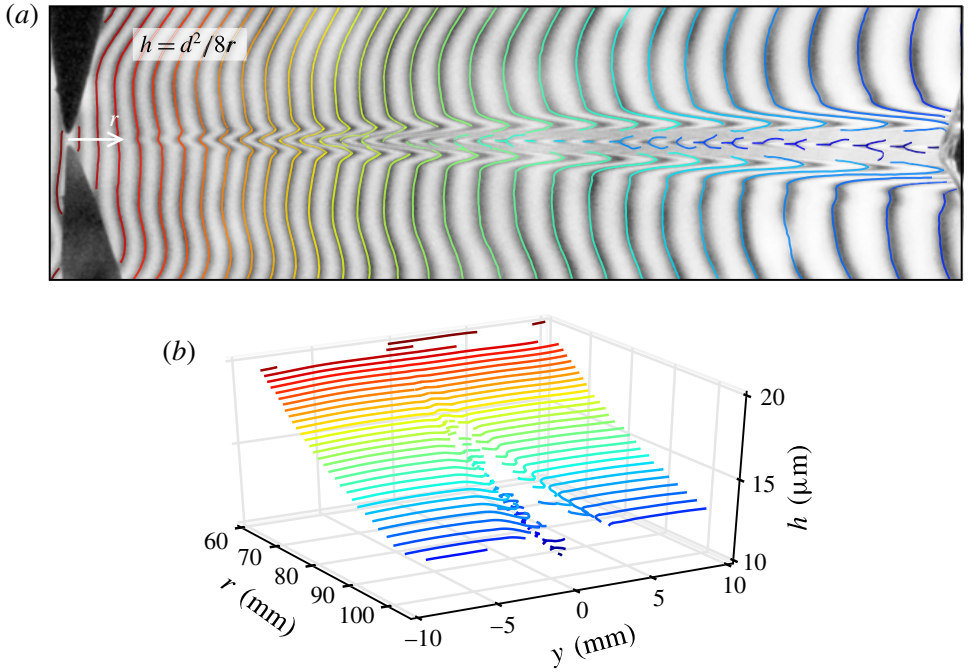

FIGURE 5. (Colour online) Thickness measurement technique. (*a*) Typical interferometric picture. Each dark fringe is a line of iso-thickness, separating from the following by a constant $\Delta h \approx 0.25$ μm. A reference is made where the film is unperturbed. (*b*) Iso-thickness ridges are plotted in three dimensions.

make extensive use in § 4, is very sensitive. With a typical image resolution of a few tens of pixels per millimetre, the maximal measurable thickness gradient between two distinguishable consecutive fringes is of the order of $\partial_x h \sim 10^{-3}$.

2.3.2. *Schlieren*

In a second configuration, the liquid film is formed in the vertical plane, and observed through a schlieren apparatus consisting of an arrangement of collimating lenses and pinholes (figure 4*b*). Like the interferometry imaging technique described

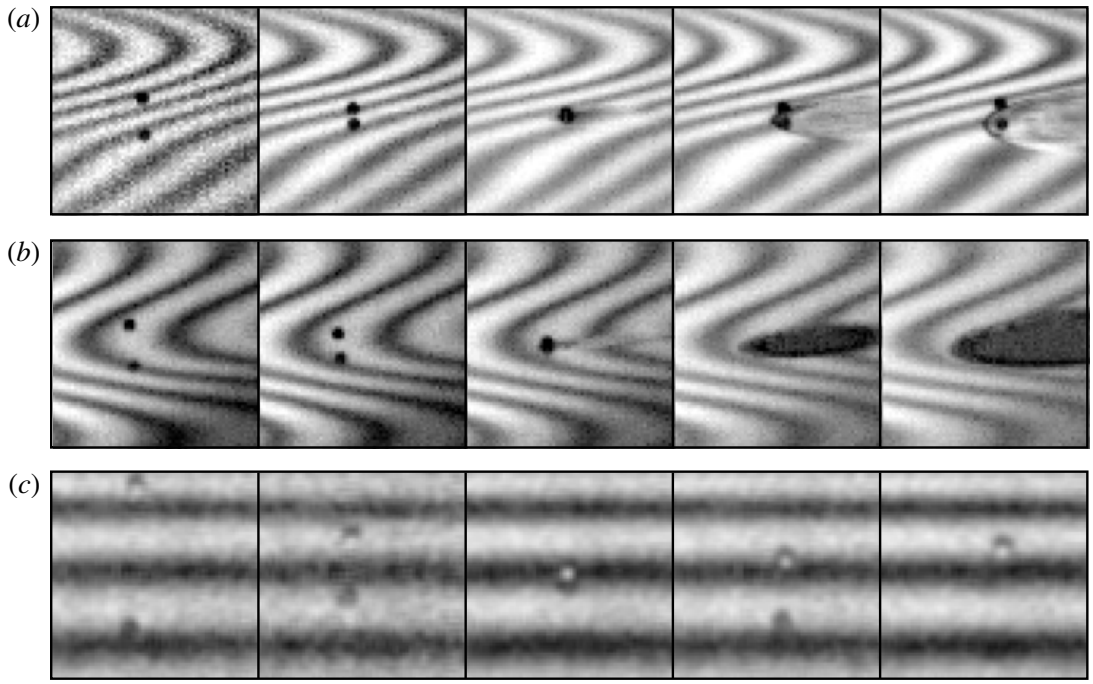

FIGURE 6. (*a*) Water or (*b*) ethanol droplet (200 μm in diameter) falling on a moving water film ($U = 3.5$ m s^{-1}) with thickness $h = 18$ μm. Pictures are 3.3 mm wide, recorded every $\Delta t = 250$ μs. (*a*) The water droplet rebounds, when (*b*) the ethanol droplet pierces the film. (*c*) Ethanol droplet (150 μm in diameter) falling on a static soap film with thickness $h = 5$ μm, and rebounding. Pictures are 1.1 mm wide, recorded every $\Delta t = 1$ ms.

above, this technique does not give direct access to absolute measurements of the film thickness. It is, however, extremely sensitive to thickness modulations, since any curvature on the film plane acts as a lens, deflecting the light rays and thus producing either darker or brighter regions through the visualisation pinhole. The method singles out thickness gradients (Settles 2001), and is useful at documenting, qualitatively, the dynamics of the transients (figures 7 and 8).

2.4. *Qualitative observations*

We illustrate the extreme sensitivity of liquid films to a variation of the chemical composition of their immediate surface environment.

When a water droplet 200 μm in diameter is slowly deposited on a water film 18 μm thick running at a few metres per second, it rebounds off it, slightly perturbing the film thickness field in a wake of capillary waves, which will soon damp, leaving the film intact (figure 6*a*). On the other hand, if the exact same experiment is made using an ethanol droplet instead, then the fate of the film changes drastically (figure 6*b*). Before the droplet has hit the film, the film thickness just below the droplet and its wake thins rapidly, leading to its irreversible puncture.

The same kind of observation is made using a schlieren type of visualisation (figure 7). While a water drop on a water film produces an impulse response type of capillary waves pattern before coalescing in it with no other consequence, an ethanol droplet moves the interstitial liquid in the film violently outward, digging it down to puncture. When the film is armoured with surfactant molecules (a commercial

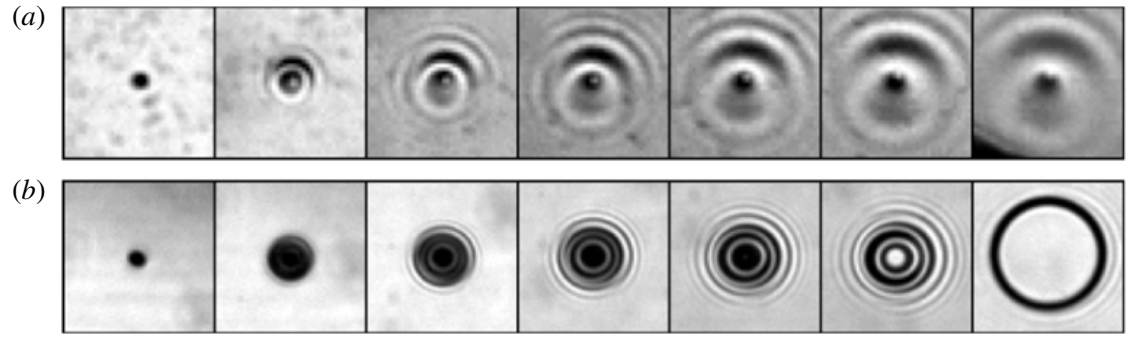

FIGURE 7. (*a*) Water droplet falling on a moving water film ($U = 3.8$ m s^{-1}) with thickness $h = 14$ μm, and generating capillary waves. Pictures are 3.6 mm wide, recorded every 700 μs. (*b*) Ethanol droplet falling on a moving water film ($U = 3.9$ m s^{-1}) with thickness $h = 13$ μm, and piercing it. Pictures are 5.8 mm wide, recorded every 500 μs.

mixture of non-ionic and anionic molecules, by Dreft, Procter & Gamble), however, an ethanol droplet impacting on it rebounds (figure 6*c*), with no puncture. The layer of surfactants has prevented the onset of an irreversible outward flow and subsequent film rupture observed in figures 6(*b*) and 7(*b*).

These observations, which are reminiscent of those made by Thoroddsen, Etoh & Takehara (2006) in a different but related context, also reveal that the ethanol droplet and the liquid film are in interaction, through the ethanol vapour field surrounding the volatile droplet before the droplet has contacted the film (figure 8*a*). The strongly dissymmetrical shape of the opened hole after puncture demonstrates *a posteriori* that the film had already been dug in the wake of the droplet (the thinner the film, the faster the rim velocity). Thus, the minute quantities of ethanol which have evaporated from the droplet, have been mixed in the boundary layer at the surface of the running film, and have finally been incorporated at the surface of the liquid, are enough to produce a major and catastrophic change of the film thickness field. This suggests that a strong amplification mechanism is at play to move the interstitial liquid once its surface has been contaminated.

That mechanism has, nevertheless, a threshold. Figure 8(*b*) shows that the interaction of an ethanol droplet rebounding on a water film may not lead to film puncture if the droplet is too small, and the rebound time too short. The film thickness field is perturbed in the wake of the droplet, but is restored to a flat shape after rebound. This fact also suggests that a minimal quantity of ethanol should be incorporated in the liquid and/or that it should be deposited on a sufficiently large spot to trigger the amplification mechanism.

3. A mechanism

In order to make sense of the observations above, we first examine a simple argument, whose relevance will be investigated more closely on hand of precise experiments in § 4. We study a one-dimensional model of film dynamics for which the driving force is a gradient of concentration $c(x, t)$ of pollutant, translating in a gradient of surface tension by a linear transformation which suits to diluted traces of pollution (see figure 3):

$$\sigma(c) = \sigma - c \left| \frac{\partial \sigma}{\partial c} \right|_{c \to 0}, \tag{3.1}$$

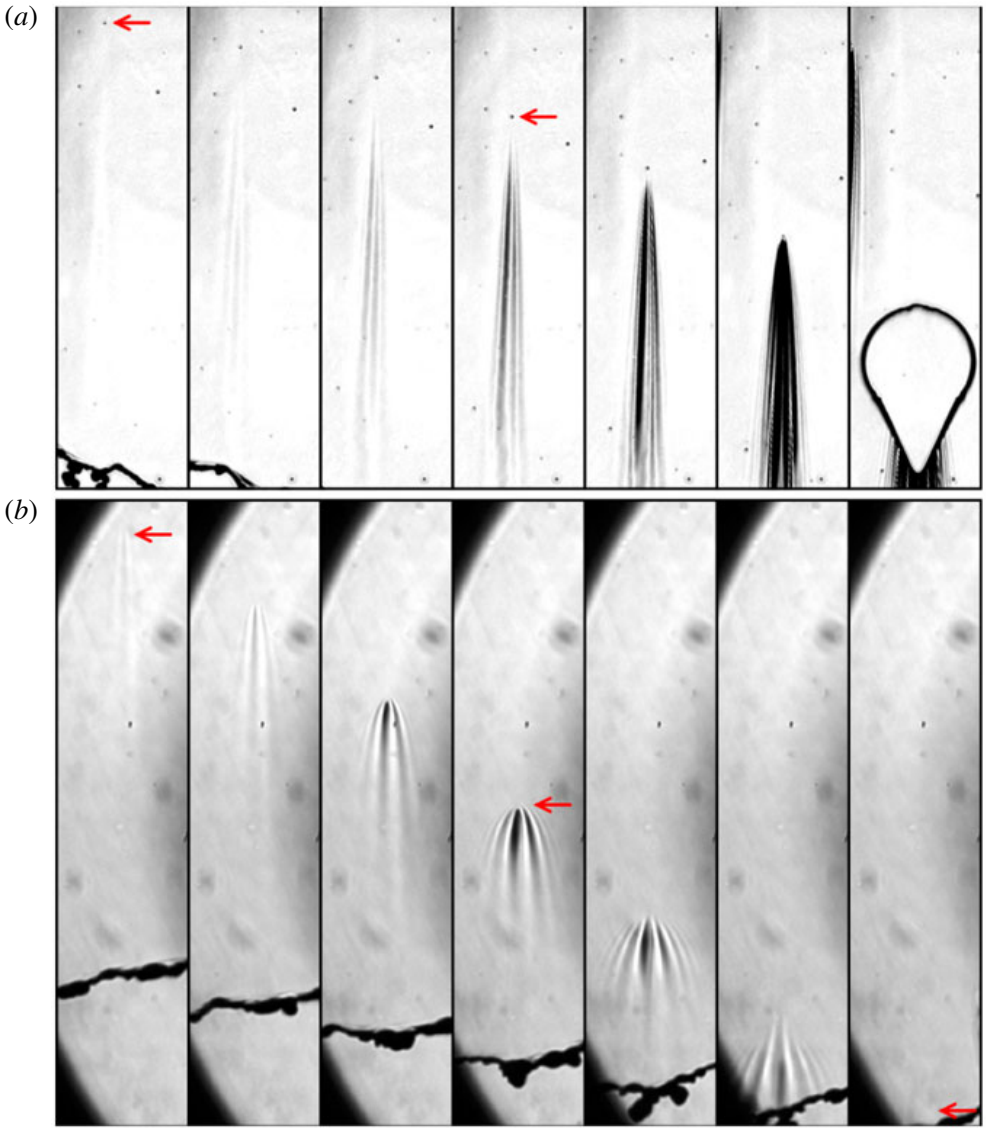

FIGURE 8. (Colour online) Ethanol droplets approaching a 10 μm thick film falling downwards ($U = 4.7$ m s^{-1}). (*a*) Pictures are 12 mm wide, recorded every $\Delta t = 4$ ms. Note the uneven hole opening shape after the droplet pierces the film. (*b*) Pictures are 9.3 mm wide, $\Delta t = 2$ ms. The tiny droplet rebounds on the film and modifies the thickness field, but does not puncture it (see also figure 1).

with σ the surface tension of the clean film. The interstitial liquid with velocity $\boldsymbol{u} = \{u_x, u_z\}$ is set into a motion triggered by the Marangoni stress communicated across the film depth h by liquid viscosity η as $\partial_x \sigma = \eta \partial_z u_x$, giving rise to a depth averaged velocity $v(x, t) = \int_0^h u_x \, \mathrm{d}z/h$ describing a plug flow along the film provided $|v/h| \gg |\partial_x \sigma / \eta|$.

A one-dimensional model disregarding the phenomena occurring in the depth of the film will hold for times larger than the diffusion time of mass across the film h^2/D for the two interfaces of the film to be equally affected by the concentration of pollutants, and larger than the diffusion time of vorticity h^2/ν for the superficial stress to be communicated to the entire film depth ($\nu = \eta/\rho$, with ρ the liquid density). Given

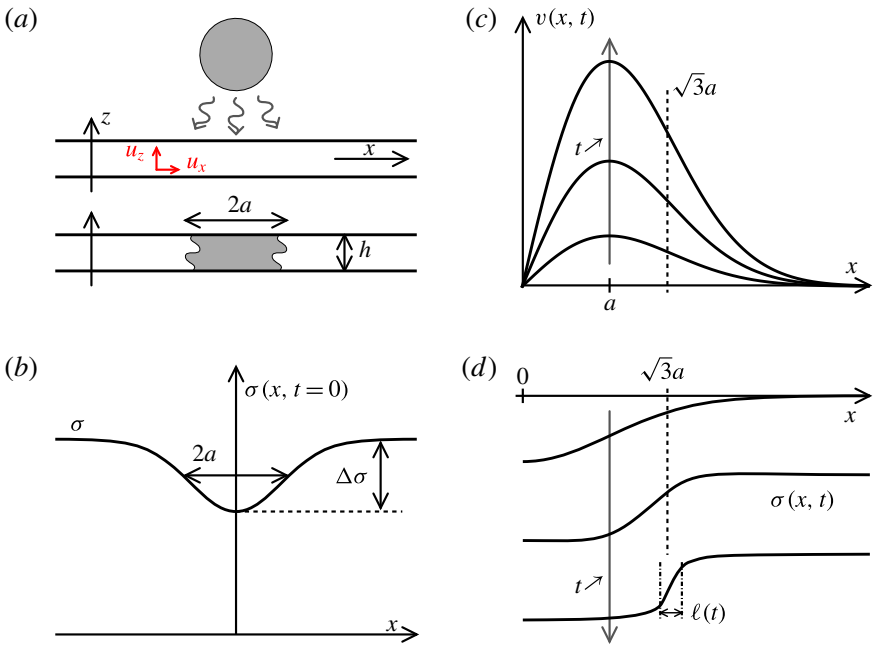

FIGURE 9. (Colour online) Sketch of the mechanism. (*a*) A liquid film with thickness h being contaminated over a size $2a$. (*b*) Initial profile of the liquid surface tension. (*c*) Induced displacement field $v(x,t)$ along the film for increasing times t. (*d*) Surface tension profiles for increasing times illustrating the existence of a plateau at $\sigma - \Delta\sigma$ around $x = 0$, and a steepening front around $x = a\sqrt{3}$ of decreasing width $\ell(t)$.

the Schmidt number of ethanol in water, $Sc = \nu/D = O(10^3)$, the second condition is easily met when the first is (figure 9*a*).

In that idealised limit, the transport of the pollutant concentration along the film results from both substrate motion and molecular diffusion with flux $j = -D\partial_x c$. A detailed balance provides

$$\partial_t c + v\partial_x c = -\partial_x j - j\frac{\partial_x h}{h}, \tag{3.2}$$

$$j = -D\partial_x c, \tag{3.3}$$

while mass conservation of the substrate, in the same one-dimensional approximation, is given by

$$\partial_t h + \partial_x(hv) = 0. \tag{3.4}$$

The flow will result from the contamination of the film interface over a size $2a$, typically larger than the film thickness h. We anticipate an induced flow with velocity $|v|$ such that $|v|a/\nu \gg 1$. In other words, if viscosity dominates the transfer of momentum across the film, it is negligible for the motion along the film. The momentum balance is thus given by

$$\partial_t v + v\partial_x v = \frac{2}{\rho h}\partial_x \sigma - \frac{1}{\rho}\partial_x\{\sigma\mathcal{K}\}, \tag{3.5}$$

where the factor 2 stands for the two sides of the film, and $\mathcal{K}$ is the film thickness curvature.

In order to reach a meaningful solution to this model through a tractable analysis, we make further simplifications. We study the dynamics of the film from its initial immobility, and therefore $|v\partial_x v| \ll |\partial_t v|$. The film is initially smooth so that $|\partial_x h| \to 0$, and we concentrate on films which are planar but dirty so that the Laplace term $h\partial_x\{\sigma\mathcal{K}\}$ is subdominant to the Marangoni stress $\partial_x\sigma$ in (3.5). This being posed, making use of (3.1), (3.2) and (3.5) provides

$$\partial_t v = \frac{2}{\rho h}\partial_x\sigma \tag{3.6}$$

$$\partial_t\sigma + v\partial_x\sigma = D\partial_x^2\sigma \tag{3.7}$$

describing, together with (3.4), how the film dynamics is coupled to the pollutant concentration field (of which the σ-field is an inverted image, from (3.1)). Surface tension (concentration) diffuses along the film on a substrate whose velocity v varies according to its gradient. If it happens that the induced flow reinforces the surface tension gradient, a dramatic dynamics may result.

3.1. *A spot of dirt*

The examples we have listed in §§ 2.2 and 2.4 all involve a perturbation introduced locally on the surface of the film which is made 'dirty' over a given size $2a$ where the liquid surface tension is lowered. We thus represent the initial spot of dirt by a smooth bell-shaped deficit of surface tension with intensity $\Delta\sigma$ and width a by (figure 9*b*)

$$\sigma(x, t=0) = \sigma - \Delta\sigma \mathrm{e}^{-(x^2/2a^2)}, \tag{3.8}$$

$$\text{so that} \quad \partial_x\sigma|_{t=0} = \frac{\Delta\sigma}{a^2} x \mathrm{e}^{-(x^2/2a^2)}. \tag{3.9}$$

This initial surface tension gradient accelerates the interstitial fluid according to (3.6) so that the initial motion of the film has velocity (on the $x > 0$ side, see figure 9*c*)

$$v(x, t) \sim \frac{t\,x}{\tau_0^2} \mathrm{e}^{-(x^2/2a^2)}, \tag{3.10}$$

where τ_0 is the characteristic time of the motion

$$\tau_0 = \sqrt{\frac{\rho h a^2}{\Delta\sigma}}, \tag{3.11}$$

with h the initial film thickness. The velocity (3.10) increases from $x = 0$, then reaches a maximum, and decays far from the spot for $x \gg a$. Fluid particles at the centre of the spot are stretched and moved towards the spot periphery where they are stuck and compressed in the region where the velocity gradient is negative. The analysis of the σ-field dynamics in that region is worthy of interest since it explains why and when the initial rearrangements along the film in (3.10) may amplify or relax.

An obvious candidate for relaxation is the diffusive smearing of the contaminant. The typical time it takes for the dirty spot to diffuse over its initial size is a^2/D, and if it does so within less than τ_0, the rearrangements described above will not have time to occur before the film has come back to surface homogeneity. Another way of expressing the same condition is to write it in terms of velocities, comparing the diffusion velocity D/a with the Taylor–Culick speed based on the surface tension

deficit $\sqrt{\Delta\sigma/\rho h}$. When the latter is larger than the former, that is, when the Péclet number

$$Pe = \frac{a^2}{D\tau_0} \tag{3.12}$$

is larger than unity, rearrangements can occur. We thus examine below the interplay between dirt diffusion along the film and the displacement field induced by its initial inhomogeneity.

3.2. *Mixing analogy*

We call γ the maximal rate of compression along the film obtained in $x = a\sqrt{3}$,

$$\gamma = \max(-\partial_x v) \sim \frac{t}{\tau_0^2}, \tag{3.13}$$

and expand the negatively sloped velocity $v(x, t) = v(a\sqrt{3}, t) - \gamma\,\tilde{x}$ about this point, with $\tilde{x} = x - a\sqrt{3}$. In that shifted frame, the transport equation of surface tension (3.7) has the characteristic form of a diffusion problem on a deformed substrate well known in the scalar mixing context (Ranz 1979; Villermaux & Duplat 2003; Villermaux 2012),

$$\partial_t\sigma - \gamma\tilde{x}\partial_{\tilde{x}}\sigma = D\partial_{\tilde{x}}^2\sigma, \tag{3.14}$$

expressing how substrate compression and diffusive broadening compete. A suitable transformation of space and time maps (3.14) onto a pure diffusion equation. Let $s(t)$ be the distance between two material points initially distant from a in that region of the substrate; then

$$\frac{\dot{s}}{s} = -\gamma, \quad \text{or} \quad s(t) = a\mathrm{e}^{-(t^2/2\tau_0^2)}, \tag{3.15a,b}$$

and further defining (Ranz 1979)

$$\xi = \frac{\tilde{x}}{s(t)} \quad \text{and} \quad \tau = D\int_0^t \frac{dt'}{s(t')^2} \tag{3.16}$$

$$= \frac{1}{2Pe}\int_0^{(t/\tau_0)^2} \frac{\mathrm{e}^z}{\sqrt{z}}\,\mathrm{d}z, \tag{3.17}$$

we have

$$\partial_\tau\sigma = \partial_\xi^2\sigma \tag{3.18}$$

whose solutions are known for any initial spatial profile of σ. In particular, molecular diffusion alters the distribution of the σ levels for times τ larger than unity (Villermaux & Duplat 2003). If the Péclet number is small, that condition will be reached while τ essentially behaves like the normal time t as in a pure diffusion process:

$$\tau \xrightarrow{Pe\ll 1} \frac{Dt}{a^2}. \tag{3.19}$$

In contrast, if the Péclet number is large, integrating τ in (3.17) by parts shows that it varies extremely fast with time as

$$\tau \xrightarrow{Pe\gg 1} \frac{1}{2Pe}\frac{\mathrm{e}^{(t/\tau_0)^2}}{t/\tau_0} \tag{3.20}$$

in its route towards the condition $\tau(t_s) = O(1)$ which defines the mixing time t_s. That time is simply the diffusion time a^2/D for $Pe \ll 1$, and is

$$t_s \sim \tau_0\sqrt{\ln Pe}, \tag{3.21}$$

essentially given by the kinematic time τ_0, very weakly dependent on molecular diffusion for $Pe \gg 1$.

3.3. *Consequences*

The schematic scenario depicted above has an interesting consistency with some of the observations reported in § 2.4, and provides additional predictions.

First, this mechanism accounts for the existence of a threshold. If the spot is too small (small a), or too faint (weak $\Delta\sigma$ and hence large τ_0), the Péclet number will be smaller than one, and the perturbation of surface tension will simply vanish by molecular diffusion before the film has appreciably moved. This is consistent with the comparison made in figure 8 showing that a tiny droplet of ethanol rebounding at the film surface does not alter it much, while a similar droplet coalescing with the film (thus producing a stronger $\Delta\sigma$, hence a smaller τ_0 and therefore a larger Pe) leads to rupture.

Second, this mechanism describes the morphology of the depleted region of the film before rupture. For $Pe \gg 1$, the motion along the film caused by an initial surface tension gradient reinforces that gradient in a self-amplified fashion. The amplification is so strong (the distance between kinematic markers in (3.15) shrinks faster than exponentially) that even after the mixing time, molecular diffusion does not damp it. The width of the surface tension gradient in the compression zone $\ell(t)$, a generalised Batchelor scale (Batchelor 1959; de Rivas & Villermaux 2016), is such that (see (3.15) and (3.20))

$$\ell(t) \sim s(t)\sqrt{\tau}, \tag{3.22}$$

$$\sim \frac{a}{\sqrt{Pe}}\sqrt{\frac{\tau_0}{t}} = \tau_0\sqrt{\frac{D}{t}} \quad \text{for } Pe \gg 1, \tag{3.23}$$

thus building a steepening front at the periphery of the spot (figure 9*d*), with gradient of the order of $\Delta\sigma/\ell(t)$.

At the centre of the spot close to $x = 0$, the situation is exactly the opposite. There, the velocity gradient $\partial_x v$ in (3.10) is positive, with the same intensity t/τ_0^2 in absolute value than in the compressive region, but is now smoothing the surface tension gradient (the equation describing the phenomenon is identical to (3.14), with a plus sign in front of the convection term). Similar lines as above show that τ now saturates as $\tau \to 1/Pe$ for $Pe \gg 1$, and that the surface tension profile is a plateau with height $\sigma - \Delta\sigma$. The surface tension gradient is expelled at the periphery of the blob by a flow pushing the fluid particles outwards up to the periphery of the spot, where they accumulate in a bump. That accumulation causes the radiation of waves

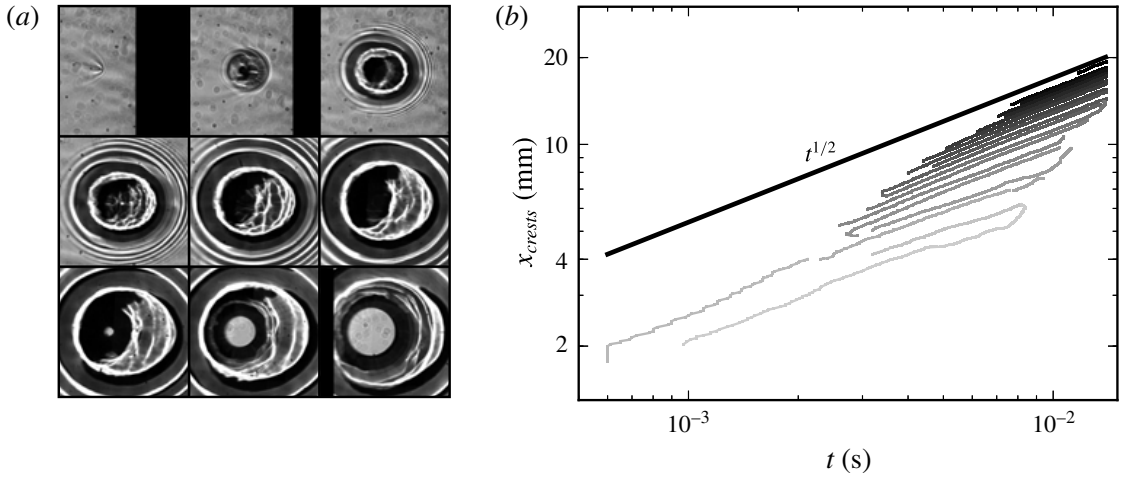

FIGURE 10. (*a*) Wave pattern (and film rupture) generated by a droplet of ethanol ($a = 100$ μm) landing on a thick water film $h = 250$ μm. Pictures are 8.6 mm wide, recorded every 800 μs, reading from left to right, top to bottom. (*b*) Wave crests are tracked along time and their location x_{crests} is plotted in logarithmic scale.

in the rest of the film ($x > a$), which are convincingly of the varicose type (Taylor 1959*a*). The wave (with pulsation ω and wavenumber k) crest displacements x_{crests} in time t in the growing bump have a self-similar pattern in x^2/t, consistent with their dispersion equation $\omega^2 = (\sigma h/\rho)k^4$ in the long wave limit $kh \ll 1$ (see figure 10 and Duchemin *et al.* 2015).

Finally, the spot concomitantly depletes at its centre, digging the film down to the cancelling of its thickness. Close to the spot centre where $\partial_x h = 0$ by symmetry, equations (3.4) and (3.10) provide

$$\frac{\dot{h}}{h} = -\partial_x v|_{x=0} \sim -\frac{t}{\tau_0(h)^2}. \tag{3.24}$$

If one naively retains the current value of h in $\tau_0(h)$ in order to extend the prediction of this short-time mechanism to subsequent instants of time, one anticipates from (3.24) that the film thickness goes to zero in a finite time, of the order of τ_0 based on the initial film thickness given in (3.11): the film ruptures. The case of a unilateral front is presented in appendix A.

However, the present mechanism predicts only an amplification of the gradient of σ through the action of a displacement field caused by its initial spatial inhomogeneity. We have not described the retroaction of the modified σ-field on the displacement field itself which, since the effect reinforces the cause (the steepness of the σ-field), will unavoidably lead to rapid film thinning, even before the ultimate regime where (3.23) holds is reached. It is in that sense that the mechanism we have described is 'self-sustained' (see also the related discussion in Burton & Taborek 2007).

3.4. *In two dimensions*

Films in nature are planar, and one may wonder how the scenario analysed above is altered when the perturbation is no longer along a segment but has a radius a, producing a radial flow expanding in two dimensions, as for all the examples we

have shown in § 2.4. Within the same approximation as in (3.7), the two-dimensional transport equation for surface tension is

$$\partial_t \sigma + v\partial_r \sigma = \frac{D}{r}\partial_r(r\partial_r \sigma) \tag{3.25}$$

for an axisymmetric spot $\sigma(r, t)$ evolving through a radial flow $v(r, t)$ depending on the radial coordinate r. The phenomenology is qualitatively identical to the one-dimensional case, and presents a compressive region at the periphery of the spot in $r_c = a\sqrt{3}$ where we expand the velocity as $v(r, t) = v(r_c, t) - \gamma\tilde{r}$ with $\tilde{r} = r - r_c$. The equivalent of (3.14) now reads

$$\partial_t \sigma - \gamma\tilde{r}\partial_{\tilde{r}}\sigma = \frac{D}{\tilde{r} + r_c}\partial_{\tilde{r}}\{(\tilde{r} + r_c)\partial_{\tilde{r}}\sigma\}. \tag{3.26}$$

The width of the compression region shrinks, and the σ-field varies essentially over a length scale $\ell(t)$ decreasing in time. The expansion leading to (3.26) is thus valid for excursions r about r_c small compared to $\ell(t)$. Therefore, $|\tilde{r}| = O(\ell(t))$ at most and as soon as $\ell(t)/r_c < 1$, the two-dimensional problem (3.26) amounts to its one-dimensional version (3.14). Because the flow builds a thinning compressing front, the one-dimensional approximation is soon valid.

4. Detailed measurements

Having discussed a possible mechanism for the spontaneous dramatic thinning and puncture of dirty liquid films, we now investigate its relevance on hand of a controlled experiment, where all the transients can be measured and quantified.

4.1. *Experiments on a Savart sheet*

We use stationary, self-cleaned water films produced by a Savart sheet as described in § 2.1. The mechanism in § 3 relies on two physical quantities of interest, namely the time scale τ_0 and the Péclet number Pe based on this time. For example, a spot of size $a = 100$ μm made up of dissolved ethanol ($D \sim 10^{-9}$ m^2 s^{-1}) inducing an arbitrary surface tension deficit of 0.1 mN m^{-1} on a water film (density $\rho = 10^3$ kg m^{-3}) with thickness $h = 10$ μm, will result in an instability time of order $\tau_0 \sim 1$ ms (3.11) – a time scale comfortably larger than the time of vorticity transfer across the film $h^2/\nu \sim 10^{-1}$ ms. The Péclet number will then be estimated at $Pe \sim 10^4 \gg 1$: clearly, molecular diffusion will not regularise this spot, and the self-amplified scenario in § 3 is likely to hold.

In a Savart sheet, advection of the fluid particles at constant radial velocity U (typically $U = 3$ m s^{-1}) conveniently maps time onto a measurable distance since the surface tension perturbation is fixed in the laboratory frame. The disturbance with size $2a$ is introduced at the distance r_d from the impact point, and because of the circular expansion of the sheet, an ingredient which does not modify the physical content of the problem, we will need a divergence angle $\alpha = a/r_d$ (see figures 2 and 11). The spatial and temporal coordinates (x, t) defined previously in § 3 are recovered from the ortho-radial and radial coordinates (θ, r) used in the Savart sheet (figure 11) as

$$x = r\theta \simeq r_d\theta, \tag{4.1}$$

$$t = \frac{r - r_d}{U}. \tag{4.2}$$

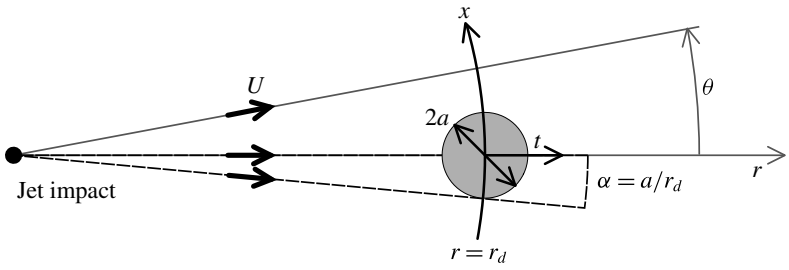

FIGURE 11. Geometrical transform of the natural (θ, r) coordinates of the circular Savart sheet into (x, t), the coordinates of the mechanism.

In the frame of the laboratory, the flow in the sheet, whether or not it is disturbed, is stationary. The equations describing the motion of the film are thus adapted from § 3 in this particular diverging geometry. Under the same assumptions, substrate mass conservation must account for the undisturbed radial film thickness decrease in (2.3), a consequence of the base flow divergence, and we have

$$U\partial_r(hr) + \partial_\theta(hv) = 0, \tag{4.3}$$

with v the ortho-radial, depth averaged velocity, defined as in § 3. Equation (4.3) amounts to (3.4) at short distance (times) $\delta r = U\delta t$ after r_d. The dynamics equation along the ortho-radial coordinate θ reads

$$U\partial_r(rv) = \frac{2}{\rho h}\partial_\theta\sigma, \tag{4.4}$$

which, again, restores (3.6) for small distances δr after r_d. Similarly to (3.7), the pollutant concentration (surface tension) transport along the sheet is described by

$$U\partial_r\sigma + \frac{v}{r}\partial_\theta\sigma = \frac{D}{r^2}\partial_\theta^2\sigma, \tag{4.5}$$

which, as well, reduces to (3.7) for small δr after r_d. Therefore, close to the σ-disturbance in $r = r_d$, the one-dimensional description holds, whereas at larger distances (times), the transverse coordinate $x = r\theta$ cannot be approximated by $r_d\theta$ anymore. We thus formalise the problem in terms of angles, rather than distances, i.e. in terms of θ, whose reference scale is $\alpha = a/r_d$.

4.2. *The spot of dirt and initial response*

A disturbance of surface tension is applied to the clean film, according to the methods described in § 2.2. It behaves like a dirty spot of size $2a$, modelled by a bell-shaped curve as in (3.9) at $r = r_d$ (i.e. $t = 0$). The short-time velocity field corresponds to the one in (3.10), written in terms of θ,

$$v(\theta, t) \sim \frac{tr_d}{\tau_0^2}\theta \mathrm{e}^{-(\theta^2/2\alpha^2)}, \tag{4.6}$$

with τ_0 given by (3.11). Figure 12 shows the velocity measurements obtained from particles ($d_p = 10$ µm in diameter) introduced inside the water bulk prior to the

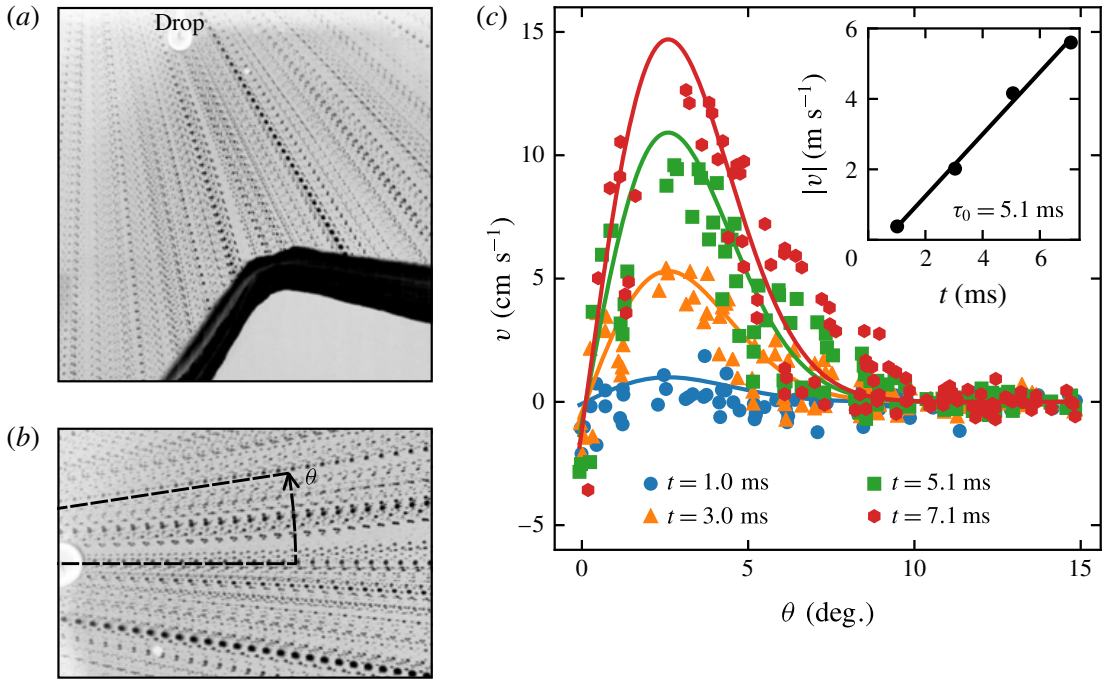

FIGURE 12. (Colour online) Velocity measurements of the interstitial flow. (*a*) Superposition of 500 images grabbed at 3 kHz. (*b*) Close-up view of the tracked particles in the correct coordinates system. Picture is 19 mm wide. (*c*) Transverse velocity v as a function of the angle θ to the drop, averaged around four successive times (i.e. radii) from the drop location (for clarity, only positive angles are plotted). Acetone drop, water film ($U = 2.2$ m s^{-1}, $Fr = 50$, $h = 88$ μm), $r_d = 23$ mm, $\alpha = 2.5°$, $\tau_0 = 5.1$ ms, $\Delta\sigma \simeq 3$ mN m^{-1}, $Pe = 1.5 \times 10^5$. Inset: the amplitude $|v|$ in the expression $v = |v|\theta \exp(-\theta^2/2\alpha^2)$ (see (4.6)) is fitted to the experimental data and plotted versus time t for the corresponding successive times. The time scale τ_0 reads directly from the slope r_d/τ_0^2.

formation of the sheet. Their displacement is observed by backlighting using a high-speed camera (figure 12*a*). Particles were chosen so that their Stokes number $St = (d_p^2/\nu)/\tau_0$, is at most about 10^{-1} so that they behave as passive tracers. Tracking a few hundreds of tracers along their trajectories gives access to time averaged velocity profiles, as a function of the angle θ (figure 12*b*). The profile shape, shown for positive angles, indicates the presence of an interstitial velocity v, removing the liquid out of the central zone where surface tension has been lowered. The outward velocity is of the order of a few cm s^{-1}, much smaller than the radial velocity U, of the order of m s^{-1}. Fitting expression (4.6) to the experimental profiles shows fair agreement. Then, plotting the velocity amplitude versus time reveals the expected linear dependency, predicted in § 3. The slope r_d/τ_0^2 gives a direct measurement for $\tau_0 = 5.1$ ms. From (3.11), we estimate the initial surface tension gap $\Delta\sigma \simeq 3$ mN m^{-1}, a small surface tension deficit relative to the surface tension of the water liquid film ($\sigma \approx 70$ mN m^{-1}).

The short-time behaviour of the surface thickness is derived from (3.4) as

$$\frac{h(\theta, t)}{h} = 1 - \frac{t^2}{2\tau_0^2}\left(1 - \frac{\theta^2}{\alpha^2}\right) \mathrm{e}^{-(\theta^2/2\alpha^2)} \tag{4.7}$$

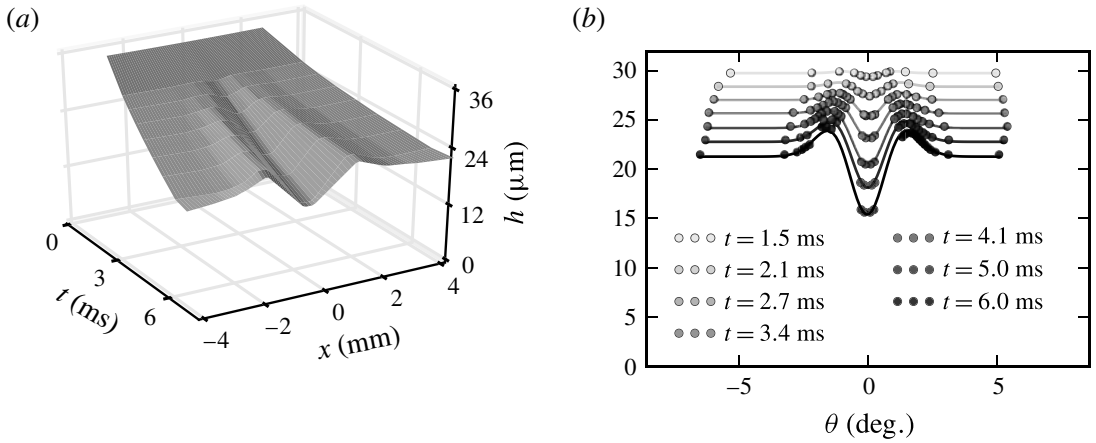

FIGURE 13. Film thickness. (*a*) Interpolated thickness field. (*b*) Transverse thickness profiles for different times (distances) after the perturbation. Experimental data (points) are plotted along with the prediction in (4.7) (solid line) with $r_d = 3.3$ cm, with $\alpha = 0.8 \pm 0.1°$ and $\tau_0 = 6.5$ ms, giving $Pe = 3 \times 10^4$. Ethanol drop, water film, $U = 3.2$ m s^{-1}, $h = 34$ μm.

and is compared to the interferometric measurements of § 2 in figure 13, with α and τ_0 as fitting parameters. Because of the mean radial divergence of the sheet, the thickness profiles are shifted, in the mean, towards lower values for larger distances (times) from the pollutant source (figure 13*b*), while concomitantly a central depletion bordered by bumps grows in amplitude, digging the film. From the fitted time $\tau_0 = 6.5$ ms and $a = 0.5$ mm and the measured film thickness at the location of the perturbation $h = 34$ μm corresponding to the perturbation shown in figure 13, we anticipate that $\Delta\sigma \approx 0.1$ mN m^{-1}, an even smaller fraction indeed of the bare liquid film surface tension, than with the perturbation corresponding to figure 12.

The transverse flow (figure 12) and consecutive local film thinning (figure 13) evidenced here and successfully comparing to the theoretical predictions at short times thus support the early dynamics mechanism of § 3.1. Given the experimental Péclet numbers used here, of the order of 10^4 and larger, diffusion has no chance to regularise the initial dirt.

4.3. *Later times*

The short-time response of the film to a local surface tension deficit predicts a catastrophic thinning through the Marangoni mechanism in § 3, a mechanism which, when closely inspected, is seen to be indeed at play, as just shown, for initial times. However, film digging operates on a substrate which, by construction of the Savart sheet, thins, in the mean. We now incorporate this ingredient in the quantitative analysis for the evolution of the film minimal thickness $h(0, t)$, at the centre of the depleted zone in $\theta = 0$. There, by symmetry, $\partial_\theta h = 0$ at any time t and the mass conservation equation (4.3), together with the time–distance relation in (4.2), provides

$$\partial_t\{h(0, t)(r_d + Ut)\} + h(0, t)\partial_\theta v|_{\theta=0} = 0, \tag{4.8}$$

which solves, using the initial velocity profile (4.6), into

$$\frac{h(0, t)}{h}\left(1 + \frac{Ut}{r_d}\right) = \exp\left\{-\left(\frac{r_d}{U\tau_0}\right)^2\left(\frac{Ut}{r_d} - \log\left(1 + \frac{Ut}{r_d}\right)\right)\right\}. \tag{4.9}$$

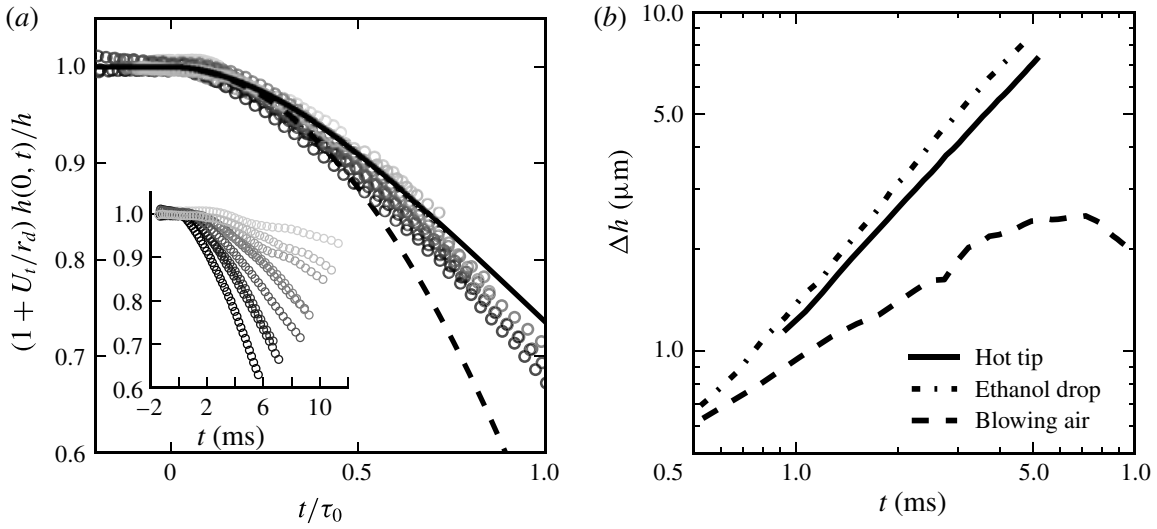

FIGURE 14. (*a*) Film minimal thickness $h(0, t)$ as a function of time t: time is rescaled by τ_0 in the main graph, original time dependences are in the inset. From light grey to black, τ_0 equals successively 24.9; 16.9; 14.3; 10.9; 10.7; 8.7; 6.9; 6.7 and 5.1 ms. The solid line is expression (4.9) and the dashed line its short-time expansion. (*b*) Thickness difference Δh between film thinnest and thickest points as a function of time, for three different local perturbations: hot tip ($\tau_0 = 5.6$ ms), ethanol drop ($\tau_0 = 6.5$ ms) and blowing air onto the film.

In the absence of perturbation ($\tau_0 = \infty$), equation (4.9) expresses the natural thinning of the radially expanding Savart sheet (2.3) and (4.2). For a non-zero perturbation, that is, finite τ_0, the film digs faster than naturally. A short-time expansion of (4.9) restores (3.24), but its validity is now expected to hold for later times.

For given film velocity U and radial location of the perturbation r_d, the only tuneable parameter is τ_0, which is varied by changing the evaporating droplet–liquid sheet distance (see § 4.4). Figure 14(*a*) shows the film minimal thickness $h(0, t)$, rescaled by the substrate decreasing thickness $h/(1 + Ut/r_d)$, as a function of time t, for different τ_0, measured by fitting expression (4.9) on the experimental data. The film thickness decrease is faster and deeper when τ_0 is shorter, and consistently all curves collapse on the same master curve, well represented by the expected trend, although the film seems to thin even faster than expected from (4.9).

These experiments on the Savart sheet produce a modest, though dramatically evolving, relative thickness decrease, but do not exhibit film puncture *per se*, because the sheet is naturally bounded. Instead of puncturing a hole, film thinning results in a reduction of the sheet radius (see (2.2)), the location where incoming radial momentum is equilibrated by surface tension retraction: since the film is thinner, it carries less momentum and therefore the equilibrium is reached sooner, i.e. at a shorter radial distance, as seen in figure 15. Note that even the structure of the sheet rim is altered with respect to the natural case (figure 15a). Contrary to the cusped nodes running along the rim of free sheets (Gordillo *et al.* 2014; Villermaux & Almarcha 2016), the rim now features a stationary cusp that does not collect any liquid (figure 15*b*). The reason is, presumably, that since surface tension is minimal in $x = 0$, a Marangoni stress helps to evacuate the liquid in the rim along which surface tension is gradually increasing, and prevents accumulation in a node, thus smoothing its contour (figure 15*c*). Away from the disturbed zone, the rim has the usual modified cardioid shape (Taylor 1959*b*; Clanet & Villermaux 2002).

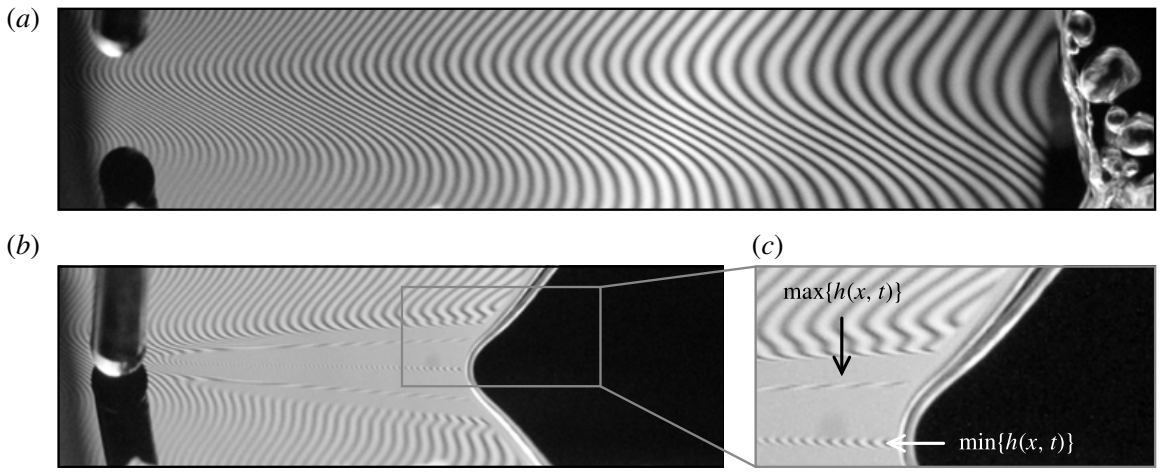

FIGURE 15. Sheet rim retraction. (*a*) Unperturbed sheet, flowing from left to right. The sheet ends up in a corrugated rim. Picture is 48 mm wide. (*b*) Sheet perturbed by an alcohol drop decreasing locally in surface tension: the rim retracts and gets smooth. (*c*) Close-up view of the smooth rim.

Finally, the nature of the phenomenon discussed here is best illustrated by comparing with a perturbation of the film which does not incorporate the main ingredient of the self-amplification mechanism, that is, the Marangoni stress. Figure 14(*b*) shows the gradual increase of the maximal film thickness difference Δh between the film's thinnest and thickest points as a function of time following an injection of ethanol and heat into the film, compared to an inertial perturbation made by blowing air perpendicular to the film at 3 m s^{-1} with a 0.6 mm in diameter tube. Although both kinds of perturbations grow at short time (at a different rate, however), the inertial air jet perturbation soon saturates and decays, while the active perturbations amplify self-sustained growth in the sense explained in § 3.3.

4.4. *The penetration of the dirt: varying* τ_0

We have not yet addressed the way the perturbative agents released by the sources (either vapours of chemicals, or heat) penetrate into the liquid. The sources (drops of pure chemical substance or the tip of a hot pan) are suspended above the sheet, which is running at velocity U. Obviously, the substance diffusing away from the source has to cross the air boundary layer at the surface of the liquid in order to dissolve in it. If the source is close enough to the film that it is sheared by the flow in the boundary layer, the net vapour flux directed toward the film is enhanced accordingly.

The vapour pressure p_V of the chemical substance is a measure of the concentration of vapour in air close to the source, and its ability to dissolve in the liquid is measured by Henry's law constant k_H. Since the liquid surface tension is lowered in proportion to the pollutant concentration dissolved in it (3.1), and since the overall transfer process from the source to the film involves linear relationships in concentration, it is clear that the surface tension deficit will be such that

$$\Delta\sigma \sim p_V k_H \times f(\delta/a), \tag{4.10}$$

where $f(\delta/a)$ is a decreasing function of the distance δ of the source to the film, and a is the source size, provided δ is smaller than the air (viscosity ν_a) boundary layer thickness $\sqrt{\nu_a r_d/U}$ at the radial location r_d of the perturbation above the film.

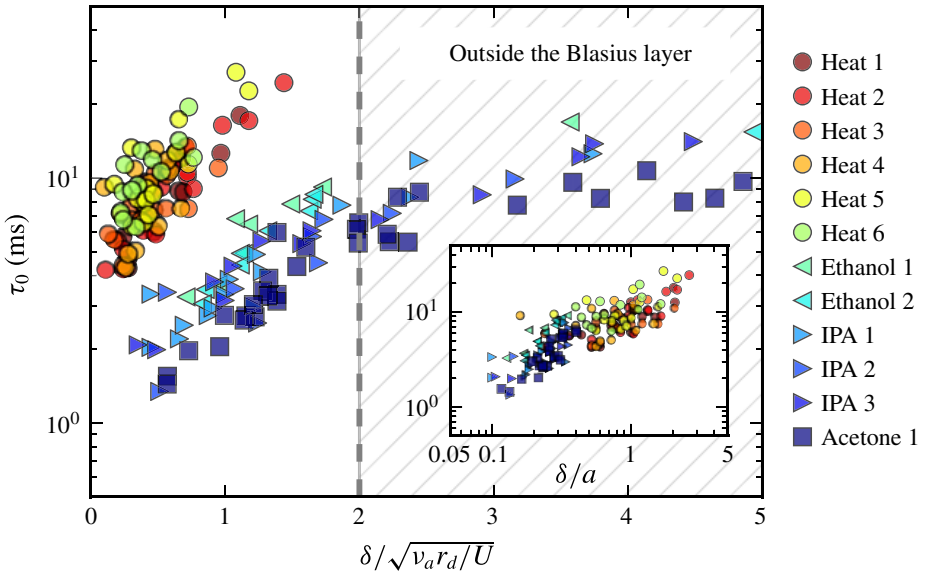

FIGURE 16. (Colour online) Instability time scale τ_0 measured for different solicitations, plotted versus the distance from the perturbation to the sheet δ, scaled by the thickness of the Blasius boundary layer. The diverse runs correspond to different film velocities when the perturbation is chemical, or decreasing the temperature of the tip from 450 °C (Heat 1) to 200 °C (Heat 6) by steps of 50 °C, with no noticeable influence. In the inset, τ_0 is plotted against δ/a, with a the size of the perturbation, for data inside the boundary layer ($\delta/\sqrt{v_a r_d/U} < 2$).

Figure 16 shows how τ_0 is large when the source stands above the air boundary layer, that it decays rapidly (indicating an increase in $\Delta\sigma$ or a decrease in the apparent dirt size a and film thickness h) – see (3.11) as the source approaches the film – and that δ/a is indeed the relevant scaling variable (inset). Despite their respective different p_V and k_H, acetone, ethanol and isopropyl alcohol (IPA) behave close to identically, precisely because their respective products $p_V k_H$ are very similar, as can be seen from table 1. Moreover, since molecular and heat transfer from the sources (drop or hot pan tip) to the film occurs by diffusion in the air, thus with similar diffusivities (the Lewis number in gases is of order unity), the data for heat contamination align accordingly.

The graph in figure 16 refers to the particular method we have chosen to introduce the 'dirt' on the film. It confirms that even weak fluctuations of composition in the air around it can trigger the spontaneous instability of the film. Of course, if any aerosol of pure substance coalesces with the film, the consequence is immediately dramatic, as illustrated in § 2.4. Similarly, any immiscible droplet or micro-bubble in the liquid, smearing the film with traces of pollutants, may trigger film rupture.

5. Conclusion

Often, the reasons invoked to explain the puncture of liquid films are either the existence of attractive van de Waals forces or thermal fluctuations. These ingredients are usually considered as sufficient, while we know that they are likely to operate on films at most a few tens of nanometres thick only. However, it has also been known for at least 60 years that much thicker liquid films nucleate holes spontaneously, in a variety of different situations. It is this paradox which has prompted the present work.

The paradigm is that liquid surfaces are always somewhat dirty, to some extent, and that even a minute amount of dirt is enough to initiate puncture.

The precise meaning of 'dirt' refers to any agent diluted in the liquid, which is liable to lower its surface tension and therefore, through a Marangoni mechanism which we have shown to be self-sustained, to dig the film down to rupture. If a deficit of surface tension $\Delta\sigma$ is applied on a dirty spot of size a on a liquid film of density ρ and thickness h, an interstitial flow depletes the spot within a time $\tau_0 = \sqrt{\rho h a^2/\Delta\sigma}$, emptying and puncturing the film provided molecular diffusion of the dirt along the film has not regularised it in the meantime. Self-amplification thus occurs as soon as the Péclet number $Pe = a^2/D\tau_0$ is larger than unity. For instance, a 100 μm spot of ethanol dissolved into a 10 μm thick liquid film with typical deficit of $\Delta\sigma \sim 0.1$ mN m^{-1} ruptures in $\tau_0 \sim 1$ ms with $Pe = 10^4$. We have explained that one way to understand the condition

$$Pe > 1 \tag{5.1}$$

is to note that it is equivalent to

$$\sqrt{\Delta\sigma/\rho h} > D/a, \tag{5.2}$$

stating that the film Taylor–Culick velocity constructed with the surface tension deficit $\Delta\sigma$ should be larger than the diffusion spreading velocity of the initial spot. For a film with typical thickness $h = 10$ μm contaminated with a surface tension deficit $\Delta\sigma = 0.1$ mN m^{-1}, the cross-over size a is approximately 10 nm, much smaller than all the perturbation sizes shown here, which consistently puncture the film provided they have the chance to penetrate it (with no rebound or evaporation if the perturbation is a drop projected over the film as in figure 8*b*).

The corresponding scenario was suggested by contemplating precise experiments in different ways, either by spraying water films with droplets of soluble chemicals such as ethanol or by perturbing the vapour or temperature field at the surface of a stationary water Savart sheet. In the latter configuration, precise measurements of the instability early dynamics were obtained, including the direct proof of the existence of an interstitial flow, the shape of the resulting film thickness profile, the rate of depletion at the perturbed spot centre and the intensification of the film thickness gradients at the periphery of the spot. These were all interpreted as evidence of a self-amplified mechanism digging the film, irrespective of the nature of the perturbing agents (chemical or heat) provided they induce a surface tension deficit at sufficiently large *Pe*, which was always the case in these experiments. The corresponding time scale τ_0 was measured, even if the precise nature of the singularity, if any, leading to film thickness cancellation, remains an open issue.

In addition, when the roles in the experiment are inverted, namely when one considers the perturbation of an ethanol sheet by the vapour coming from a water droplet, the effect subsists, but with an opposite sign, the interstitial flow now concentrating the peripheral liquid at the centre of the spot (figure 17, to be compared with figure 13).

Dirtiness is a feature of nature (Jacob 1987). The mechanism discussed here is therefore likely to be generic: minute fluctuations of composition of the atmosphere around a liquid film, any floating aerosol coalescing with it can trigger this spontaneous mechanism ending with rupture, as will any immiscible droplet or micro-bubble in the liquid, smearing the film with traces of pollutants.

Films in nature are sometimes armoured with surfactants and we have shown in figure 6 how a layer of surfactant prevents an approaching ethanol droplet from puncturing the film, a puncture which otherwise occurs before the droplet has touched

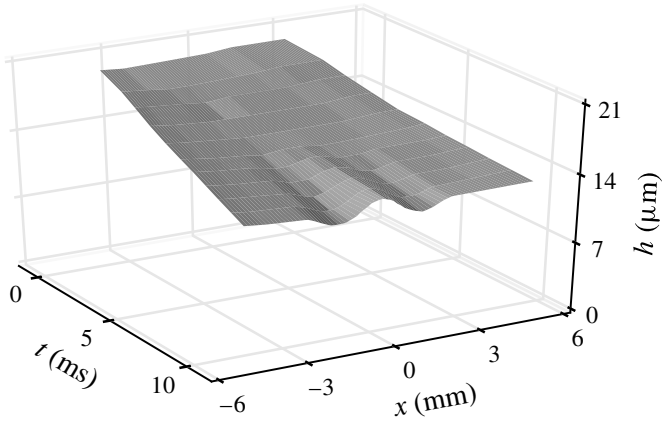

FIGURE 17. Measured thickness field for an excess of surface tension in the dirty spot (water drop close to an ethanol sheet, $a = 1.5$ mm, $r_d = 56$ mm giving $\alpha = 1.5°$). The interstitial liquid is now concentrated at the centre of the spot, instead of being expelled at its periphery (see figure 13 for comparison).

a clean film. The surface or 'spreading' pressure (Fowler & Guggenheim 1952) of a layer of mobile molecules with surface concentration Γ is, in the diluted limit, $\phi = \Gamma k_B T$. The work spent opening a spot of radius a depleted in surfactant by an amount $\Delta\Gamma$ is proportional to $a^2\Delta\phi$, so that in place of (3.6), we have in that case

$$\partial_t v = \frac{2}{\rho h}\partial_x(\sigma - \phi), \tag{5.3}$$

making it clear that a surfactant coated film is shielded against the Marangoni surface contamination mechanism studied here.

The present observations are consistent with those of Vernay *et al.* (2015) who were using oil droplets loaded with surfactants partially miscible in water as perturbation agents, introduced in the bulk of the liquid. They too observed film digging and thickness gradient steepening prior to puncture. Our findings provide a mechanistic interpretation of these facts, relying on the onset of a local interstitial flow depleting the film, rather than the growth of a viscous boundary layer across the film, which would result in film thickening rather than thinning. In fact, momentum transfer across the film occurs very early in the process. It is completed within a time h^2/ν while puncture takes τ_0. As long as $h^2/\nu \ll \tau_0$, that is for films thinner than

$$h_\star \sim \left(\frac{\eta\nu a^2}{\Delta\sigma}\right)^{1/3}, \tag{5.4}$$

the plug flow description we have opted for holds, even if contamination time h^2/D is much larger for species with $Sc \gg 1$. With $a = 100$ μm and $\Delta\sigma = 0.1$ mN m^{-1} on a water film, we have $h_\star \approx 50$ μm, and we have seen in figure 10 that even films as thick as 250 μm are sensitive to the effect we have described.

Finally, we would like to mention the profound analogy existing between the mechanism for hole nucleation in a locally dirty liquid film, and the phenomenon of flame ignition in the combustion of premixed reactants undergoing an exothermic reaction (Frank-Kamenetskii 1969; Zeldovich *et al.* 1985). Combustion refers to this class of reactions which are exothermic, and whose reaction kinetics is strongly

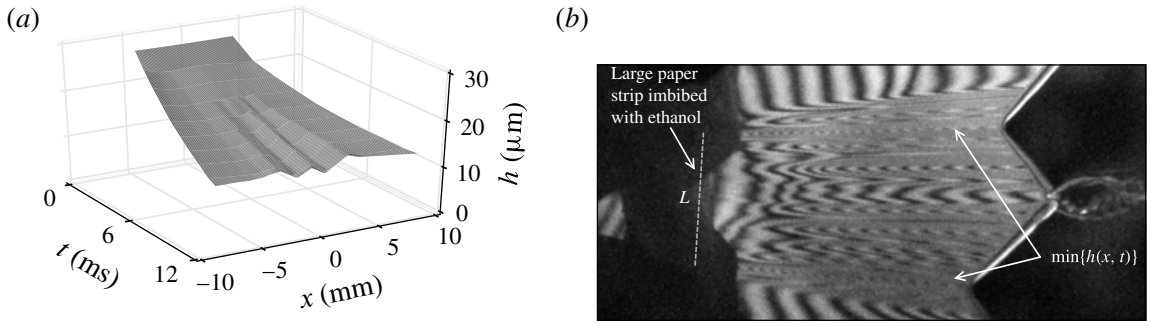

FIGURE 18. Broad support of surface tension deficit. (*a*) Measured thickness field for an ethanol source of size $L = 4.6$ mm. The thickness decreases at the edges of the source. (*b*) Sheet rim double retraction, with an even larger perturbation $L = 10$ mm. Two cusps appear, signatures of the two decoupled thickness decreases.

activated by temperature. Let k be the (temperature dependent) reaction rate, and a the size of a spot in the mixture where some thermal energy has been released, thus elevating locally the temperature. Ignition of the mixture will occur provided the temperature in the spot remains high enough during a time of the order of k^{-1} at least for the reaction, which is exothermic thus sustaining flame propagation, to proceed. If D is the heat diffusivity, the condition above reads $ka^2/D \gg 1$, which is the precise equivalent of our large Péclet number (3.12)–(5.1) condition for hole nucleation.

Acknowledgement

The Agence Nationale de la Recherche (ANR) is acknowledged for funding of the grant ANR 'FISICS' ANR-15-CE30-0015-03.

Appendix A. Dynamics of a front

We have up to now considered a spot of dirt with a single length scale, namely its radius a. It may happen that the dirt is deposited on the film over a broader support, say of size $L \gg a$, with smooth cross-overs of the pollutant concentration at the periphery of the spot over a width, say, a. In that case, illustrated in figure 18, a dynamics very similar to the one described in § 3 distorts an initially flat film. We consider an initially smooth cross-over of the surface tension as

$$\sigma(x, t = 0) = \sigma + \frac{\Delta\sigma}{2}\mathrm{erf}\left(\frac{x}{a}\right), \tag{A 1}$$

$$\text{so that } \partial_x\sigma|_{t=0} \sim \frac{\Delta\sigma}{a}\mathrm{e}^{-(x^2/a^2)}. \tag{A 2}$$

From (3.7), the interstitial fluid velocity is

$$v(x, t) \sim \frac{ta}{\tau_0^2}\mathrm{e}^{-(x^2/a^2)}, \tag{A 3}$$

where τ_0 is given by (3.11). The symmetry being broken in the initial condition, when compared to a bell-shaped initial σ-deficit the velocity is positive everywhere (see

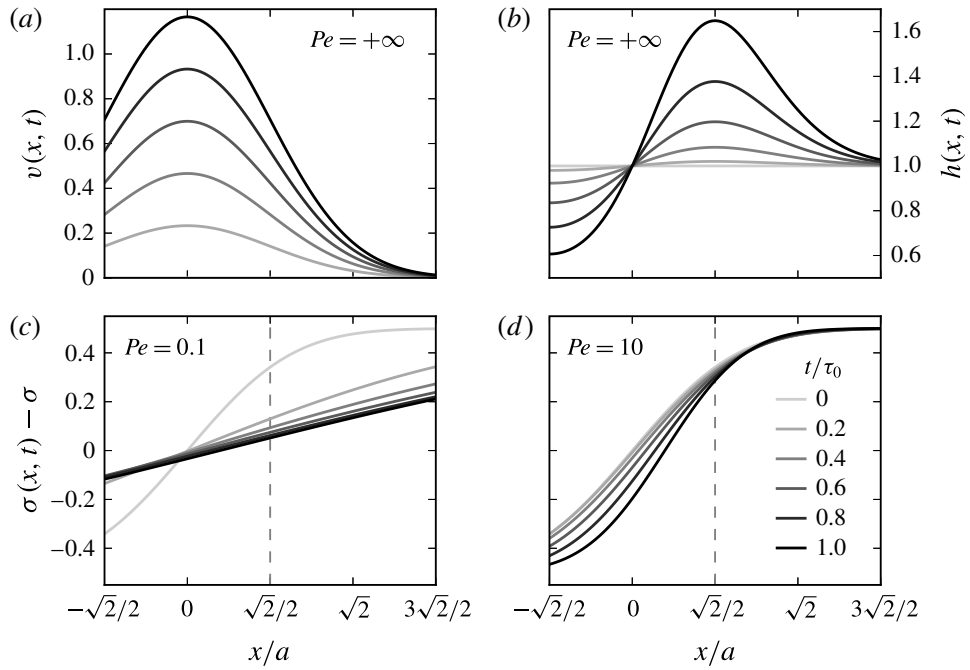

FIGURE 19. Time evolution of an initial step of surface tension of width a, for different Péclet numbers. Graphs are centred around $x = a/\sqrt{2}$, where compression is maximal. (a) Interstitial velocity and (b) film thickness for $Pe = +\infty$ (or equivalently short times $t/\tau_0 \ll 1$). (c–d) Surface tension profiles at successive times, for two finite Péclet numbers.

figure 19a). Solved in the slender slope limit $\partial_x h \ll 1$, mass conservation in (3.4) provides the thickness field $h(x, t)$ as

$$\frac{h(x,t)}{h} = \exp\left\{\left(\frac{t}{\tau_0}\right)^2 \frac{x}{a} e^{-(x^2/a^2)}\right\}, \tag{A 4}$$

with h the initial film thickness. Liquid is flowing towards positive x, collecting into a bump located in $x = a/\sqrt{2}$, and digging in $x = -a\sqrt{2}$ (figure 19b).

The maximal rate of compression γ along the film is now obtained in $x = a/\sqrt{2}$, and increases linearly with time t as in (3.13). The negatively sloped velocity expands about that point as $v(x, t) = v(a/\sqrt{2}, t) - \gamma\tilde{x}$, with $\tilde{x} = x - a/\sqrt{2}$. The mixing analogy maps the problem onto a pure diffusion equation, as in § 3, with the same conclusions. The diffusion equation (3.18) is solved in this particular case to give an explicit expression for $\sigma(x, t)$,

$$\sigma(x,t) = \sigma + \frac{\Delta\sigma}{2}\mathrm{erf}\left(\frac{\xi(x,t) + \dfrac{\sqrt{2}}{2}}{\sqrt{1 + 4\tau(t)}}\right), \tag{A 5}$$

with

$$\xi(x,t) = \frac{x - \dfrac{\sqrt{2}}{2}}{s(t)}, \quad \tau(t) = D\int_0^t \frac{\mathrm{d}t'}{s(t')^2} \quad \text{and} \quad s(t) = a e^{-(t^2/2\tau_0^2)}. \tag{A 6a–c}$$

Figure 19(*c*,*d*) illustrates how the σ-fields relaxes for $Pe < 1$, and steepens for $Pe > 1$ in the self-sustained amplification regime.

REFERENCES

BATCHELOR, G. K. 1959 Small-scale variation of convected quantities like temperature in turbulent fluid. Part 1. General discussion and the case of small conductivity. *J. Fluid Mech.* **5**, 113–133.

BERENDSEN, C. W. J., ZEEGERS, J. C. H., KRUIS, G. C. F. L., RIEPEN, M. & DARHUBER, A. A. 2012 Rupture of thin liquid films induced by impinging air-jets. *Langmuir* **28** (26), 9977–9985.

BETTERTON, M. D. & BRENNER, M. P. 1999 Electrostatic edge instability of lipid membranes. *Phys. Rev. Lett.* **82** (7), 1598–1601.

BLANCHARD, D. C. 1963 The electrification of the atmosphere by particles from bubbles in the sea. *Prog. Oceanogr.* **1**, 73–202.

BOOS, W. & THESS, A. 1999 Cascade of structures in long-wavelength Marangoni instability. *Phys. Fluids* **11** (6), 1484–1494.

BOWEN, M. & TILLEY, B. S. 2013 On self-similar thermal rupture of thin liquid sheets. *Phys. Fluids* **25**, 102105.

BREMOND, N. & VILLERMAUX, E. 2005 Bursting thin liquid films. *J. Fluid Mech.* **524**, 121–130.

BURTON, J. C. & TABOREK, P. 2007 Two-dimensional inviscid pinch-off: an example of self-similarity of the second kind. *Phys. Fluids* **19**, 102109.

CASTELETTO, V., CANTAT, I., SARKER, D., BAUSCH, R., BONN, D. & MEUNIER, J. 2003 Stability of soap films: hysteresis and nucleation of black films. *Phys. Rev. Lett.* **90**, 048302.

CHAMPOUGNY, L., RIO, E., RESTAGNO, F. & SCHEID, B. 2017 The break-up of free films pulled out of a pure liquid bath. *J. Fluid Mech.* **811**, 499–524.

CLANET, C. & VILLERMAUX, E. 2002 Life of a smooth liquid sheet. *J. Fluid Mech.* **462**, 307–340.

COURBIN, L. & STONE, H. A. 2006 Impact, puncturing, and the self-healing of soap films. *Phys. Fluids* **18**, 091105.

CRASTER, R. V. & MATAR, O. K. 2009 Dynamics and stability of thin liquid films. *Rev. Mod. Phys.* **81** (3), 1131–1198.

CULICK, F. E. C. 1960 Comments on a ruptured soap film. *J. Appl. Phys.* **31**, 1128–1129.

DENKOV, N. D. 2004 Mechanisms of foam destruction by oil-based antifoams. *Langmuir* **20** (22), 9463–9505.

DERJAGUIN, B. V., CHURAEV, N. V. & MULLER, V. M. 1987 *Surface Forces*. Plenum.

DOMBROWSKI, N. & FRASER, R. P. 1954 A photographic investigation into the disintegration of liquid sheets. *Phil. Trans. R. Soc. Lond.* A **247**, 101–130.

DUCHEMIN, L., LE DIZÈS, S., VINCENT, L. & VILLERMAUX, E. 2015 Self-similar impulsive capillary waves on a ligament. *Phys. Fluids* **27**, 051704.

ENDERS, S., KAHL, H. & WINKELMANN, J. 2007 Surface tension of the ternary system water + acetone + toluene. *J. Chem. Engng Data* **52** (3), 1072–1079.

ERNEUX, T. & DAVIS, S. H. 1993 Nonlinear rupture of free films. *Phys. Fluids* A **5** (5), 1117–1122.

FOWLER, R. & GUGGENHEIM, E. A. 1952 *Statistical Thermodynamics*. Cambridge University Press.

FRANK-KAMENETSKII, D. A. 1969 *Diffusion and Heat Transfer in Chemical Kinetics*. Plenum.

GARRETT, P. R. 1992 *Defoaming: Theory and Industrial Applications*, Surfactant Science Series 45. Taylor & Francis.

DE GENNES, P.-G. 1998 Progression d'un agent de coalescence dans une émulsion. *C. R. Acad. Sci. Paris* IIb **326**, 331–335.

GORDILLO, J. M., LHUISSIER, H. & VILLERMAUX, E. 2014 On the cusps bordering liquid sheets. *J. Fluid Mech.* **754**, R1.

GUÉNA, G., POULARD, C. & CAZABAT, A.-M. 2007 Evaporating drops of alkane mixtures. *Colloids Surf. Physicochem. Engng Asp.* **298** (1–2), 2–11.

HERNÁNDEZ-SÁNCHEZ, J. F., EDDI, A. & SNOEIJER, J. H. 2015 Marangoni spreading due to a localized alcohol supply on a thin water film. *Phys. Fluids* **27**, 032003.

HUANG, J. C. P. 1970 The break-up of axisymmetric liquid sheets. *J. Fluid Mech.* **43**, 305–319.

ILTON, M., DIMARIA, C. & DALNOKI-VERESS, K. 2016 Direct measurement of the critical pore size in a model membrane. *Phys. Rev. Lett.* **117**, 257801.

ISENBERG, C. 1992 *The Science of Soap Films and Soap Bubbles*. Dover.

ISRAELACHVILI, J. N. 1991 *Intermolecular and Surface Forces*, 2nd edn. Academic Press.

JACOB, F. 1987 *La Statue Intérieure*. Editions Odile Jacob, Seuil.

JENSEN, O. E. & GROTBERG, J. B. 1992 Insoluble surfactant spreading on a thin viscous film: shock evolution and film rupture. *J. Fluid Mech.* **240**, 259–288.

JENSEN, O. E. & GROTBERG, J. B. 1993 The spreading of heat or soluble surfactant along a thin liquid film. *Phys. Fluids* A **5** (1), 58–68.

KABOVA, Y. O., ALEXEEV, A., GAMBARYAN-ROISMAN, T. & STEPHAN, P. 2006 Marangoni-induced deformation and rupture of a liquid film on a heated microstructured wall. *Phys. Fluids* **18**, 012104.

KALLIADASIS, S., RUYER-QUIL, C., SCHEID, B. & VELARDE, M. G. 2012 *Falling Liquid Films*. Springer.

LEENAARS, A. F. M., HUETHORST, J. A. M. & VAN OEKEL, J. J. 1990 Marangoni drying: a new extremely clean drying process. *Langmuir* **6** (11), 1701–1703.

LEVICH, V. G. & KRYLOV, V. S. 1969 Surface-tension-driven phenomena. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **1**, 293–316.

LHUISSIER, H., BRUNET, P. & DORBOLO, S. 2016 Blowing a liquid curtain. *J. Fluid Mech.* **795**, 784–807.

LHUISSIER, H. & VILLERMAUX, E. 2009*a* Destabilization of flapping sheets: the surprising analogue of soap films. *C. R. Méc.* **337**, 469–480.

LHUISSIER, H. & VILLERMAUX, E. 2009*b* Soap films burst like flapping flags. *Phys. Rev. Lett.* **103**, 054501.

LHUISSIER, H. & VILLERMAUX, E. 2011 The destabilization of an initially thick liquid sheet edge. *Phys. Fluids* **23**, 091705.

LHUISSIER, H. & VILLERMAUX, E. 2012*a* Bursting bubble aerosols. *J. Fluid Mech.* **696**, 5–44.

LHUISSIER, H. & VILLERMAUX, E. 2012*b* Crumpled water bells. *J. Fluid Mech.* **693**, 508–540.

LHUISSIER, H. & VILLERMAUX, E. 2013 'Effervescent' atomization in two dimensions. *J. Fluid Mech.* **714**, 361–392.

LIDE, D. R. (Ed.) 2010 *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 90th edn. CRC Press/Taylor & Francis.

LINSTROM, P. J. & MALLARD, W. G. (Eds) 2017 *NIST Chemistry WebBook (NIST Standard Reference Database 69)*, National Institute of Standards and Technology.

MARANGONI, C. 1878 Difesa della teoria dell'elasticità superficiale dei liquidi: plasticità superficiale. *Il Nuovo Cimento 3* **III** (3), 193–211.

MARMOTTANT, P., VILLERMAUX, E. & CLANET, C. 2000 Transient surface tension of an expanding liquid sheet. *J. Colloid Interface Sci.* **230** (1), 29–40.

MATAR, O. K. & CRASTER, R. V. 2001 Models for Marangoni drying. *Phys. Fluids* **13** (7), 1869–1883.

MAXWELL, J. C. 1875 *Capillary Action*, 9th edn. Encyclopedia Britannica.

MCENTEE, W. R. & MYSELS, K. J. 1969 The bursting of soap films. Part I. An experimental study. *J. Phys. Chem.* **73** (9), 3018–3028.

NIERSTRASZ, V. A. & FRENS, G. 1998 Marginal regeneration in thin vertical liquid films. *J. Colloid Interface Sci.* **207** (2), 209–217.

PRATT, K. C. & WAKEHAM, W. A. 1975 The mutual diffusion coefficient for binary mixtures of water and the isomers of propanol. *Proc. R. Soc. Lond. Math. Phys. Engng Sci.* **342** (1630), 401–419.

RANZ, W. E. 1959 Some experiments on the dynamics of liquid films. *J. Appl. Phys.* **30** (12), 1950–1955.

RANZ, W. E. 1979 Applications of a stretch model to mixing, diffusion, and reaction in laminar and turbulent flows. *AIChE J.* **25** (1), 41–47.

REITER, G. 1992 Dewetting of thin polymer films. *Phys. Rev. Lett.* **68** (1), 75–78.

DE RIVAS, A. & VILLERMAUX, E. 2016 Dense spray evaporation as a mixing process. *Phys. Rev. Fluids* **1**, 014201.

ROCHÉ, M., LI, Z., GRIFFITHS, I. M., LE ROUX, S., CANTAT, I., SAINT-JALMES, A. & STONE, H. A. 2014 Marangoni flow of soluble amphiphiles. *Phys. Rev. Lett.* **112**, 208302.

SAVART, F. 1833 Mémoire sur le choc d'une veine liquide lancée contre un plan circulaire. *Ann. Chim. Phys.* **54**, 55–87.

SCRIVEN, L. E. & STERNLING, C. V. 1960 The Marangoni effects. *Nature* **187** (4733), 186–188.

SETTLES, G. S. 2001 *Schlieren and Shadowgraph Techniques*. Springer.

SHARMA, A. & REITER, G. 1996 Instability of thin polymer films on coated substrates: rupture, dewetting, and drop formation. *J. Colloid Interface Sci.* **178** (2), 383–399.

TAYLOR, G. I. 1959*a* The dynamics of thin sheets of fluid. Part II. waves on fluid sheets. *Proc. R. Soc. Lond.* A **253**, 296–312.

TAYLOR, G. I. 1959*b* The dynamics of thin sheets of fluid. Part III. Disintegration of fluid sheets. *Proc. R. Soc. Lond.* A **253**, 313–321.

TAYLOR, G. I. & MICHAEL, D. H. 1973 On making holes in a sheet of fluid. *J. Fluid Mech.* **58**, 625–639.

THORODDSEN, S. T., ETOH, T. G. & TAKEHARA, K. 2006 Crown breakup by Marangoni instability. *J. Fluid Mech.* **557**, 63–72.

THORODDSEN, S. T., THORAVAL, M.-J., TAKEHARA, K. & ETOH, T. G. 2012 Micro-bubble morphologies following drop impacts onto a pool surface. *J. Fluid Mech.* **708**, 469–479.

VANHOOK, S. J., SCHATZ, M. F., SWIFT, J. B., MCCORMICK, W. D. & SWINNEY, H. L. 1997 Long-wavelength surface-tension-driven Bénard convection: experiment and theory. *J. Fluid Mech.* **345**, 45–78.

VARGAFTIK, N. B., VINOGRADOV, Y. K. & YARGIN, V. S. 1996 *Handbook of Physical Properties of Liquids and Gases: New Augmented and Revised Edition of the Classic Reference*. Begell House.

VARGAFTIK, N. B., VOLKOV, B. N. & VOLJAK, L. D. 1983 International tables of the surface tension of water. *J. Phys. Chem. Ref. Data* **12** (3), 817–820.

VAZQUEZ, G., ALVAREZ, E. & NAVAZA, J. M. 1995 Surface tension of alcohol water + water from 20 to 50 °C. *J. Chem. Engng Data* **40** (3), 611–614.

VERNAY, C., RAMOS, L. & LIGOURE, C. 2015 Bursting of dilute emulsion-based liquid sheets driven by a Marangoni effect. *Phys. Rev. Lett.* **115**, 198302.

VILLERMAUX, E. 2012 On dissipation in stirred mixtures. *Adv. Appl. Mech.* **45**, 91–107.

VILLERMAUX, E. & ALMARCHA, C. 2016 Node dynamics and cusps size distribution at the border of liquid sheets. *Phys. Rev. Fluids* **1**, 041902.

VILLERMAUX, E. & CLANET, C. 2002 Life of a flapping liquid sheet. *J. Fluid Mech.* **462**.

VILLERMAUX, E. & DUPLAT, J. 2003 Mixing as an aggregation process. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 184501.

VILLERMAUX, E., PISTRE, V. & LHUISSIER, H. 2013 The viscous Savart sheet. *J. Fluid Mech.* **730**, 607–625.

VLEDOUTS, A., QUINARD, J., VANDENBERGHE, N. & VILLERMAUX, E. 2016 Explosive fragmentation of liquid shells. *J. Fluid Mech.* **788**, 246–273.

VRIJ, A. 1966 Possible mechanism for the spontaneous rupture of thin, free liquid films. *Discuss. Faraday Soc.* **42**, 23–33.

WEDERSHOVEN, H. M. J. M., BERENDSEN, C. W. J., ZEEGERS, J. C. H. & DARHUBER, A. A. 2015 Infrared-laser-induced thermocapillary deformation and destabilization of thin liquid films on moving substrates. *Phys. Rev. Appl.* **3**, 024005.

WORTHINGTON, A. M. 1908 *A Study of Splashes*. Longmans, Green & Co.

ZELDOVICH, Y. B., BARENBLATT, G. I., LIBROVICH, V. B. & MAKHVILADZE, G. M. 1985 *The Mathematical Theory of Combustion and Explosions*. Consultants Bureau.

Chapitre 3

Rupture de films plans

Introduction

Le fait est observé quotidiennement : sans ajout de surfactant, les bulles d'air qui remontent à la surface d'un verre d'eau fraîchement servi ne vivent guère plus de quelques secondes, à la différence du cas incorporant du surfactant. C'est toujours davantage que le temps de drainage gravitaire, comme on peut aisément s'en convaincre en observant le reste de la surface, bien souvent à l'état de repos lorsque la bulle éclate. Le récent article de POULAIN, VILLERMAUX et BOUROUIBA, 2018, qui tire parti du mécanisme proposé au chapitre précédent, synthétise une littérature peu convergente bien qu'abondante et apporte par des expériences contrôlées et convaincantes une contribution décisive pour la compréhension de ce problème pourtant simplement posé.

La mise en mouvement initiale du film est étudiée au chapitre précédent, dans le cas d'une sollicitation forcée par une différence localisée de tension de surface. L'hypothèse implicitement faite est que les fluctuations (de température, de concentration en soluté) ordinairement présentes dans le film, d'échelles plus petites que la perturbation artificiellement imposée, suivent le même mécanisme. L'advection du film et les faibles niveaux de concentration (ou d'accroissement de la température), en un mot la configuration expérimentale, ont alors permis de documenter précisément la dynamique linéaire de la déstabilisation (champs de vitesse, d'épaisseur, épaisseur minimale en particulier). Les vitesses relativement élevées $U \sim 1 - 5$ m s^{-1} d'advection du film, qui par la transformation de temps courts en longueurs observables ont rendu leur mesure confortable, ont en revanche limité l'exploration de temps ultérieurs. En effet, par application de la loi de Taylor-Culick en film advecté (équations (0.1)-(0.2) et figure 2), la méthode empêche intrinsiquèment la rupture du film — pourtant comprise dans l'idée d'accélération de l'instabilité décrite partie 2.3.3. De même que l'extension radiale de la nappe de Savart, film advecté à la vitesse U et d'épaisseur lentement décroissante, s'arrête à un certain rayon d'épaisseur non nulle, tout juste la diminution de ce rayon, en une échancrure marquée, dans le sillage de la perturbation nous renseignait sur une diminution sensible, et mesurée par ailleurs, de l'épaisseur du film (voir la figure 2.15).

Pour violent et spectaculaire que soit l'effet Marangoni, la rupture consécutive à la déstabilisation ne procède toutefois pas directement du mécanisme linéaire. Dans la continuité du chapitre précédent, on étudie la réponse d'un film, d'épaisseur h et constitué d'un liquide de masse volumique ρ, à une sollicitation superficielle. La tension de surface est diminuée sur une taille typique a d'une quantité $\Delta\sigma$, par la coalescence, le mélange et la diffusion d'une goutte d'un liquide miscible. La dynamique de mise en mouvement du

film, comme il a été montré, est déterminée par le temps inertiel τ_0 basé sur la transmission instantanée de la contrainte superficielle de Marangoni $\Delta\sigma/a$ à travers le film :

$$\tau_0 = \sqrt{\frac{\rho h a^2}{\Delta\sigma}}\,. \tag{3.0.1}$$

Ce chapitre, grâce au dispositif décrit en premier lieu (section 3.1), explore le mécanisme de la rupture du film et affirme la pertinence de ce temps dans la dynamique sous-jacente. Les sources d'écart à la théorie linéaire sont décrites et comparées aux expériences. La dérivation des équations d'évolution du film, dérivées à la section 3.2, complète les bilans du mécanisme 2.3. La pertinence d'un mécanisme catastrophique sans diffusion est enfin interrogée section 3.3.

3.1 Expérience

3.1.1 Dispositif

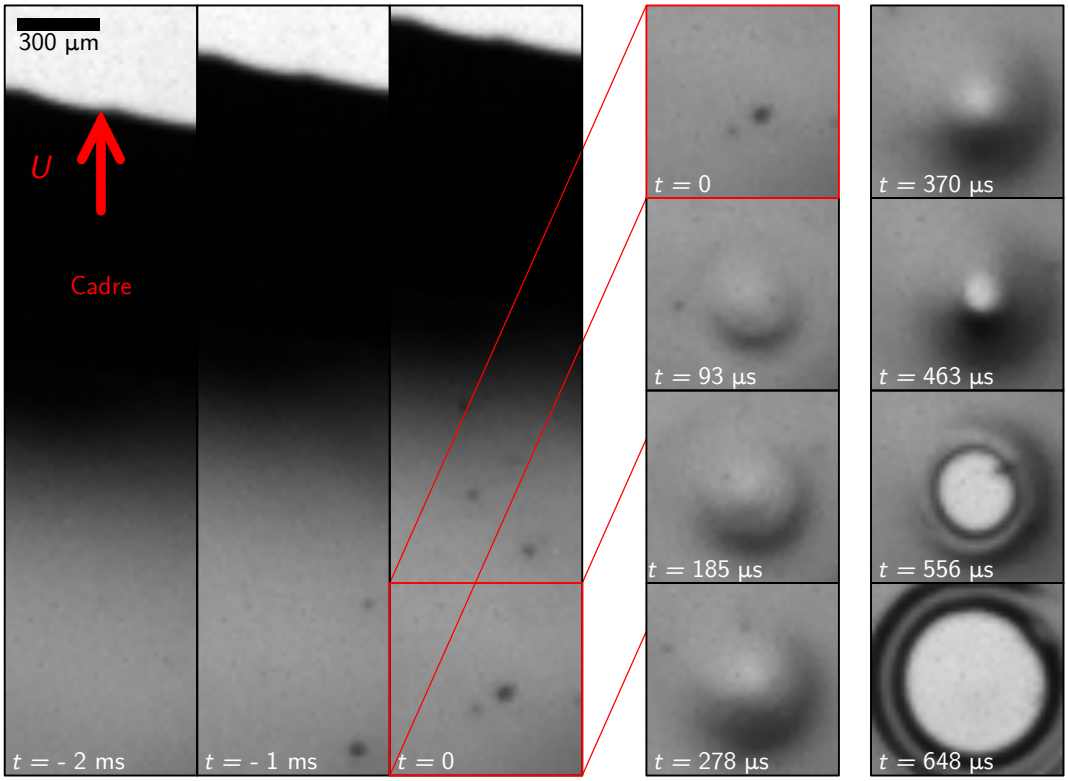

FIGURE 3.1 – Film d'eau, suspendu à un cadre tiré verticalement à la vitesse lente U = 13 cm s^{-1}. L'ouverture du film, de vitesse rapide V_{TC} = 1.4 m s^{-1}, est provoquée par la projection simultanée de gouttelettes d'éthanol.

Considérons ici un film liquide, entraîné et formé par la traction verticale d'un cadre métallique hors d'un bain faisant office de réservoir. Le cadre, un rectangle de largeur égale à 1 cm (et de hauteur égale à 2.5 cm) est placé dans le plan focal d'une caméra enregistrant à haute fréquence (jusqu'à 160 kHz). Raisonnablement, du fait de la rapidité des

phénomènes à l'étude vis-à-vis de la vitesse verticale du cadre, typiquement une dizaine de cm s^{-1}, le film suspendu est considéré statique (voir figure 3.1). Tout drainage, dû à l'entrainement du liquide par le cadre ou, à l'inverse, à la gravité, est dès lors négligé.

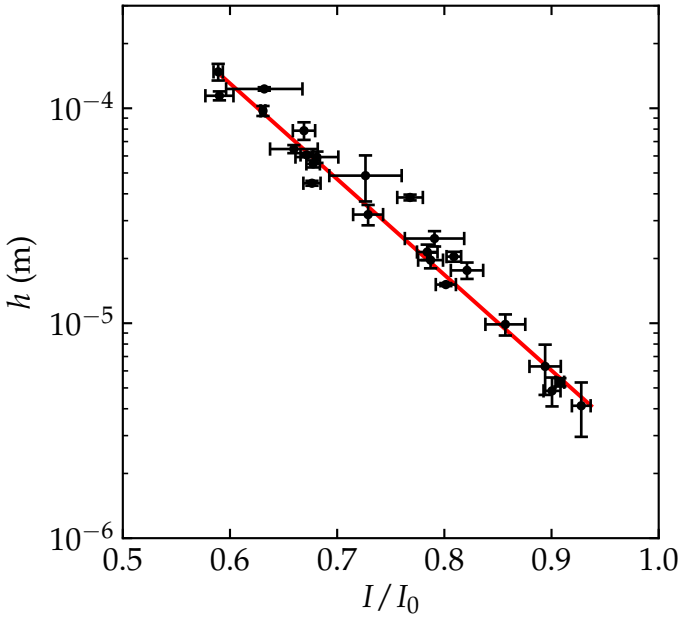

FIGURE 3.2 – Calibration de l'épaisseur h d'un film d'eau, dans lequel a été dissoute de l'érioglaucine (à la concentration de 2.5 g L^{-1}), en fonction de l'intensité lumineuse normalisée I/I_0. Les paramètres de la loi de calibration (3.1.1) sont ajustés grâce à une régression orthogonale (ligne rouge).

De l'encre colorée (bleu brillant FCF, ou érioglaucine) est dissoute dans le liquide. L'absorption par le film de la lumière, dont la source est disposée en face et dans l'axe de la caméra, est ainsi une fonction croissante de son épaisseur h. La calibration de l'épaisseur est effectuée par application, lors de l'ouverture et rétraction du film, de la relation de Taylor-Culick $h = 2\sigma/\rho V_{TC}^2$, avec σ, ρ la tension de surface et la masse volumique du liquide, respectivement, et V_{TC} la vitesse de rétraction du film, constante. La mesure est destructive et réalisée au cours du traitement ultérieur des séries d'images. La dissolution d'érioglaucine, même à la concentration la plus élevée de 10 g L^{-1}, n'altère pas de manière sensible les propriétés physiques (σ, ρ) du film nécessaires à la calibration. L'intensité lumineuse I, mesurée en niveaux de gris, est alors une fonction décroissante de l'épaisseur h du film. Sous lumière blanche polychromatique, l'érioglaucine ne réagit pas selon la loi d'absorption de Lambert-Beer, mais selon une fonction *ad hoc* utilisée par VERNAY, RAMOS et LIGOURE, 2015b :

$$\frac{I}{I_0} = a \log h + b \,, \tag{3.1.1}$$

avec I_0 l'intensité du fond. Du fait de l'absorption par le film, la grandeur I/I_0 est toujours inférieure à 1. Les constante a et b sont déterminées par régression orthogonale des données de calibration $\{I, h\}$, de façon à obtenir, par interpolation sur la fonction inverse de (3.1.1), l'épaisseur h à tout niveau de gris I/I_0. Un soin particulier est pris à ne considérer la calibration (3.1.1) qu'entre les bornes expérimentales, sans extrapoler au-delà, spécifiquement pour la borne basse de l'épaisseur. En effet, la loi de calibration a toutes les

chances d'être erronée lorsque l'intensité I approche celle du fond I_0, *i.e.* à faible épaisseur, la présence du logarithme empêchant de fait l'annulation de cette dernière.

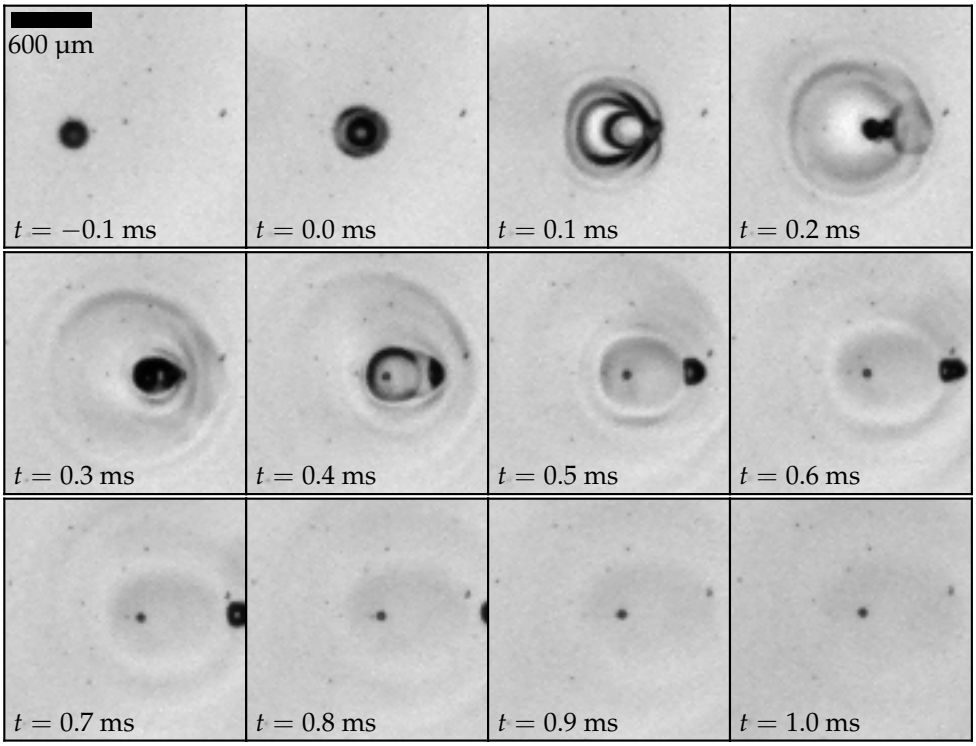

FIGURE 3.3 – Coalescence d'une goutte d'eau (diamètre a = 200 µm) sur un film de même composition (épaisseur h = 50 µm). En raison de la grande vitesse d'arrivée de la goutte, une partie de la goutte traverse le film, qui malgré tout ne perce pas.

Simultanément à la traction du film hors du bain est projetée sur celui-ci une collection de gouttes d'un second liquide, à l'aide d'un dispositif brumisateur, ou spray. Les deux liquides sont choisis en fonction de leurs propriétés superficielles et d'interaction relatives : des couples miscibles sont privilégiés, le favori étant un duo eau-éthanol. De l'eau à différentes températures a occasionnellement été utilisée, pour des différences de tension de surface entre le film et la perturbation toutefois moindres. Les résultats, pour les gammes de paramètres accessibles expérimentalement, font alors intervenir des effets peu désirables (inertie des grosses gouttes à la coalescence, etc.) dont on s'affranchit plus aisément avec l'emploi d'un autre liquide.

La taille des gouttes, de quelques dizaines de microns à une fraction de millimètre, est grossièrement sélectionnée en variant la distance de projection du spray et l'instant de projection relativement à la vie du film suspendu. Dans le cas d'un film d'eau perturbé par des gouttes prélevées à même le bain (donc à la même température et tension de surface), il a été vérifié que la vitesse d'impact des gouttes sur le film, bien que potentiellement importante, n'avait d'autre influence qu'une modification très modérée de l'épaisseur du film (voir figure 3.3). Plus précisément, à moins de collisions bien plus violentes qu'il n'en a été faites dans cette expérience, l'énergie cinétique apportée par une goutte ne suffit pas à engendrer la rupture du film. Elle est au contraire rapidement dissipée par viscosité et génération d'ondes capillaires.

Dynamique initiale

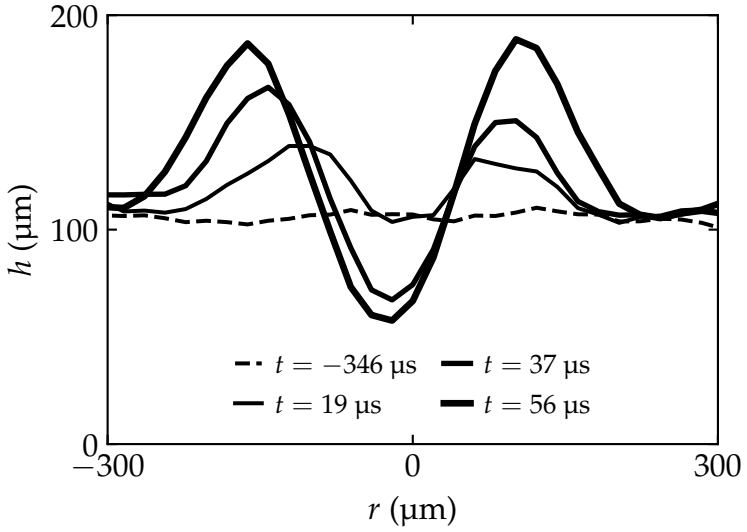

FIGURE 3.4 – Épaisseur du film, le long d'un rayon r, suite à la dilution d'une goutte d'éthanol (diamètre a = 70 µm) à t = 0, à différents instants de l'ordre de grandeur de $\tau_0 \approx 100$ µs.

La méthode de mesure de l'épaisseur h par absorption est validée sur les instants initiaux, suivant la coalescence d'une goutte d'éthanol sur un film d'eau (voir figure 3.4, où l'on retrouve les profils d'épaisseur initiaux détaillés au chapitre 2). À la différence du chapitre 2 toutefois, le déficit de tension superficielle est réalisé par l'incorporation d'une quantité *liquide* d'une substance donnée, de l'éthanol par exemple, plus seulement par diffusion à travers l'air de la même substance *gazeuse*. La valeur de $\Delta\sigma$ s'en trouve significativement augmentée, d'une fraction de mN m^{-1}, comme il a été estimé au chapitre 2, à environ 50 mN m^{-1}. Dans le même temps, la taille a d'application du gradient est diminuée, d'une goutte de quelques mm de diamètre *diffusant* à 1 mm de distance du film, à des gouttes *coalesçant* de quelques dizaines de µm de diamètre. Les deux variations vont dans le même sens d'une diminution substantielle du temps caractéristique τ_0, estimé par (3.0.1) à quelques dizaines de µs, pour des films d'épaisseur typiquement égale à 100 µm.

La diminution d'épaisseur observée pour un déficit de tension de surface s'accompagne d'un mouvement centrifuge, caractérisé par une vitesse dont l'amplitude croît linéairement avec le temps (section 2.3 et figure 2.12). À l'inverse, un surplus de tension de surface génére une accumulation du liquide au centre (figure 2.17), via un écoulement interstitiel centripète. La présence fortuite de traceurs dans un film d'eau chaude, sur lequel coalesce une goutte d'eau froide, donc de tension superficielle supérieure, révèle cet écoulement (figure 3.5).

3.1.2 Rupture

À chaque évènement de projection de gouttes sur un film suspendu surviennent de multiples coalescences. La variabilité des tailles de gouttes dans le spray fournit une première variabilité sur les tailles a des perturbations de tension superficielle. L'épaisseur initiale h du film est variée de 1 à 100 µm en laissant drainer le liquide plus ou moins

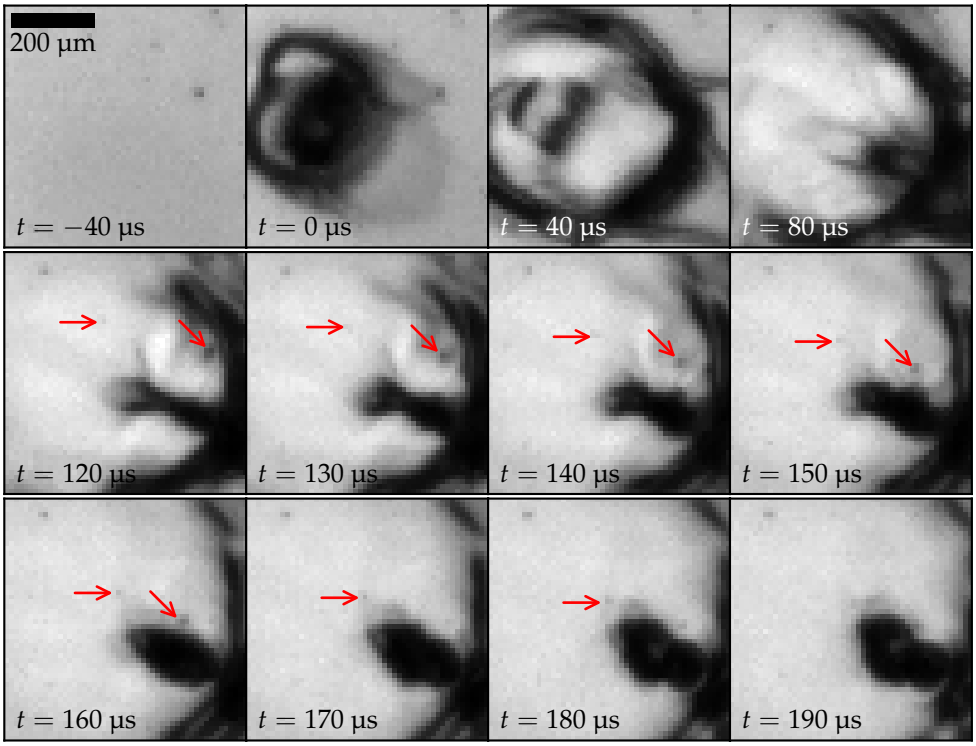

FIGURE 3.5 – Coalescence d'une goutte d'eau froide (T = 19 °C) sur un film d'eau chaude (T = 66 °C). L'écoulement de Marangoni est, comme le montre le mouvement centripète de traceurs (flèches rouge), dirigé vers le centre, où la tension de surface (respectivement la température) est plus élevée (resp. plus faible). Bien qu'une déplétion soit observée en des niveaux de gris plus clairs, le film ne perce pas.

longtemps avant la projection, donnant lieu à une seconde variabilité. Toutes les coalescences de gouttes, comme il est montré plus bas, ne se concluent pas par la rupture du film. Dans le cas contraire, plusieurs gouttes d'un même spray peuvent mener à autant de ruptures (figure 3.6). Les différents événements, tous autant catastrophiques pour le film, peuvent être isolés dès lors qu'ils sont suffisamment rapprochés en temps, *i.e.* qu'un événement voisin n'a pas balayé le film entre temps.

La simple variation, pour un même couple de liquides, des paramètres géométriques a et h donne à voir une certaine diversité de comportements, le plus évident étant la distinction entre la rupture et la régularisation de la perturbation. Par souci de clarté, le raisonnement est mené et les critères expérimentaux exhibés pour un déficit de tension de surface, provoqué par la coalescence d'une goutte d'éthanol sur un film d'eau. Toute goutte miscible au film, qui diminue localement sa tension de surface, parvient au même résultat.

Rupture asymétrique

La coalescence d'une goutte est immédiatement suivie par une phase de déstabilisation linéaire du film, détaillée au chapitre 2 et validée aux paragraphes précédents 3.1. L'épaisseur du film décroît dans une zone centrale, décrite de manière satisfaisante par une forme initialement gaussienne du déficit de tension superficielle (figure 3.4). Il apparaît pourtant distinctement, par des mesures résolues en temps et en espace, que la

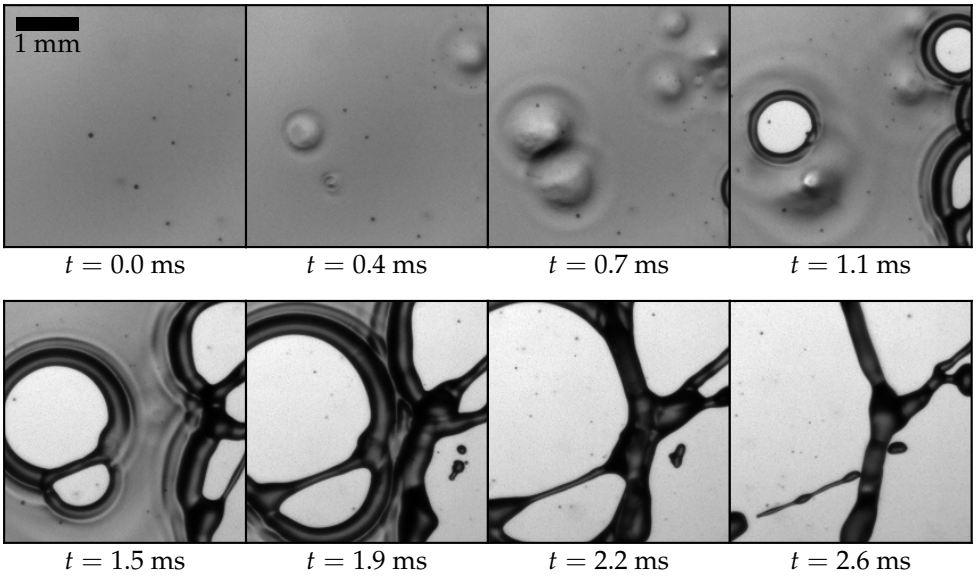

FIGURE 3.6 – Rupture d'un film d'eau suspendu verticalement, par projection d'une collection de gouttelettes d'éthanol de différentes tailles. Le film est ouvert en différents points, où les coalescences ont engendré la rupture, et par suite intégralement détruit.

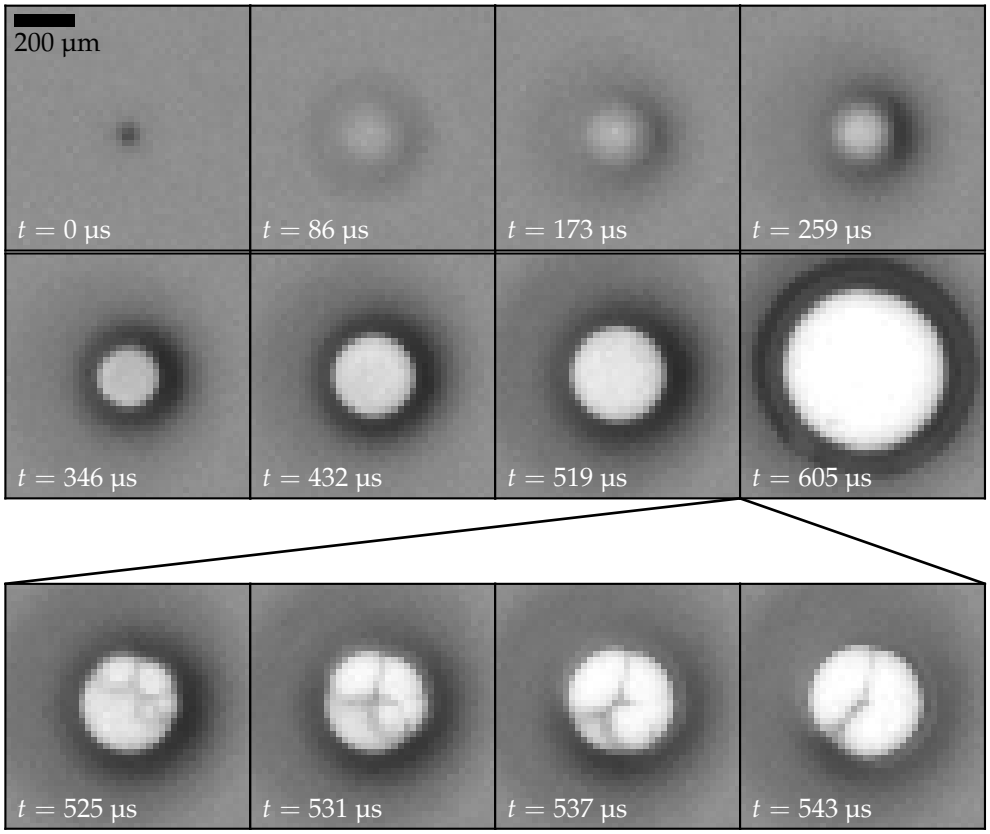

FIGURE 3.7 – Rupture d'un film d'eau, d'épaisseur h = 110 µm, par dilution d'une gouttelette d'éthanol de diamètre a = 60 µm (en noir à t = 0). La ligne inférieure met l'emphase sur la rupture (à $t = 522 \pm 3$ µs), initiée dans la zone centrale en différents points de position radiale non nulle. L'épaisseur y est estimée à 1 µm.

rupture du film, lorsqu'elle se produit, ne découle pas immédiatement de cette phase initiale.

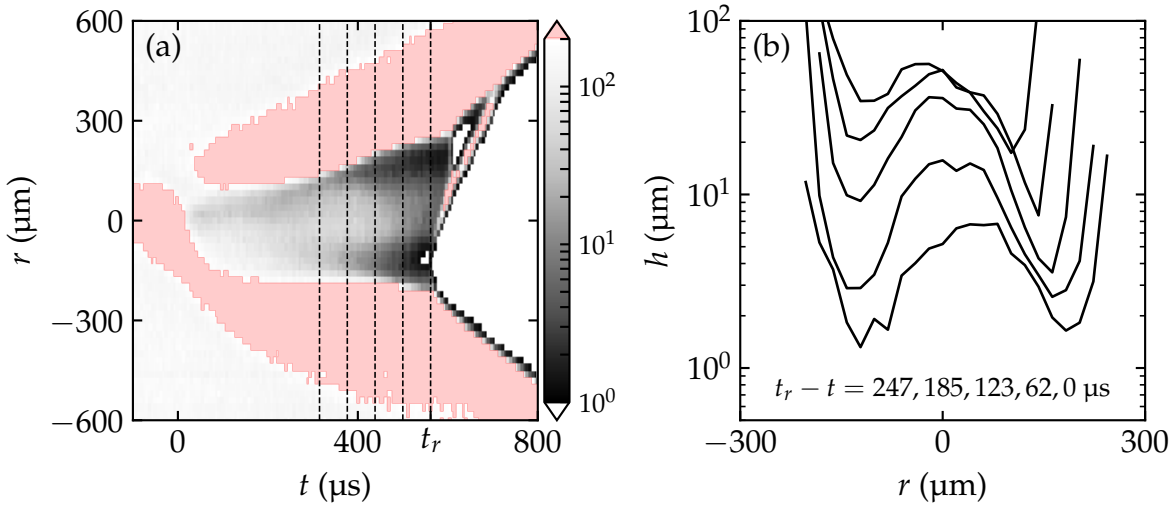

FIGURE 3.8 – Épaisseur du film au cours du temps, le long d'un diamètre. (a) Diagramme spatio-temporel, l'épaisseur est en échelle logarithmique de gris. Les instants sélectionnés en traits pointillés, qui mènent à la rupture en $t = t_r$, sont tracés en (b).

Au contraire, l'épaisseur de la zone centrale ralentit sa décroissance et devient homogène sur une taille plus large que la perturbation initiale (voir les figures 3.7 et 3.8a, et plus loin les figures 3.17 et 3.18). Dans le même temps, le liquide évacué de cette pellicule centrale s'accumule progressivement en un bourrelet épais, de vitesse de progression lente devant la vitesse d'ouverture du film. Cette séparation en deux régions distinctes est tout indiquée pour une analyse en termes de choc (section 3.3). Peu avant la rupture, il apparaît entre les deux un minimum d'épaisseur déjà visible dans les travaux de VERNAY, RAMOS et LIGOURE, 2015a (figure 3.8).

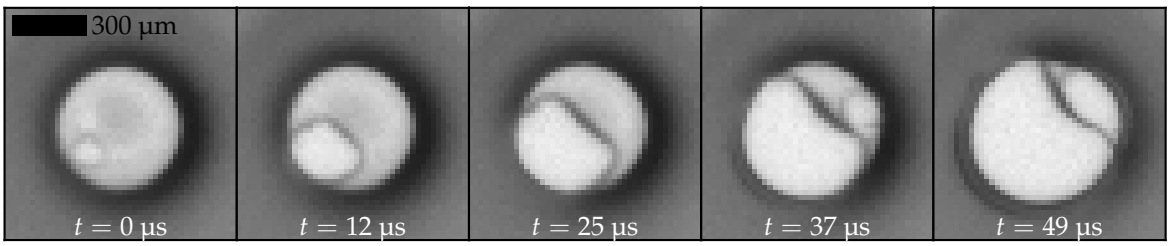

FIGURE 3.9 – Rupture du film, à la manière d'une fermeture éclair.

La rupture du film, en conséquence, a lieu au rayon courant r_0 de ce minimum d'épaisseur, et non en $r = 0$ en extrapolant la théorie linéaire. Fait remarquable, la symétrie axiale est brisée : le film ne s'ouvre pas « instantanément » selon un cercle de rayon r_0, mais en un point, parfois plusieurs, localisé(s) à un tel rayon. Par la suite, la pellicule centrale crève en premier, la rupture étant relativement homogène sur l'ensemble de la zone, et rapide. La rupture du film suit inexorablement. Il a été à plusieurs reprises observé une ouverture légèrement préférentielle de la pellicule le long d'une trajectoire azimuthale au rayon r_0, à la manière d'une fermeture éclair, nouvelle preuve *a posteriori* de l'existence

d'un minimum d'épaisseur en un rayon non nul. L'application de la loi de Taylor-Culick, de même que la lecture du graphe 3.8b, estiment la valeur de l'épaisseur de la pellicule (à la rupture) autour de 1 µm. Cette épaisseur, quoique 10 à 100 fois plus faible que l'épaisseur initiale du film, est toujours quelques ordres de grandeurs au-delà de la limite d'application des forces de van der Walls. En mettant en relation les deux faits précédents, l'épaisseur encore considérable à la rupture et la surprenante quasi-circularité des trous s'ouvrant dans la pellicule centrale, force est de conclure que la *rupture*, au sens où l'épaisseur du film passe en quelques microsecondes de 1 µm à strictement 0, doit se faire sur une région de taille limitée. Soit au plus, dans les expériences présentées ici, une poignée de pixels à la résolution donnée (une vingtaine de microns par pixel).

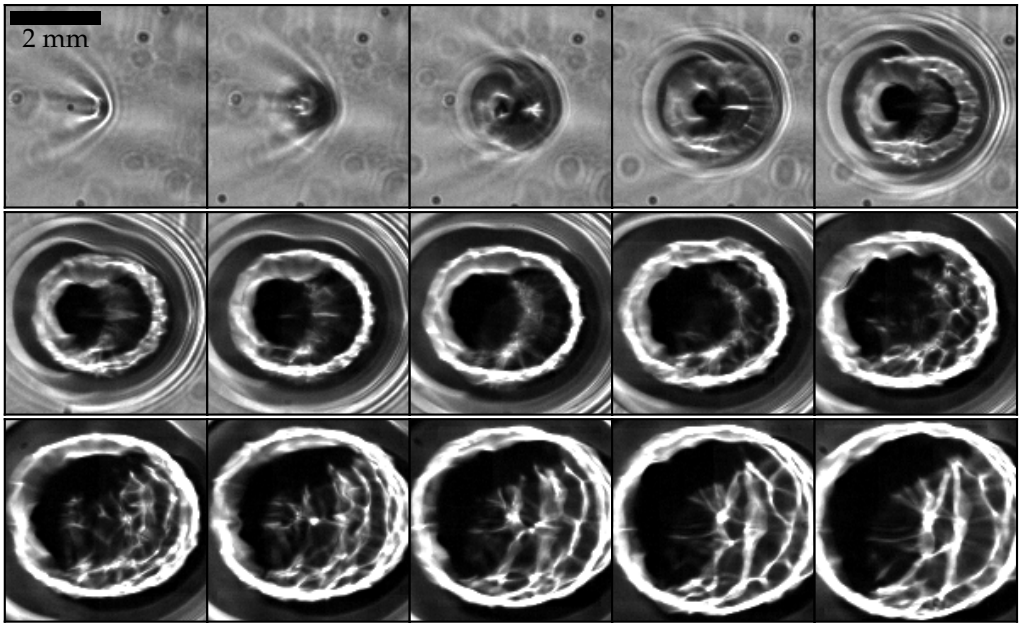

FIGURE 3.10 – « Turbulence interfaciale » suite à la collision d'une goutte d'éthanol sur un film d'eau, d'épaisseur 430 µm. Le film est visualisé à travers un dispositif Schlieren (voir la description section 2.2.3). 200 µs séparent deux images consécutives.

Il a été finalement observé, dans certains cas, des fluctuations d'intensité lumineuse rapides, signe d'une forte activité interfaciale. L'aspect texturé de la pellicule en cours d'amincissement est imputée en première approximation à des variations d'épaisseur, bien qu'un effet de Schlieren dû à la réfraction différenciée des rayons lumineux par le mélange inhomogène éthanol-eau ait pu se superposer, participant de l'impression visuelle. Les observations d'une telle activité parcourent la littérature (THOMSON, 1855 ; LEWIS et PRATT, 1953 ; SHERWOOD et WEI, 1957 ; BERG, BOUDART et ACRIVOS, 1966 ; SANTIAGO-ROSANNE, VIGNES-ADLER et VELARDE, 1997, entre de multiples autres), sans que le terme de « turbulence interfaciale », proposé par MURDOCH et PRATT, 1953, ne se soit imposé de manière satisfaisante à ce jour. Cette activité interfaciale est une manifestation des nombreux « effets Marangoni » (MARANGONI, 1865 ; SCRIVEN & STERNLING, 1960).

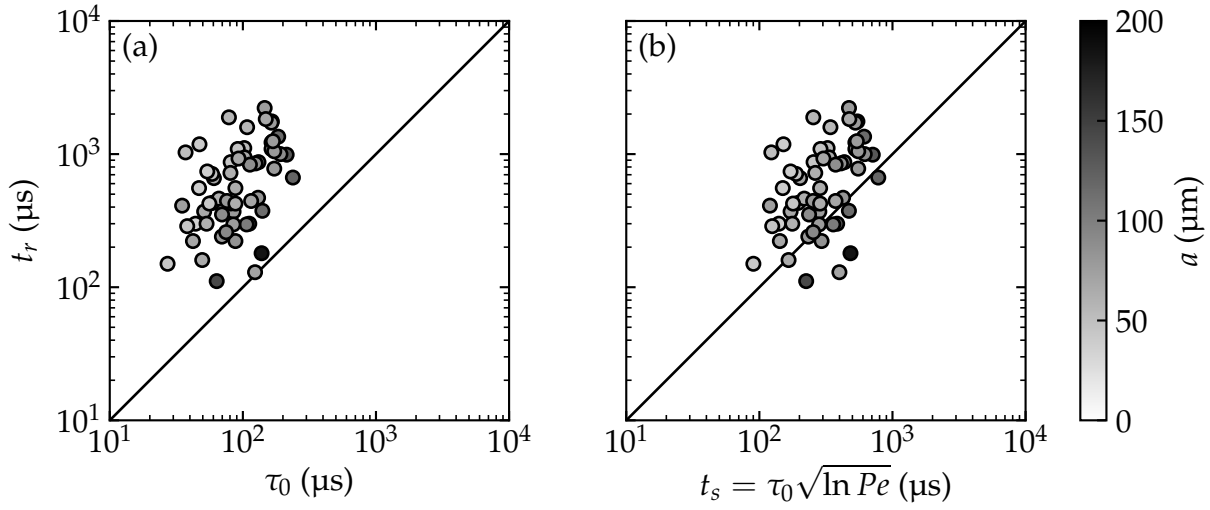

FIGURE 3.11 – Temps de rupture

Temps de rupture

Le film perce en un temps t_r, compté à partir de l'instant d'incorporation de la goutte dans le film. À cette durée contribuent principalement deux étapes,

1. la mise en mouvement du film selon le mécanisme Marangoni, d'échelle τ_0 (chapitre 2),
2. la vidange du film selon un mécanisme de choc détaillé ci-après, jusqu'à la rupture.

Une explication complète des expériences (voir par exemple la figure 3.8) nécessiterait toutefois de prendre en compte une troisième étape, déterminante en ceci qu'elle conduit la pellicule centrale, d'une épaisseur typique de 1 µm, à la rupture. Cette étape, bien plus rapide que les deux précédentes, est hors de portée des résolutions spatiale et temporelle du dispositif expérimental : l'épaisseur de la pellicule traverse les ordres de grandeurs qui séparent le micron, épaisseur à la rupture, de la taille moléculaire en à peine quelques microsecondes (figure 3.7). Elle ne contribue donc pas, en première approximation, à t_r.

La figure 3.11a montre que le temps de rupture du film est systématiquement plus grand que l'échelle τ_0 (3.0.1) mesurée à partir des caractéristiques du film. La concordance des ordres de grandeur est d'autant plus précise que l'on considère non plus le temps inertiel, mais le temps de mélange $t_s = \tau_0\sqrt{\ln Pe}$ (2.3.21), temps à partir duquel la diffusion du polluant, à grand nombre de Péclet, ne parvient plus à régulariser l'advection du gradient de tension de surface (figure 3.11b).

Singularité ?

L'étude de la rupture en termes de singularité, par la recherche d'un exposant α tel que

$$\frac{h}{h_0} \sim \left(1 - \frac{t}{t_r}\right)^{\alpha},$$

est limitée par les problèmes soulevés concernant la fiabilité de la calibration à faible épaisseur, et le taux d'acquisition. Néanmoins, le film perçant à l'échelle du micron, limite de la calibration, le suivi de l'épaisseur minimale peut être fait jusqu'à la rupture (figure 3.12). BURTON et TABOREK, 2007 ont montré par ailleurs que sous des conditions initiales

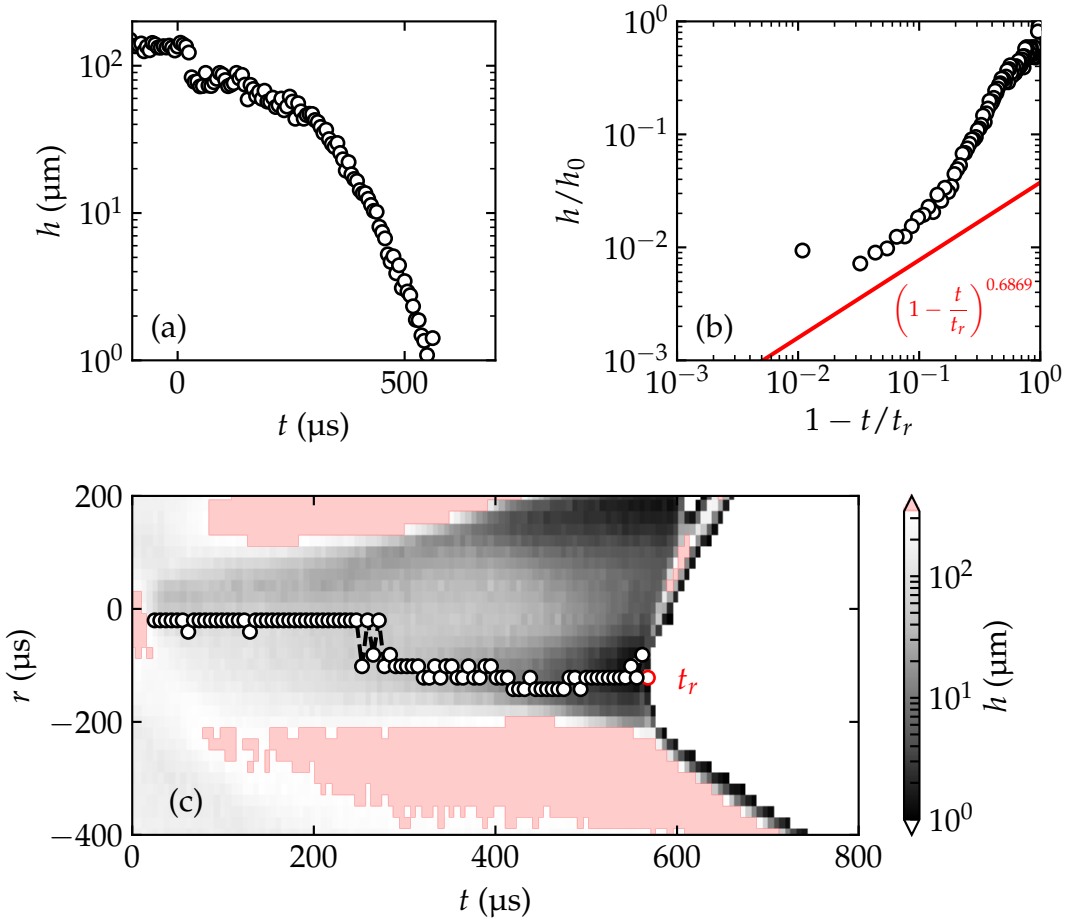

FIGURE 3.12 – Épaisseur minimale à l'approche de la rupture : (a) en fonction du temps ; (b) normalisée et en fonction du temps critique $1 - t/t_r$, avec t_r l'instant de la rupture. La prédiction de BURTON et TABOREK, 2007 est tracée en trait rouge. (c) Localisation du minimum d'épaisseur au cours du temps.

suffisamment violentes, les équations de film liquide, en approximation de grandes ondes et sans viscosité, développent une singularité. Par un mécanisme de succion *à la Bernoulli*, l'écoulement interstitiel génère dans un point de constriction du film une dépression à même d'équilibrer, voire de vaincre la surpression de Laplace au même point. L'exposant critique pour le minimum d'épaisseur, dérivé dans une configuration unidimensionnelle, est représenté figure 3.12b à titre de comparaison avec les expériences.

3.1.3 Régularisations

Le mécanisme proposé au chapitre 2 donne le nombre de Péclet comme critère de déstabilisation du film. La conséquence pratique la plus directe est la prédiction des conditions de rupture du film, explorée expérimentalement ci-après. En variant les paramètres de la perturbation du film — par exemple pour un même couple {film d'eau, perturbation d'éthanol}, en projetant une collection de gouttelettes de différentes tailles sur des films d'épaisseur variable —, l'observation est faite de cas qui conduisent en effet à la rupture, et d'autres qui sont régularisés.

En tâchant de rester dans les hypothèses d'épaisseur précédemment choisies — suffi-

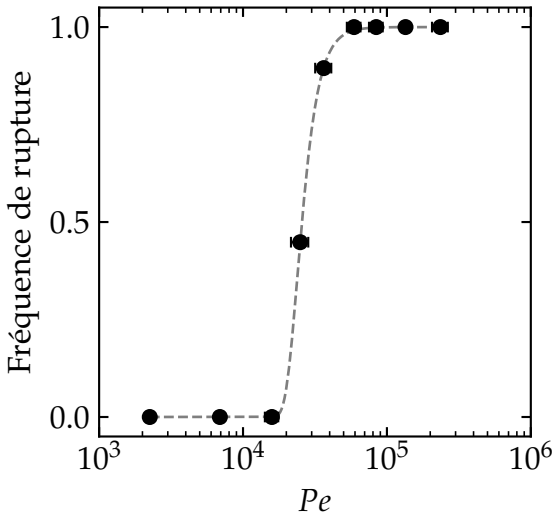

FIGURE 3.13 – Fréquence de rupture en fonction du nombre de Péclet. La ligne pointillée souligne la tendance.

samment grande pour négliger les interactions moléculaires entre les interfaces, suffisamment faible pour diffuser instantanément quantité de mouvement et polluant à travers l'épaisseur —, plusieurs mécanismes physiques peuvent être à l'origine de la régularisation de la déstabilisation.

La diffusion, que ce soit de la température ou de la concentration de polluant, invoquée au chapitre précédent est la première source de régularisation envisagée. Son action est directe sur les gradients de tension superficielle, moteur de l'écoulement de Marangoni. Le nombre de Péclet quantifie son effet, qui compare le temps inertiel τ_0 au temps a^2/ν de régularisation du gradient de tension de surface :

$$Pe = \frac{a^2}{D\tau_0} = \frac{a}{D}\sqrt{\frac{\Delta\sigma}{\rho h}}\,. \tag{3.1.2}$$

La déstabilisation du film est régularisée pour $Pe \ll 1$, amplifiée pour $Pe \gg 1$, produisant le cas échéant un comportement catastrophique. La transition est estimée analytiquement autour de $Pe = 1$ (section 2.3.2). Les expériences sur un même couple {film d'eau, goutte d'éthanol}, où seul est varié le rapport $a/\sqrt{h}$, exhibe une transition vers la rupture évaluée quelques ordres de grandeur plus haut, autour de $Pe = 10^4$ (figure 3.13). Ce net écart à la prédiction linéaire nous invite à considérer d'autres mécanismes régularisateurs.

La capillarité, à proprement parler, ne lisse pas les gradients de tension superficielle. C'est davantage le caractère dispersif de la tension de surface, dans sa valeur absolue σ et non relative à la perturbation $\Delta\sigma$, qui intervient, régularisant une perturbation d'épaisseur en propageant des ondes variqueuses, comme il est observé à la coalescence d'une goutte d'un même liquide (figures 2.7 et 3.3). Le temps capillaire typique de cet effet dans le cas d'un film d'épaisseur h, $\tau_C = \sqrt{\rho a^4/\sigma h}$, est comparé à l'inertie τ_0 du film grâce à un nombre de Weber :

$$We = \left(\frac{\tau_C}{\tau_0}\right)^2 = \frac{\Delta\sigma}{\sigma}\left(\frac{a}{h}\right)^2\,. \tag{3.1.3}$$

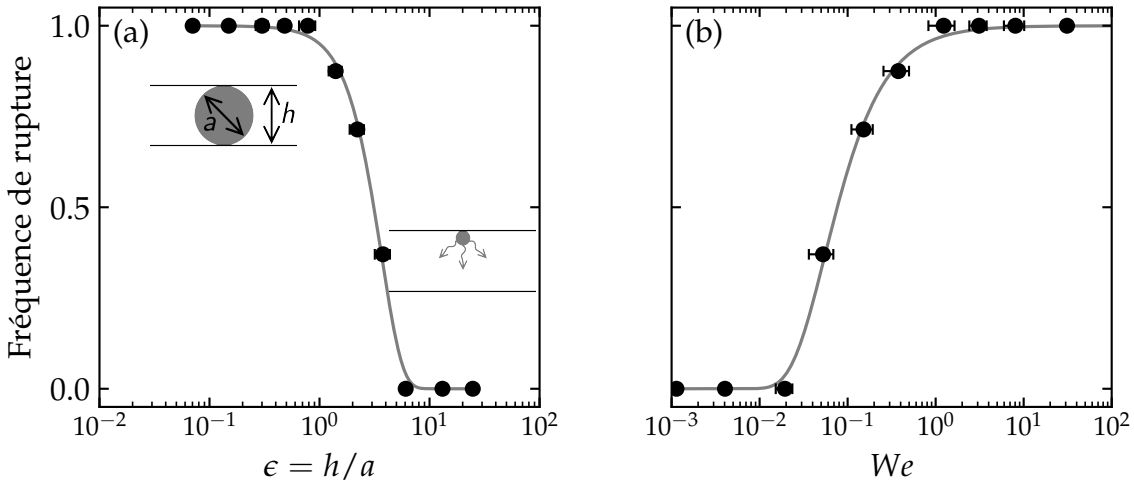

FIGURE 3.14 – Fréquence de rupture d'un film d'eau (d'épaisseur h) suite à la coalescence d'une goutte d'éthanol (de taille a), en fonction (a) du rapport d'aspect $\epsilon = h/a$ et (b) du nombre de Weber (voir texte). Les lignes pointillées sont destinées à guider le regard.

De grandes valeurs de We, de même que dans le domaine des collisions de gouttes où sa définition est plus naturelle (voir par exemple le chapitre 4), dénotent une action violente du terme de Marangoni, dominant la capacité régularisatrice, au sens dispersif, du film. De faibles valeurs de We verront au contraire la capillarité « absolue » l'emporter.

Pour un même couple {film, perturbation}, les valeurs de σ et $\Delta\sigma$ sont fixées, et le nombre de Weber est simplement le rapport d'aspect $\epsilon = h/a$ entre l'épaisseur du film et la taille de la perturbation appliquée. Un mince film d'eau ($h/a \ll 1$) perturbé par une goutte d'éthanol perce de façon certaine. Un film épais ($h/a \gg 1$) est préservé de la rupture de façon tout aussi certaine, pour une transition situé à $h/a \approx 3$ (figure 3.14a). Considérée en nombre de Weber $We \propto 1/\epsilon^2$, la transition est estimée autour de $We = 10^{-1}$ (figure 3.14b).

La viscosité du liquide constituant le film quantifie la diffusion de la quantité de mouvement, le long de celui-ci. Le temps correspondant $\tau_V = a^2/\nu$, avec ν la viscosité cinématique, peut être comparé au temps capillaire τ_C, pour donner naissance au nombre d'Ohnesorge relatif au film :

$$Oh = \frac{\tau_C}{\tau_V} = \frac{\eta}{\sqrt{\rho\sigma h}}, \tag{3.1.4}$$

avec η la viscosité dynamique. De manière surprenante, Oh est indépendant de la taille a de la perturbation. De façon alternative et d'une certaine façon redondante, la comparaison de τ_V avec τ_0 fabrique l'équivalent du nombre de Péclet pour la diffusion de la quantité de mouvement, relié à ce dernier par un nombre de Prandtl $Pr = \nu/\alpha$ ou de Schmidt $Sc = \nu/D$, selon la nature de la perturbation (respectivement thermique ou par dilution d'un soluté) :

$$\frac{\tau_V}{\tau_0} = \frac{\sqrt{We}}{Oh} = \frac{a^2}{\nu\tau_0} = \frac{Pe}{Pr} \text{ ou } \frac{Pe}{Sc}. \tag{3.1.5}$$

Plus de deux effets étant en compétition dans ce problème, il existe, comme souvent en mécanique des fluides, plusieurs groupes adimensionnés pour mesurer leurs importances relatives. À la différence d'autres études menées sur le sujet (MATAR et CRASTER,

2001 ; CRASTER et MATAR, 2009 ; BOWEN et TILLEY, 2013), l'emphase est ici mise sur le temps de déstabilisation du film τ_0, dont le rôle majeur a été montré au chapitre 2. La définition des nombres de Péclet et de Weber suit sans équivoque. Le rôle de la viscosité est déjà sujet, comme il vient d'être vu, à différentes interprétations. Concluons quant au nombre de Marangoni, consacré lors de l'étude d'une fine couche d'un liquide visqueux soumise à un transfert thermique vertical, situation de référence de l'instabilité de Marangoni-Bénard (BÉNARD, 1901 ; PEARSON, 1958 ; NIELD, 1964). Il est ici une combinaison peu pertinente des quatre nombres adimensionnés précédents :

$$Ma = \frac{\Delta\sigma a}{\eta D} = \epsilon \frac{Pe\sqrt{We}}{Oh} = \epsilon \frac{Pe^2}{Sc}\,, \tag{3.1.6}$$

moins aisée à manipuler. De plus, sa valeur très élevée (au minimum 10^5 dans le cas de la coalescence d'une goutte d'éthanol sur un film d'eau) valide l'approximation faite d'une transmission instantanée du cisaillement interfacial à travers le film suspendu.

Mécanisme

À ce stade, les observations expérimentales conduisent aux conclusions partielles suivantes, d'un mécanisme de rupture envisagé en quatre étapes.

1. L'étape de déstabilisation linéaire est primordiale, en ce qu'elle fournit au physicien l'échelle de temps de la rupture et au film la quantité de mouvement nécessaire.
2. Le film est alors creusé selon une pellicule centrale, le liquide s'accumulant en un bourrelet de progression lente. Cette étape présente des similitudes avec une structure de choc.
3. Le brusque changement d'épaisseur entre la pellicule et le bourrelet fait émerger, par capillarité, un minimum d'épaisseur. Sa valeur décroît de façon très localisée et rapide.
4. D'abord locale, la rupture se propage de façon presque homogène à l'ensemble de la pellicule centrale, avec une légère préférence par le rayon d'épaisseur minimale.

Le film est, dès lors, percé, la rupture de la pellicule ayant lieu sur une taille plus grande que l'épaisseur initiale du film, et ce dernier se rétracte irrémédiablement à la vitesse constante de Taylor-Culick.

3.2 Équations de film suspendu

Les films *minces* ont la particularité de pouvoir être représentés par un grand rapport d'aspect : l'échelle spatiale longitudinale a est grande devant l'échelle transverse, à savoir l'épaisseur h du film. Les équations régissant la dynamique et la conservation de la masse prennent alors, selon l'hypothèse de grandes ondes applicable, une forme particulière. La démarche, également suivie par ERNEUX et DAVIS, 1993 ; ORON, DAVIS et BANKOFF, 1997 ; TILLEY et BOWEN, 2005, vise à établir une base analytique pour l'étude de la rupture.

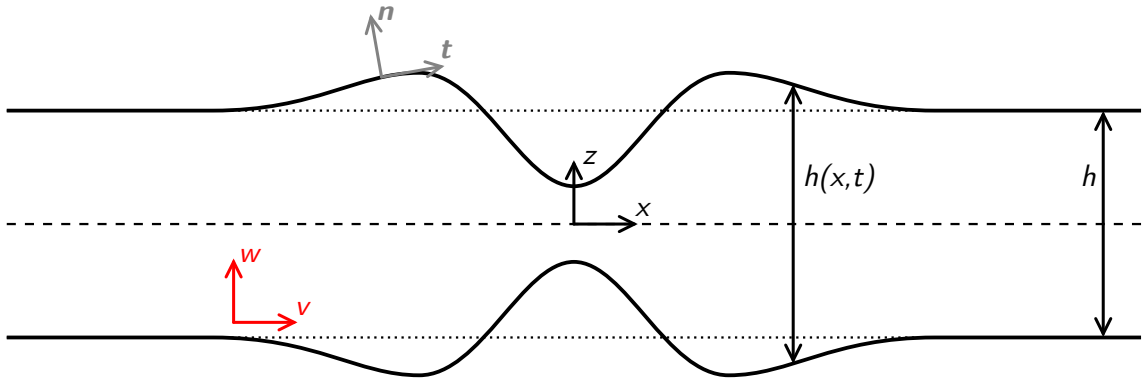

FIGURE 3.15 – Film liquide (masse volumique ρ, viscosité cinématique ν, épaisseur initiale h) soumis à un gradient de tension de surface dans la direction x, par rapport à laquelle il est symétrique. La direction y est invariante.

3.2.1 Cas unidimensionnel

Soit un film, d'épaisseur h, constitué d'un liquide de masse volumique ρ et viscosité cinématique ν. Le liquide est en interaction avec son environnement à travers une tension superficielle $\sigma(\mathbf{x}, t)$ faiblement variable autour de sa valeur moyenne σ. Le film est étudié dans le plan Oxy, par rapport auquel il est symétrique, d'un référentiel adéquat, et considéré invariant dans la direction perpendiculaire y (figure 3.15). L'analyse est de ce fait restreinte aux mouvement variqueux (TAYLOR, 1959a).

À $t = 0$ est appliquée sur le film, dans la direction x, une perturbation de tension de surface d'amplitude $\Delta\sigma$ et de largeur a, grande devant h. Cette perturbation $\sigma(x,t) - \sigma$ est portée, de façon formellement identique, par une variation de température ou une concentration en espèce chimique $c(x,t)$, via l'équation d'état :

$$\sigma(x,t) = \sigma - \Gamma c(x,t)\,, \tag{3.2.1}$$

linéaire sous réserve que les niveaux de concentration demeurent faibles. De même qu'au chapitre 2, l'épaisseur est supposée suffisamment mince pour que 1. la quantité de mouvement soit instantanément transmise à travers l'épaisseur, et 2. la tension de surface soit identique de part et d'autre du film. Physiquement, les temps issus de l'analyse devront être plus longs que h^2/ν et h^2/D les échelles respectives d'homogénéisation de la vitesse et de la concentration, où D est le coefficient de diffusion de cette dernière.

Les bilans établis au chapitre 2 décrivent la réorganisation, ou mise en mouvement, initiale du film suite à l'application d'un gradient de tension de surface. À temps long devant τ_0 (3.0.1), le temps inertiel dont le rôle a précédemment été mis en évidence, les bilans de matière et de quantité de mouvement ne peuvent plus se réduire à leur développement linéaire.

Volume

L'écoulement interstitiel est caractérisé par la vitesse $\mathbf{u} = \{v(x,z,t), w(x,z,t)\}$, soumise par conservation de la quantité de mouvement aux équations de Navier-Stokes dans les

directions x et z :

$$\partial_t v + v\partial_x v + w\partial_z v = -\frac{1}{\rho}\partial_x p + \nu\left(\partial^2_{xx} v + \partial^2_{zz} v\right) \tag{3.2.2a}$$

$$\partial_t w + v\partial_x w + w\partial_z w = -\frac{1}{\rho}\partial_z p + \nu\left(\partial^2_{xx} w + \partial^2_{zz} w\right) . \tag{3.2.2b}$$

La gravité est, pour des films d'épaisseur faible devant la longueur capillaire ℓ_c, d'emblée négligée. La conservation de la masse dans le liquide incompressible implique une divergence nulle de la vitesse :

$$\partial_x v + \partial_z w = 0 . \tag{3.2.3}$$

La concentration $c(x,t)$, grandeur intrinsèquement diffusive, est quant à elle soumise aux mouvements du substrat à travers une équation d'advection-diffusion :

$$\partial_t c + v\partial_x c + w\partial_z c = D\left(\partial^2_{xx} c + \partial^2_{zz} c\right) . \tag{3.2.4}$$

Surface libre

Les deux interfaces supérieure et inférieure, symétriques, du film sont suspendues, en contact direct avec le milieu gazeux extérieur. En négligeant toute autre action de ce dernier, que celle d'imposer une pression, en tout lieu et à tout instant, constante et égale à 0, les surfaces libres $z = \pm h(x,t)/2$ sont soumises par la continuité des contraintes $\mathbf{T}$ normale et tangentielle. Si les équations se lisent simplement en formalisme tensoriel :

$$\mathbf{n}.\mathbf{T}.\mathbf{n} = \sigma\kappa , \tag{3.2.5a}$$

$$\text{et} \quad \mathbf{n}.\mathbf{T}.\mathbf{t} = \nabla\sigma.\mathbf{t} , \qquad \text{en } z = \pm\frac{h(x,t)}{2} , \tag{3.2.5b}$$

il sera nécessaire de recourir à quelques notions élémentaires de géométrie différentielle afin d'en expliciter les expressions. $\mathbf{t}$ et $\mathbf{n}$ sont respectivement les vecteurs tangent et normal au point de coordonnées $(x, h(x,t)/2)$ considéré, κ la courbure du film et $\nabla\sigma$ désigne le gradient ∇ de $\sigma(\mathbf{x},t)$ dans le plan Oxy, soit par invariance selon y la simple dérivation par rapport à x. L'équation (3.2.5a) est la loi de Laplace, l'équation (3.2.5b) introduit habituellement la contrainte de Marangoni (LEVICH, 1962 ; ADLER & SOWERBY, 1970).

Enfin, la conservation de la masse implique, dès lors qu'un mouvement est imprimé au fluide, une réorganisation du liquide traduite en condition cinématique à la surface $z = \pm h(x,t)/2$:

$$\partial_t h + v\partial_x h = 2w . \tag{3.2.6}$$

Développement

Suivant l'hypothèse de grandes ondes, le film est supposé mince, *i.e.* d'épaisseur typique h faible devant a l'échelle de variation selon z : $h/a \ll 1$, de même que $\partial_x h \ll 1$. Tout écoulement interstitiel sera alors dominé par la vitesse longitudinale v, symétrique selon $z = 0$ et développée en série paire de $z/a \leq h/2a$, en imitant les analyses de EGGERS et DUPONT, 1994 ; TILLEY et BOWEN, 2005 :

$$v(x,z,t) = v_0(x,t) + \frac{1}{2}v_2(x,t)\left(\frac{z}{a}\right)^2 + \cdots . \tag{3.2.7}$$

Par intégration, à partir de $z = 0$, de l'équation de conservation de la masse (3.2.3), la vitesse transverse w suit immédiatement :

$$w(x,z,t) = -z\left(v_0' + \frac{1}{6}v_2'\left(\frac{z}{a}\right)^2 + \cdots\right), \tag{3.2.8}$$

où l'apostrophe désigne la dérivation par rapport à x. La pression est de même développée en série de z/a :

$$p(x,z,t) = p_0(x,t) + \frac{1}{2}p_2(x,t)\left(\frac{z}{a}\right)^2 + \cdots. \tag{3.2.9}$$

À l'ordre le plus bas en z/a, vitesse longitudinale, concentration et pression sont, comme attendu, constantes à travers l'épaisseur. Autrement dit, la quantité de mouvement ainsi que la matière ont diffusé plus rapidement que toute autre échelle de temps τ : $h^2/\nu \ll \tau$ et $h^2/D \ll \tau$. L'équation de Navier-Stokes selon x (3.2.2a) se simplifie en conservant les ordres dominants :

$$\partial_t v_0 + v_0 v_0' = -\frac{1}{\rho}p_0' + \nu\left(v_0'' + \frac{v_2}{a^2}\right). \tag{3.2.10}$$

Si la présence des termes en v_0 n'est guère surprenante, il convient de remarquer celle du terme en v_2, essentiel en ce qui concerne la transmission des contraintes dans la direction transverse z. La continuité de la contrainte normale (3.2.5a) se réécrit à l'ordre 0 en h/a et $\partial_x h$:

$$-p_0 - 2\eta v_0' = \sigma\kappa\,, \tag{3.2.11}$$

et donnera lieu au terme de Laplace dans l'équation de la dynamique (3.2.14a). L'équation (3.2.5b), nécessairement génératrice de mouvement dès lors que le gradient $\partial_x\sigma$ n'est pas nul, exprime via v_2 la transmission de la contrainte tangentielle à travers le film :

$$\eta\left(\left(\frac{v_2}{a^2} - v_0''\right)\frac{h}{2} - 2h'v_0'\right) = \partial_x\sigma\,. \tag{3.2.12}$$

Cette équation fait apparaître la partie manquante du terme visqueux $4\nu\partial_x(h\partial_x v)/h$, dit de TROUTON, 1906, ainsi que le terme Marangoni $\partial_x\sigma/h$, où les interventions de la viscosité η au numérateur puis au dénominateur, se compensent exactement. La conservation de la masse et la condition cinématique de l'interface s'expriment finalement de manière unique par

$$\partial_t h + \partial_x(v_0 h) = 0\,. \tag{3.2.13}$$

Enfin, les équations de film mince en présence d'une contrainte Marangoni sont écrites à l'ordre 0, par souci de clarté, en omettant les indices :

$$\partial_t v + v\partial_x v = -\frac{2\Gamma}{\rho h}\partial_x c + \frac{\sigma}{\rho}\partial_x\kappa + \frac{4\nu}{h}\partial_x\left(h\partial_x v\right) \tag{3.2.14a}$$

$$\partial_t h + \partial_x(vh) = 0 \tag{3.2.14b}$$

$$\partial_t c + v\partial_x c = D\partial_{xx}^2 c\,. \tag{3.2.14c}$$

En cohérence avec les notations du chapitre 2, la vitesse v est bien la vitesse moyenne sur l'épaisseur du film $v = \int_{-h/2}^{h/2} u_x(x,z,t)$.

3.2.2 Équations sans dimensions

En se basant sur l'étude de la déstabilisation linéaire faite au chapitre 2, les équations (3.2.14) sont adimensionnées par a, l'échelle spatiale de la perturbation, et τ_0 (3.0.1) le temps inertiel correspondant. Basés sur les échelles de temps capillaire $\tau_C = \sqrt{\rho a^4/\sigma h}$ et visqueuse $\tau_V = a^2/\nu$ ont été définis précédémment les nombres sans dimensions de Péclet, Weber et Ohnesorge (voir 3.1.3) :

$$Pe = \frac{a^2}{D\tau_0} \quad ; \quad We = \frac{\tau_C^2}{\tau_0^2} = \frac{\Gamma c}{\sigma}\frac{a^2}{h^2} \quad ; \quad Oh = \frac{\tau_C}{\tau_V} = \frac{\eta}{\sqrt{\rho h \sigma}}\,. \tag{3.2.15}$$

Le système d'équations (3.2.14) s'exprime alors, en étendant la limite $h' \ll 1$ à la courbure $\kappa = h''/(1+h'^2)^{3/2} \sim h''$ et en absorbant les facteurs numériques dans les nombres sans dimension :

$$\partial_t v + v\partial_x v = -\frac{\partial_x c}{h} + \frac{1}{We}\,\partial^3_{x^3} h + \frac{Oh}{\sqrt{We}}\,\frac{\partial_x\left(h\partial_x v\right)}{h} \tag{3.2.16a}$$

$$\partial_t h + \partial_x(vh) = 0 \tag{3.2.16b}$$

$$\partial_t c + u\partial_x c = \frac{1}{Pe}\partial^2_{xx} c\,. \tag{3.2.16c}$$

Cas axisymétrique

De la même manière, les équations sont dérivées en géométrie axisymétrique, de coordonnées polaires (θ, r, z) centrée sur la perturbation. La vitesse orthoradiale est considérée nulle à tout instant, et la composante radiale $v(r,z,t)$ est développée en série (paire) de termes z/a, avec a la largeur de la perturbation initiale :

$$v(r,z,t) = v_0(r,t) + \frac{1}{2}v_2(r,t)\left(\frac{z}{a}\right)^2 + \dots \tag{3.2.17}$$

La vitesse verticale $w(r,z,t)$ suit de la conservation de la masse en divergence radiale $\partial_r(rv)/r + \partial_z w = 0$:

$$w(r,z,t) = -\frac{z}{r}\left((rv_0)' + \frac{1}{6}(rv_2)'\left(\frac{z}{a}\right)^2 + \dots\right), \tag{3.2.18}$$

où l'apostrophe dénote la dérivation par rapport à r. La valeur de w est sous-dominante par rapport à v, hormis en $r = 0$ où v_0 est nécessairement nulle $v_0(0,t) = 0$ à tout temps, à l'ordre le plus bas. Les équations sont finalement réécrites à cet ordre 0, en omettant l'indice :

$$\partial_t v + v\partial_r v = -\frac{\partial_r c}{h} + \frac{1}{We}\,\partial_r \kappa + \frac{Oh}{\sqrt{We}}\,\frac{\partial_r\left(\frac{h\partial_r(rv)}{r}\right)}{h} \tag{3.2.19a}$$

$$\partial_t h + \frac{\partial_r(rvh)}{r} = 0 \tag{3.2.19b}$$

$$\partial_t c + v\partial_r c = \frac{1}{Pe}\,\frac{\partial_r(r\partial_r c)}{r}\,. \tag{3.2.19c}$$

Du fait de la symétrie axiale, il est nécessaire de préciser les conditions en $r = 0$:

$$v(r = 0, t) = 0 \quad , \qquad \partial_r h|_{r=0} = 0 \quad , \qquad \partial_r c|_{r=0} = 0 \, . \tag{3.2.20}$$

Les observations faites à la section 3.1.2, d'une rupture localisée en $r > 0$ suffisent à justifier, en ce qui concerne la rupture du film, l'abandon du cas axisymétrique au profit du cas unidimensionnel.

3.3 Le cas non diffusif

Nous venons d'établir les équations de film mince sous l'approximation de grandes ondes $\partial_x h \ll 1$, en présence d'une tension de surface variable $\sigma = \sigma(x, t)$ (section 3.2). Leur développement à temps court, à l'occasion d'une perturbation soudaine et locale de tension de surface, prévoit une déstabilisation du film via le mécanisme Marangoni détaillé au chapitre 2. Cette déstabilisation peut se révéler catastrophique lorsque la diffusion (moléculaire ou thermique en fonction de la perturbation considérée) ne parvient pas à régulariser la perturbation au-delà du temps de mélange t_s (2.3.21). Nous poussons ici l'analyse dans ses retranchements, en considérant la situation la plus catastrophique imaginable : toute diffusion (moléculaire, thermique, de quantité de mouvement), de même que la dispersion par propagation d'ondes capillaires, est considérée nulle suite à la perturbation initiale de tension de surface. Soit, en termes de nombres adimensionnés :

$$\frac{1}{Pe} = \frac{1}{We} = Oh = 0 \, .$$

L'analyse est menée à même la tension superficielle, en gardant à l'esprit la possible et immédiate transposition, via une équation d'état linéaire, en température ou concentration. Les équations de Navier-Stokes (3.3.1a), de conservation de la masse (3.3.1b) et de diffusion (3.3.1c) s'écrivent, en coordonnées adimensionnées :

$$\partial_t v + v\partial_x v = \frac{1}{h}\partial_x \sigma \tag{3.3.1a}$$

$$\partial_t h + v\partial_x h = -h\partial_x v \tag{3.3.1b}$$

$$\partial_t \sigma + v\partial_x \sigma = 0 \, . \tag{3.3.1c}$$

3.3.1 Dérivation lagrangienne

En suivant la démarche de LHUISSIER, 2017, le point de vue eulérien est abandonné au profit du point de vue lagrangien : nous suivons une tranche de fluide $X(X_0, t)$, située en x à tout temps t, initiée en $x = X_0$ à $t = 0$. Si la paternité de l'idée est selon EGGERS, 1997 à attribuer à RENARDY, 1994, le formalisme adopté par FONTELOS et VELÁZQUEZ, 1999 pour un jet non visqueux puis plus récemment par FONTELOS, KITAVTSEV et TARANETS, 2018 pour un film est préférable par sa clarté. La vitesse eulérienne v évaluée en X se transforme en vitesse lagrangienne $V(X_0, t)$ par

$$V(X_0, t) = v(x = X(X_0, t), t), \tag{3.3.2}$$

et il en va de même pour l'épaisseur du film $H(X_0,t)$ et sa tension superficielle $\Sigma(X_0,t)$. Par construction, la vitesse lagrangienne V est la dérivée de la position lagrangienne $\partial_t X(X_0,t)$, et les équations (3.3.1) se réécrivent, avec l'équation d'advection (3.3.3d) :

$$\partial_t V = \frac{1}{H\partial_{X_0} X}\partial_{X_0}\Sigma \tag{3.3.3a}$$

$$\partial_t H = -\frac{1}{\partial_{X_0} X}H\partial_{X_0} V \tag{3.3.3b}$$

$$\partial_t \Sigma = 0 \tag{3.3.3c}$$

$$\partial_t X = V(X_0,t)\,. \tag{3.3.3d}$$

L'advection pure (ou conservation) de la tension de surface (3.3.3c) affranchit cette dernière de sa dépendance temporelle : le profil lagrangien de tension superficielle est entièrement spécifié par la condition initiale

$$\Sigma(X_0,t) = \Sigma(X_0,0) = F(X_0) = \sigma(x,0)\,. \tag{3.3.4}$$

L'équation de la dynamique (3.3.3a), une nouvelle fois dérivée par rapport au temps, s'annule grâce à la conservation de la masse (3.3.3b) et la relation constitutive de l'advection d'une tranche fluide (3.3.3d) :

$$\partial_{tt} V = 0\,, \tag{3.3.5}$$

dont la résolution, une fois spécifiées les conditions initiales, ne présente pas de difficulté particulière. Considérant le problème de la perturbation d'un film au repos, la vitesse est prise nulle à $t = 0$: $V(X_0,0) = 0$. D'après (3.3.5), sa dérivée $\partial_t V$, également exprimée dans l'équation de la dynamique (3.3.3a), est une fonction de la seule variable X_0. Le produit $H\partial_{X_0} X$ ne peut être de même qu'une fonction de X_0, évaluée en $t = 0$ où X_0 coïncide en tout point avec la coordonnée eulérienne x :

$$H\partial_{X_0} X = H\partial_{X_0} X|_{X_0,t=0} = 1\,. \tag{3.3.6}$$

Outre le fait d'assurer la conservation, sous forme intégrale, du volume de liquide, la relation (3.3.6) simplifie les équations (3.3.3a) et (3.3.3b) :

$$\partial_t V = F'(X_0) \tag{3.3.7a}$$

$$\partial_t H = -H^2\partial_{X_0} V\,. \tag{3.3.7b}$$

Le système (3.3.3) est finalement résolu, qui dépend de l'unique perturbation de tension de surface initiale $F(X_0)$:

$$V(X_0,t) = F'(X_0)t \tag{3.3.8a}$$

$$H(X_0,t) = \frac{1}{1+\frac{1}{2}F''(X_0)t^2} \tag{3.3.8b}$$

$$\Sigma(X_0,t) = F(X_0) \tag{3.3.8c}$$

$$X(X_0,t) = X_0 + \frac{1}{2}F'(X_0)t^2\,. \tag{3.3.8d}$$

Le retour aux coordonnées eulériennes se fait en résolvant l'équation

$$x = X(X_0,t)\,, \tag{3.3.9}$$

qui admet, par continuité avec la solution initiale ($x = X_0$) et jusqu'à un certain point, une unique solution.

Par l'expression de l'épaisseur (3.3.8b), dès lors qu'il existe un X_0 tel que $F''(X_0) < 0$, la solution lagrangienne (3.3.8) développe une structure de choc, à partir du temps

$$t_c = \sqrt{-\frac{2}{F''(X_c)}}, \tag{3.3.10}$$

où X_c est la position du minimum (négatif) de $F''(X_0)$. Au-delà de t_c, l'équation de passage aux coordonnées eulériennes (3.3.9) admet alors plusieurs solutions, introduisant artificiellement une discontinuité dans la résolution du système initial (3.3.1).

3.3.2 Perturbation gaussienne

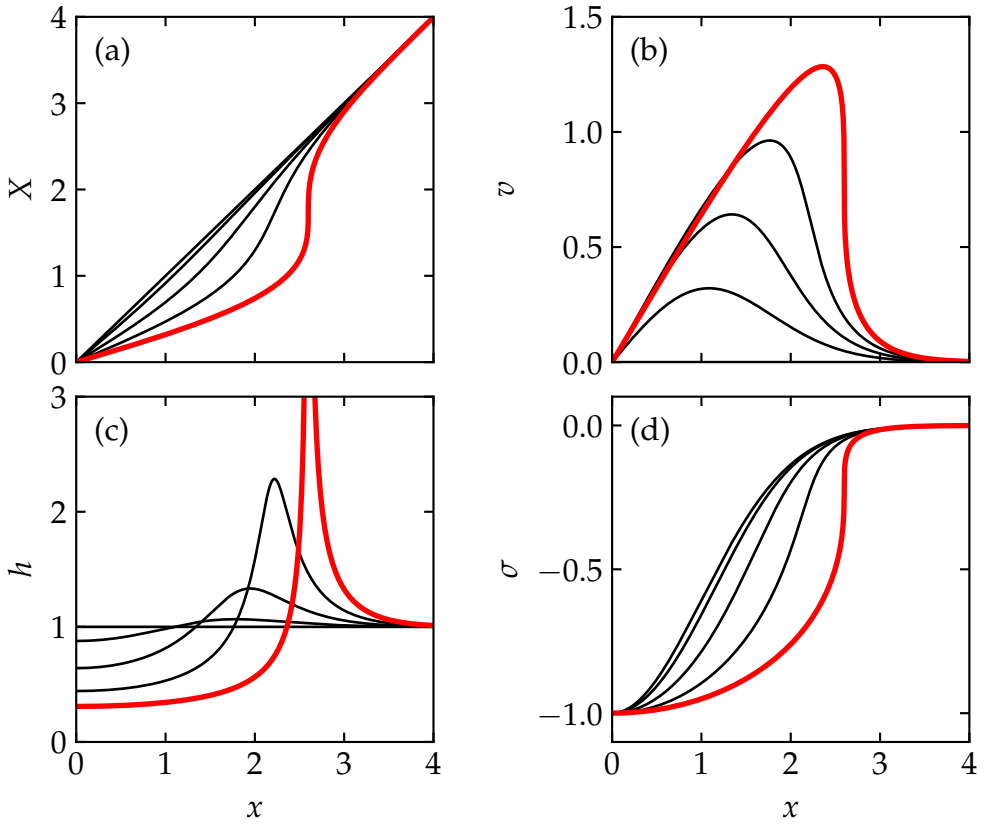

FIGURE 3.16 – Réponse, en coordonnées eulériennes, du système (3.3.1) à un déficit de tension de surface. 5 instants linéairement espacés entre $t = 0$ et $t = t_c$ sont représentés en fonction de x, pour (a) la coordonnée lagrangienne, (b) la vitesse, (c) l'épaisseur et (d) la tension de surface (à laquelle est retranchée le terme constant).

On envisage une pollution de la surface sous la forme d'un déficit initial gaussien de la tension de surface σ, d'amplitude $\Delta\sigma \ll \sigma$ et de largeur typique a, soit dans notre système adimensionné :

$$\sigma(x, t = 0) = \frac{\sigma}{\Delta\sigma} - \exp\left(-\frac{x^2}{2}\right), \tag{3.3.11}$$

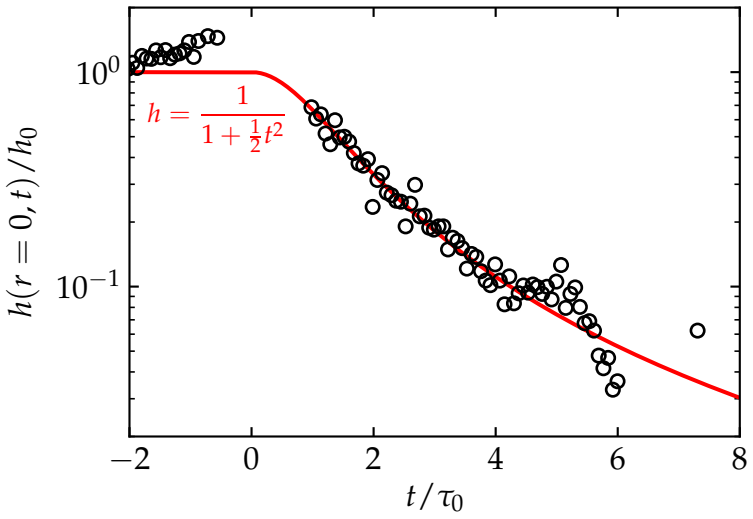

FIGURE 3.17 – Épaisseur en $r = 0$ au cours du temps, expérimentale (○ et ligne pointillée de la figure 3.18) et théorique (ligne rouge).

où le terme constant n'est, à $We = +\infty$, d'aucune utilité :

$$F(X_0) = -\exp\left(-\frac{X_0^2}{2}\right). \tag{3.3.12}$$

La solution est présentée figure 3.16, et présente un choc en un temps $t_c = e^{3/4}$, soit $t_c \sim \tau_0$ en dimension physique, à un préfacteur d'ordre unité près.

Par symétrie, l'épaisseur est extrémale en $x = 0$, à tout temps antérieur, comme postérieur au choc. Par continuité temporelle avant et après t_c, il s'agit d'un minimum. Le choc, situé en $x > 0$, ne perturbe pas *a priori* l'évolution du minimum, dont l'expression est aisément explicitée en coordonnées eulériennes :

$$h(x = 0, t) = \frac{1}{1+\frac{1}{2}t^2}, \tag{3.3.13}$$

Elle prédit une annulation de l'épaisseur :

1. en $x = 0$,
2. en temps infini.

À temps courts et intermédiaires, ce profil d'épaisseur s'ajuste de manière convenable aux données expérimentales, prolongeant l'analyse des temps initiaux, (figure 3.17). À temps plus long, toutefois, ces deux conclusions sont en contradiction avec l'observation expérimentale d'une rupture décentrée, en temps fini (figure 3.7), rendant nécessaire la mise en équation du choc.

3.3.3 Choc

L'accumulation du liquide en un épais bourrelet, de progression lente devant la vitesse d'ouverture du film ultérieure, est interprétée en termes de front (voir figure 3.7). L'instant du choc t_c prédit par la théorie (3.3.10) donne une bonne approximation de la transition entre le régime de déstabilisation linéaire et un régime d'amincissement critique, qui aboutit à la rupture du film.

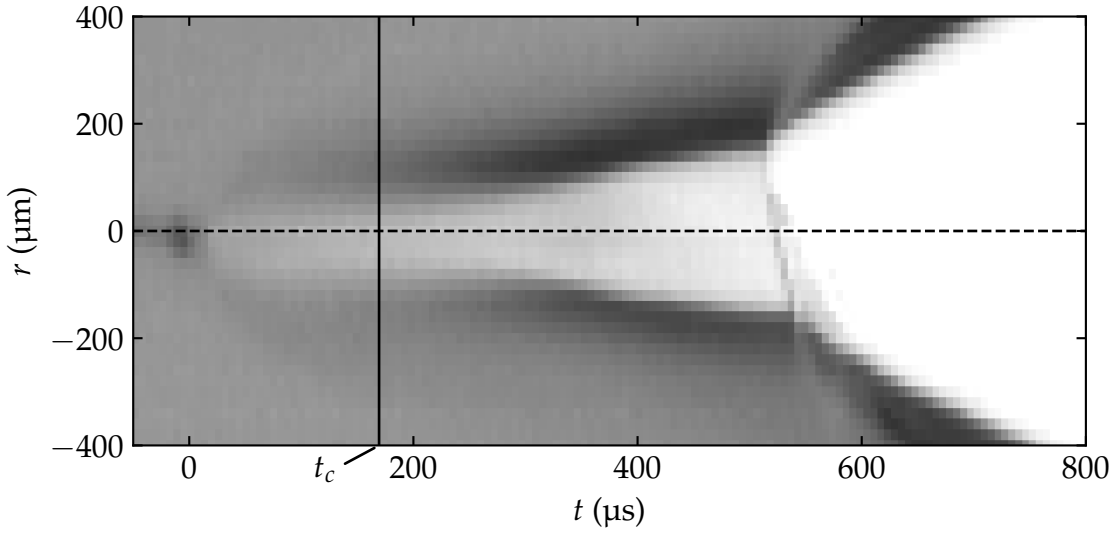

FIGURE 3.18 – Perturbation d'un film d'eau, d'épaisseur $h = 100$ µm, par l'incorporation d'une goutte d'éthanol, de taille $a = 70$ µm. Le film est observé par absorption de la lumière, selon un profil radial r (ordonnée) au cours du temps t (abscisse). L'instant théorique de la formation du choc $t_c = e^{3/4}\tau_0$, avec $\tau_0 \approx 100$ µs calculé selon (3.0.1), est mis en évidence et sépare le régime linéaire d'un régime de choc.

Au-delà du choc ($t > t_c$), la discontinuité est appréhendée selon l'approche initialement proposée par RANKINE, 1870 ; HUGONIOT, 1889. L'équation de retour aux coordonnées eulériennes (3.3.8d), multivaluée à tout temps $t > t_c$, doit être satisfaite simultanément pour $X_{0-}(t)$ et $X_{0+}(t)$, les coordonnées (lagrangiennes) amont et aval du front :

$$\left\{ \begin{array}{rcl} x_f(t) & = & X(X_{0-}, t) \\ x_f(t) & = & X(X_{0+}, t) \end{array} \right. , \tag{3.3.14}$$

où $x_f(t)$ est la position (eulérienne) du front. En autorisant de plus, au passage du front, des discontinuités pour la vitesse v et la tension σ, le système est contraint par la continuité du débit $Q = HV$ à la traversée du front :

$$q_f(t) \equiv Q(X_{0-}, t) = Q(X_{0+}, t)\,. \tag{3.3.15}$$

La conservation du volume peut être exprimée de façon intégrale, où les bornes de l'intégration 0 et $+\infty$ sont considérées dans le cas d'une perturbation paire :

$$\int_0^{+\infty} (h(x,t) - 1)\mathrm{d}x = \int_0^{+\infty} (H(X_0,t) - 1)\,\partial_{X_0} X \mathrm{d}X_0 = 0\,. \tag{3.3.16}$$

Avant le choc, la simplification $H\partial_{X_0} X = 1$ (3.3.6) est applicable sans précaution. Elle assure en particulier la conservation de la matière sous forme intégrale (3.3.16), dès lors que la fonction (impaire par (3.3.8d)) $X(X_0, t)$ vaut X_0 en l'infini :

$$0 = \left[X_0 - X\right]_0^{+\infty}\,. \tag{3.3.17}$$

Après le choc en revanche, l'intégration est scindée en deux intervalles $[0, X_{0-}]$ et $[X_{0+}, +\infty]$. L'application brutale de la même simplification conduirait à résoudre l'équation :

$$0 = \left[X_0 - X\right]_0^{X_{0-}} + \left[X_0 - X\right]_{X_{0+}}^{+\infty}\,. \tag{3.3.18}$$

D'après la définition de x_f (3.3.14), les termes correspondant $X(X_{0-}, t)$ et $X(X_{0+}, t)$ se compensent et la conservation de la matière est réduite à :

$$X_{0-} = X_{0+}\,, \tag{3.3.19}$$

qui contredit l'idée même de choc. Du fait de la perte de continuité en X_0, la simplification (3.3.6) n'est pas valable telle quelle et nécessiterait pour être appliquée quelques précautions.

À la manière de Taylor-Culick

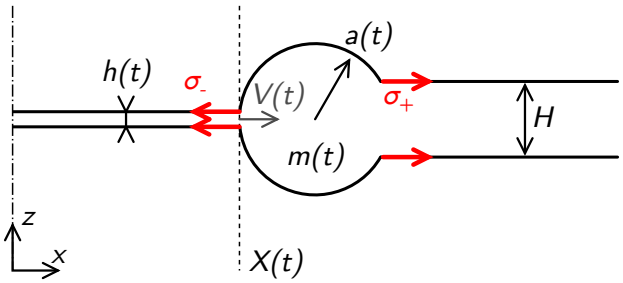

FIGURE 3.19 – Choc de tension de surface.

Le choc est alternativement modélisé dans l'esprit de la démonstration de la formule de Taylor-Culick (0.3). Le film, d'épaisseur constante et uniforme H, est creusé sur une pellicule de taille $X(t)$, d'épaisseur supposée uniforme et *a priori* décroissante avec le temps $h(t)$. Sous l'hypothèse d'invariance selon l'une des deux directions du plan du film, prenons y, le liquide issu de la pellicule se rassemble en un bourrelet cylindrique de masse $m(t)$ par unité de longueur (figure 3.19). Le bourrelet est alimenté de part et d'autre, par le film au repos sur lequel il progresse comme par l'écoulement interstitiel $V(t) = v(x = X, t)$ dans le film central :

$$\dot{m} = \rho h(V - \dot{X}) + \rho H \dot{X}\,. \tag{3.3.20}$$

La masse totale de la pellicule et du bourrelet est également conservée :

$$\dot{m} + \rho \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}(Xh) = 0\,. \tag{3.3.21}$$

Le bourrelet est enfin soumis de part et d'autres aux tensions respectives σ_- et σ_+ exercée par la pellicule et le film au repos :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\left(m\dot{X}\right) = 2(\sigma_+ - \sigma_-) + \rho h(V - \dot{X})V\,, \tag{3.3.22}$$

$$\text{soit} \qquad m\ddot{X} = 2\Delta\sigma + \rho h(V - \dot{X})^2 - \rho H \dot{X}^2\,, \tag{3.3.23}$$

avec $\Delta\sigma = \sigma_+ - \sigma_-$. L'hypothèse d'un champ de vitesse interstitielle simple dans la pellicule centrale, par exemple $v(x,t) = V(t)x/X(t)$, devrait permettre une discussion autour du choc, en particulier sur l'évolution temporelle du débit sortant de la pellicule. Toutefois, ce modèle simplifié ne prend pas en compte la présence cruciale du minimum d'épaisseur en bordure du bourrelet. S'il permet d'expliquer la dynamique du bourrelet, par des arguments similaires à ceux de TAYLOR, 1959b ; CULICK, 1960, l'évidence théorique de la rupture ne pourra provenir que du couplage de l'écoulement au pied du bourrelet avec l'état de la surface, que propose KITAVTSEV, FONTELOS et EGGERS, 2018.

Conclusion

L'exploration expérimentale et théorique des temps ultérieurs de la déstabilisation Marangoni d'un film, jusqu'à la rupture, a débouché sur deux conclusions. S'en trouve renforcée la conviction du chapitre précédent quant à l'ineptie des forces de van der Walls pour expliquer son déclenchement. Premièrement, un film d'eau (d'épaisseur typique 100 µm) dans lequel est incorporé une goutte d'éthanol suffisamment grosse perce certainement. Deuxièmement, l'épaisseur à la rupture, de l'ordre de 1 µm, est sensiblement *homogène* sur une vaste région, de sorte que l'annulation de l'épaisseur ne peut se faire qu'en un temps extrêmement court (quelques µs), sur une zone extrêmement petite (tout au plus quelques dizains de microns).

Le mystère de la rupture n'est donc pas résolu à ce stade. Il est toutefois établi que la déstabilisation Marangoni initiale génère un écoulement interstitiel intense. L'établissement d'un bourrelet et son alimentation plus rapide que la propagation d'ondes capillaires, la structure de choc en sont des conséquences remarquables. Un mécanisme en quatre étapes (déstabilisation, établissement d'un choc, succion localisée, rupture homogène de la pellicule centrale) est proposé, bien que demeurent de multiples inconnues, en particulier en ce qui concerne l'étape cruciale de la succion, terminée par l'annulation de l'épaisseur. La déstabilisation suffit-elle, en particulier, à générer un écoulement suffisamment intense pour déclencher un mécanisme de succion *à la Bernoulli*, comme invitent à le croire BURTON et TABOREK, 2007 ? Ou, plus catastrophique encore, la différence de tension de surface est-elle maintenue tout au long de l'amincissiment central, alimentant un débit de part et d'autre du « choc » ? Si une investigation plus poussée (taux d'acquisition, calibration, résolution) selon un protocole similaire permettrait de gagner quelques points, il est peu probable que la légère amélioration parvienne, en l'état, à résoudre entièrement la question.

Références

ADLER, J. & SOWERBY, L. (1970). Shallow Three-Dimensional Flows with Variable Surface Tension. *J. Fluid Mech. 42*, 549-559.

BÉNARD, H. (1901). Les tourbillons cellulaires dans une nappe liquide transportant de la chaleur par convection en régime permanent. *Ann. Chim. Phys. 23*, 62-144.

BERG, J. C., BOUDART, M. & ACRIVOS, A. (1966). Natural convection in pools of evaporating liquids. *J. Fluid Mech. 24*(4), 721-735.

BOWEN, M. & TILLEY, B. S. (2013). On Self-Similar Thermal Rupture of Thin Liquid Sheets. *Phys. Fluids*, *25*(102105).

BURTON, J. C. & TABOREK, P. (2007). Two-dimensional inviscid pinch-off : An example of self-similarity of the second kind. *Phys. Fluids*, *19*(10), 102109.

CRASTER, R. V. & MATAR, O. K. (2009). Dynamics and stability of thin liquid films. *Rev. Mod. Phys. 81*(3), 1131-1198.

CULICK, F. E. C. (1960). Comments on a Ruptured Soap Film. *J. Appl. Phys. 31*, 1128-1129.

EGGERS, J. (1997). Nonlinear Dynamics and Breakup of Free-Surface Flows. *Rev. Mod. Phys. 69*(3), 865-930.

EGGERS, J. & DUPONT, T. F. (1994). Drop Formation in a One-Dimensional Approximation of the Navier–Stokes Equation. *J. Fluid Mech. 262*, 205-221.

ERNEUX, T. & DAVIS, S. H. (1993). Nonlinear Rupture of Free Films. *Phys. Fluids A*, *5*(5), 1117-1122.

FONTELOS, M. A., KITAVTSEV, G. & TARANETS, R. M. (2018). Asymptotic decay and non-rupture of viscous sheets. *Z. Angew. Math. Phys. 69*(3), 79.

FONTELOS, M. A. & VELÁZQUEZ, J. J. L. (1999). On Some Breakup and Singularity Formation Mechanisms for Inviscid Liquid Jets. *SIAM J. Appl. Math. 59*(6), 2274-2300.

HUGONIOT, H. (1889). Mémoire Sur La Propagation Du Mouvement Dans Les Corps et Spécialement Dans Les Gaz Parfaits. Deuxième Partie. *Journal de l'École Polytechnique*, *58*, 1-125.

KITAVTSEV, G., FONTELOS, M. A. & EGGERS, J. (2018). Thermal rupture of a free liquid sheet. *J. Fluid Mech. 840*, 555-578.

LEVICH, V. G. (1962). *Physicochemical Hydrodynamics* (2nd ed.). Prentice-Hall.

LEWIS, J. B. & PRATT, H. R. C. (1953). Oscillating Droplets. *Nature*, *171*(4365), 1155-1156.

LHUISSIER, H. (2017). Perçage d'un film résultant d'une inhomogénéité de solvant. Communication privée.

MARANGONI, C. (1865). *Sull'espansione delle goccie d'un liquido galleggianti sulla superfice di altro liquido* (Università di Pavia, Pavia).

MATAR, O. K. & CRASTER, R. V. (2001). Models for Marangoni drying. *Phys. Fluids*, *13*(7), 1869-1883.

MURDOCH, R. & PRATT, H. R. C. (1953). Liquid-Liquid Extraction : Part VIII. The Extraction of Uranyl in a Wetted Wall Column. *Trans. Inst. Chem. Eng. 31*, 307-326.

NIELD, D. A. (1964). Surface tension and buoyancy effects in cellular convection. *J. Fluid Mech. 19*(3), 341-352.

ORON, A., DAVIS, S. H. & BANKOFF, S. G. (1997). Long-Scale Evolution of Thin Liquid Films. *Rev. Mod. Phys. 69*(3), 931.

PEARSON, J. R. A. (1958). On Convection Cells Induced by Surface Tension. *J. Fluid Mech. 4*(5), 489-500.

POULAIN, S., VILLERMAUX, E. & BOUROUIBA, L. (2018). Ageing and burst of surface bubbles. *J. Fluid Mech. 851*, 636-671.

RANKINE, W. J. M. (1870). On the Thermodynamic Theory of Waves of Finite Longitudinal Disturbance. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. 160*, 277-288.

RENARDY, M. (1994). Some comments on the surface-tension driven break-up (or the lack of it) of viscoelastic jets. *J. Non-Newton. Fluid Mech. 51*(1), 97-107.

SANTIAGO-ROSANNE, M., VIGNES-ADLER, M. & VELARDE, M. G. (1997). Dissolution of a Drop on a Liquid Surface Leading to Surface Waves and Interfacial Turbulence. *J. Colloid Interface Sci. 191*, 65-80.

SCRIVEN, L. E. & STERNLING, C. V. (1960). The Marangoni Effects. *Nature*, *187*(4733), 186-188.

SHERWOOD, T. & WEI, J. (1957). Interfacial Phenomena in Liquid Extraction. *Ind. Eng. Chem. 49*(6), 1030-1034.

TAYLOR, G. I. (1959a). The Dynamics of Thin Sheets of Fluid. II. Waves on Fluid Sheets. *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, *253*(1274), 296-312.

TAYLOR, G. I. (1959b). The Dynamics of Thin Sheets of Fluid. III. Disintegration of Fluid Sheets. *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, *253*, 313-321.

THOMSON, J. (1855). On Certain Curious Motion Observable at the Surface of Wine and Other Alcoholic Liquors. *Phil. Mag. 10*(4), 330-333.

TILLEY, B. S. & BOWEN, M. (2005). Thermocapillary control of rupture in thin viscous fluid sheets. *J. Fluid Mech. 541*, 399-408.

TROUTON, F. T. (1906). On the Coefficient of Viscous Traction and Its Relation to That of Viscosity. *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, *77*(519), 426-440.

VERNAY, C., RAMOS, L. & LIGOURE, C. (2015a). Bursting of Dilute Emulsion-Based Liquid Sheets Driven by a Marangoni Effect. *Phys. Rev. Lett. 115*(198302).

VERNAY, C., RAMOS, L. & LIGOURE, C. (2015b). Free Radially Expanding Liquid Sheet in Air : Time- and Space-Resolved Measurement of the Thickness Field. *J. Fluid Mech. 764*, 428-444.

ÉTHANOL

Danger

- H225 - Liquide et vapeurs très inflammables

Les conseils de prudence P sont sélectionnés selon les critères de l'annexe 1 du réglement CE n° 1272/2008.
202-578-6

Chapitre 4

Collision et fragmentation de cylindres liquides

Introduction

Splashes, bursting, drops impact, binary collision, effervescent atomization, jetting, ejecta sheet, corona, crown, etc. : la diversité des qualificatifs utilisés dans l'étude des collisions de gouttes pourrait suffire à illustrer l'intérêt porté, depuis les travaux de WORTHINGTON, 1876, à ce processus élémentaire de fragmentation liquide. Elle donne aussi à voir, de manière plus prosaïque, les très nombreuses tentatives, approches et variations expérimentales, numériques et théoriques menées pour tenter de comprendre des mécanismes aux contours parfois encore flous. La littérature ayant trait au sujet est donc en toute logique foisonnante et couvre des domaines tout aussi divers, de sujets industriels (impression, combustion de fuel) aux sciences atmosphérique (physique des nuages et de la pluie), en passant entre de multiples autres par la physico-chimie des surfaces (mouillage).

L'expérience originelle, l'impact d'une goutte d'eau chutant sur une plaque, est pourtant des plus simples et facilement réalisable, dont les motifs résultant sont décrits avec une grande précision dès WORTHINGTON, 1876, 1877. Mais il faut attendre la démocratisation de la photographie (WORTHINGTON, 1908) puis du flash (EDGERTON & KILLIAN, 1939) pour voir apparaitre les premières images *in situ* de la collision et documenter une riche diversité de comportements. Bien que les images deviennent rapidement icônes, et ouvrent la voie à des études quantitatives, le phénomène conserve aujourd'hui encore, à travers sa dépendance en de multiples facteurs, toute sa fascinante complexité. Il serait vain dans le cadre d'une introduction de chapitre de thèse, de prétendre à l'exhaustivité quand les articles de revues, qui jalonnent l'histoire du domaine, peuvent aider à se frayer un chemin dans l'abondante littérature. En conservant la géométrie initiale d'un impact de goutte sur une surface solide, par exemple (JOSSERAND & THORODDSEN, 2016), différents comportements (éclaboussures, étalement, rétraction, etc.) émergent de variations des propriétés de l'impact (vitesse, tailles), mais aussi de celles du liquide (masse volumique, tension de surface, viscosité), du substrat (état de la surface, rugosité), et du couple précédent, englobé dans la notion de mouillage. Une découverte récente sur le rôle du milieu environnant (composition, pression, XU, ZHANG et NAGEL, 2005) suggère même de nouveaux axes de recherche.

L'impact d'une goutte sur une surface liquide, qui affranchit l'analyse de l'étude des interactions avec le substrat solide, présente également des comportements singuliers (YARIN, 2006) : émergence, dans les premiers instants après la collision, d'une fine nappe

(*ejecta sheet*, THORODDSEN, 2002), voire de jets (*jetting*, THORODDSEN, ETOH, TAKEHARA et TAKANO, 2004), croissance d'une corolle aux temps plus longs (*corona, crown*, LEVIN et HOBBS, 1971 ; YARIN et WEISS, 1995 ; RIOBOO, TROPEA et MARENGO, 2001). Cette configuration, à rapprocher du problème du plongeon d'un corps solide dans un bain (COINTE & ARMAND, 1987 ; PHILIPPI, LAGRÉE & ANTKOWIAK, 2016), permet néanmoins, à la place de mesures de force d'impact, grandeur intégrale (L. GORDILLO, SUN & CHENG, 2018), de relever directement les pressions d'impact (KOROBKIN & PUKHNACHOV, 1988 ; LESSER & FIELD, 1983 ; COOKER & PEREGRINE, 1995).

La situation gagne encore en simplicité une fois exprimée sa version symétrique, la collision binaire de gouttes (RYLEY & BENNETT-COWELL, 1967 ; BRAZIER-SMITH, JENNINGS & LATHAM, 1972 ; ASHGRIZ & POO, 1990). L'angle de vue change ici légèrement, pour tenter de remonter, à partir d'une compréhension microscopique des collisions, à une description complète des fragments liquides dans une assemblée de gouttes (LOW & LIST, 1982a, 1982b ; VILLERMAUX, 2007). Toutefois, même en se limitant à des impacts inertiels, pour lesquels la viscosité et la gravité sont négligées, les comportements répertoriés demeurent nombreux, et pas encore tous compris. Les vitesses élevées, la petite taille des objets à l'étude, et donc leur grande courbure, ainsi que leur nombre, font à la fois l'originalité de ce domaine et le triple défi expérimental, numérique et théorique. Pour des objets petits devant la longueur capillaire $\ell_c = \sqrt{\sigma/\rho g}$ (2.7 mm pour l'eau), ou de manière équivalente pour des petits nombres de Bond $Bo = \rho g a^2/\sigma \ll 1$, la gravité est écartée du problème. Inertie et capillarité se conjuguent alors pour donner un temps caractéristique τ_C variant rapidement avec leur taille a :

$$\tau_C = \sqrt{\frac{\rho a^3}{\sigma}}. \tag{4.0.1}$$

Une taille typique de 100 µm, par exemple, se traduit par un temps d'évolution capillaire $\tau_C = 100$ µs, justifiant le recours aux méthodes de visualisation rapide.

Nous nous intéressons en fin de compte à la collision entre deux cylindres liquides, médiée par un film interstitiel. La configuration peut paraître, en premier lieu, une simple variation géométrique des collisions de gouttes. Réduire le problème à cela serait néanmoins manquer le caractère instable inhérent à la topologie columnaire, génératrice de gouttes — car il est ensuite question dans ce chapitre de fragmentation des films minces. Cette situation offre enfin, grâce aux dispositifs expérimentaux utilisés, des nouvelles perspectives d'observation et de mesures, et éclaire en retour ce thème majeur de la fragmentation liquide.

4.1 Expériences

La collision de deux cylindres liquides est étudiée expérimentalement, grâce à trois dispositifs expérimentaux spécifiquement développés, assortis de leurs méthodes d'analyse. Ils tendent ensemble vers une vision globale du problème. Les paramètres physiques de la collision, médiée par un film interstitiel et essentiellement décrite par un nombre de Weber, sont définis sur une expérience qualifiée de modèle. Les paramètres sont ensuite étendus aux deux montages suivants, complémentaires, dont les caractéristiques permettent une étude fine à la fois de la dynamique de collision, présentée partie 4.2, et de la fragmentation qui s'ensuit (partie 4.3).

4.1.1 Nombre(s) de Weber

Hors gravité, la collision entre deux gouttes, ou de manière équivalente entre deux cylindres liquides, est caractérisée par les effets de viscosité, d'inertie et de capillarité. Leurs importances relatives sont quantifiées par deux nombres sans dimensions :

— le nombre de Weber We compare inertie et capillarité ;

— le nombre d'Ohnesorge Oh compare viscosité et capillarité.

Dans le cas d'un liquide de faible viscosité η, telle l'eau que nous utilisons en premier chef, et pour des objets dont la taille a va de la dizaine de microns au millimètre, $Oh = \eta/\sqrt{\rho\sigma a} \ll 1$: la capillarité l'emporte sur la viscosité. Nous pouvons négliger cette dernière pour nous concentrer sur l'étude d'impacts en fonction du seul nombre de Weber. Si la collision est caractérisée par la vitesse relative $2V$ entre les deux cylindres et a leur rayon à l'impact — que nous supposons symétrique —, le nombre de Weber s'écrit :

$$We = \frac{\rho(2V)^2 2a}{\sigma}, \tag{4.1.1}$$

où ρ et σ sont respectivement la masse volumique et la tension de surface du liquide constitutif des cylindres.

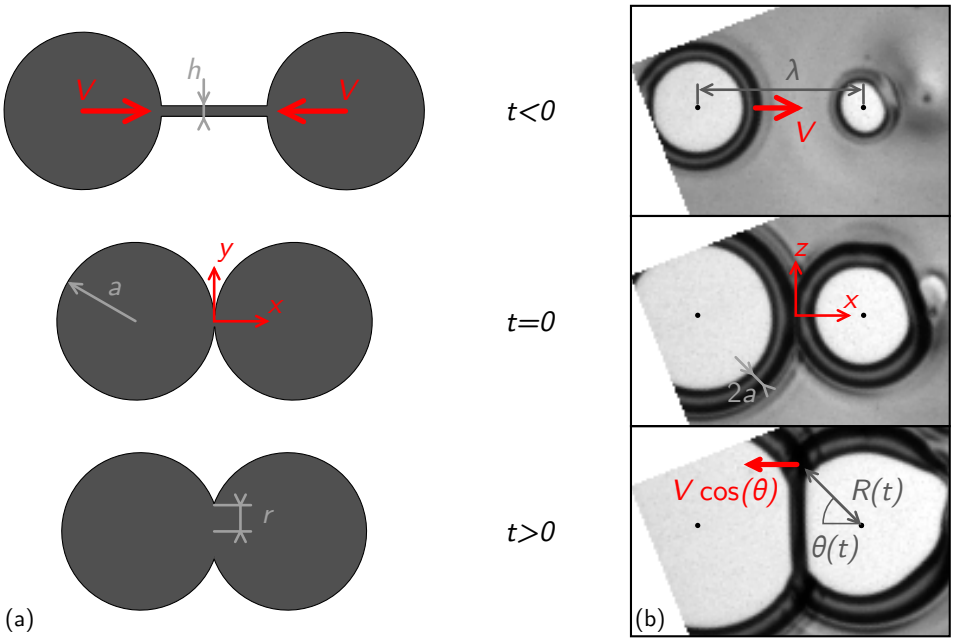

FIGURE 4.1 – Collision de deux cylindres liquides. (a) Dynamique initiale, dans le plan Oxy pour le cas idéal de deux cylindres infinis dans la direction z. (b) Réalisation expérimentale ($We = 18$) observée en rétroéclairage dans le plan Oxz du film. Ce dernier est coloré par une encre, qui rend plus sombres les grandes épaisseurs. Les images sont séparées de 150 µs et larges de 2.4 mm.

De façon plus précise, en nous donnant un repère orthonormé direct $Oxyz$, on considère deux cylindres liquides, infinis dans la direction z, reliés entre eux par un film d'épaisseur h (voir figure 4.1a). La situation est évidemment hors d'équilibre, les deux cylindres se déplaçant l'un vers l'autre à la vitesse individuelle dérivée par TAYLOR, 1959 ;

CULICK, 1960 $V = V_{TC} = \sqrt{2\sigma/\rho h}$, portée ici par la direction x. L'instant $t = 0$ définit la collision entre les cylindres, dont le rayon est alors a, substantiellement plus grand que h. Le nombre de Weber se simplifie en un rapport des tailles mises en jeu :

$$We = \frac{\rho(2V_{TC})^2 2a}{\sigma} = 16\,\frac{a}{h}. \tag{4.1.2}$$

Expérimentalement, la collision est réalisée entre deux tores liquides, résultats de l'ouverture simultanée de deux trous dans le film (voir figure 4.1b). Si λ est la distance séparant les deux points de nucléation, à la collision chaque tore a collecté un volume $2\pi^2 a^2\lambda/2 = \pi(\lambda/2)^2 h$, d'où on tire une seconde expression géométrique pour le nombre de Weber :

$$We_0 = \frac{8}{\sqrt{\pi}}\sqrt{\frac{\lambda}{h}}\,. \tag{4.1.3}$$

Enfin, là où l'impact binaire de gouttes exhibe un axe et un plan de symétrie, la collision de deux cylindres présente trois plans de symétrie, orthogonaux les uns par rapport aux autres. Selon le repère orthonormé défini précédemment, il s'agit, et les symétries sont valables *a priori* à tout instant précédant comme suivant la collision, 1. du plan médian du film liquide Oxz (figure 4.1b), 2. du plan orthogonal au film passant par l'axe Oz des cylindres Oyz (figure 4.2), et 3. de tout plan xy de coupe des cylindres (ou dans le cas de bourrelets toroïdaux, le plan Oxy de coupe passant par les centres des trous, figure 4.1a). L'observation du dernier plan étant expérimentalement astucieuse, les efforts ont été portés sur les deux premiers plans de symétrie.

Correction toroïdale

Tout en introduisant λ, distance entre les deux points de nucléation de trous *circulaires* donnant lieu à des bourrelets *toroïdaux*, nous avons considéré les bourrelets liquides de forme cylindrique, c'est-à-dire infinis selon leur axe z. Si nous tenons à présent compte de leur courbure dans le plan xz du film, la collision n'est pas strictement instantanée. Elle débute à $t = 0$ au milieu du segment reliant les centres des trous ($x = 0, y = 0, z = 0$), puis s'éloigne de part et d'autre sur la médiatrice de ce segment — qui coïncide avec l'axe Oz — à mesure que croissent les trous (voir figure 4.1b). Pour $t \geq 0$, le point de collision se déplace selon $z = R(t)\sin\theta(t)$, où

$$R(t) = V(t + t_c) = \frac{\lambda}{2\cos\theta(t)} \tag{4.1.4}$$

est le rayon du trou et $t_c = \lambda/2V$ l'intervalle de temps entre la rupture du film et la collision initiale. Le volume du tore $2\pi^2 R(t)a(t)^2 = \pi h R(t)^2$ croît en conséquence, à la différence de la composante selon x de la vitesse $V\cos\theta(t)$, seule à considérer dans le calcul de l'inertie. Le nombre de Weber pour la collision est alors modifié :

$$We = \frac{\rho\left(2V\cos\theta(t)\right)^2 2a(t)}{\sigma} = We_0\left(\cos\theta(t)\right)^{3/2} \tag{4.1.5}$$

avec We_0 l'équivalent dérivé ci-dessus (4.1.3). Il est finalement développé à petit angle θ, ou de manière équivalente pour des temps $t \geq 0$ petits devant t_c :

$$\begin{aligned} We &= We_0 \left(1 - \frac{3}{4}\theta^2 + \mathcal{O}\left(\theta^4\right)\right) \\ &= We_0 \left(1 - \frac{3}{2}\frac{t}{t_c} + \mathcal{O}\left(\left(\frac{t}{t_c}\right)^2\right)\right) \\ We \sim We_0 &= \frac{8}{\sqrt{\pi}}\sqrt{\frac{\lambda}{h}}. \end{aligned} \tag{4.1.6}$$

Le temps typique de la collision étant a/V, la validité de l'approximation des tores par des cylindres infinis se résume à la condition $a/Vt_c = 2a/\lambda \ll 1$, bien vérifiée expérimentalement, même à petit nombre de Weber.

Dispositif expérimental

Sans ajout de surfactant, un film liquide possède un temps de vie de l'ordre de la seconde — durée dont l'expérience peut être faite quotidiennement avec l'eau. La description précédente d'un film statique est donc déjà mise à mal par une expérience qui semble impossible à mettre en œuvre. L'apparente difficulté, sinon impossibilité, est contournée en considérant des temps d'évolution plus long que ceux des dynamiques à l'étude. Un premier dispositif expérimental tire profit de la rapidité des échelles de rupture et de collision, pour s'approcher au plus près de la description statique : un film intégralement suspendu est créé par la traction d'un cadre hors d'un bain liquide et l'entrainement vertical du liquide. Dans le même temps est projeté sur le film un nuage de gouttelettes d'un liquide différent, créé par un dispositif brumisateur ou spray, dont le rôle est de nucléer des trous (les dynamiques de déstabilisation et de rupture font l'objet des chapitres 2 et 3, où est décrit le dispositif, voir figure 3.1). Une fois percé, le film peut alors s'ouvrir circulairement à la vitesse constante de Taylor-Culick, à partir de multiples centres. Pour des films d'eau de quelques dizaines, voire centaines, de microns d'épaisseur, cette vitesse atteint des valeurs de quelques m s^{-1}, plus élevées que la vitesse de traction du film hors du bain, typiquement 10 cm s^{-1} : le film est considéré statique et d'épaisseur constante le temps qui sépare les ouvertures des trous de la collision des cylindres.

L'ouverture des trous et les collisions qui s'ensuivent dépendent directement du spray utilisé, de la façon dont est propulsé le nuage sur le film, de la distance de projection, ainsi que d'effets collectifs dans le spray : à notre niveau, les points d'arrivée des nombreuses gouttelettes sur le film constituent une variable aléatoire. Tout du moins, les distances initiales λ entre les trous, donnant directement accès au nombre de Weber caractérisant chaque collision (4.1.3), ne sont pas contrôlables initialement. La détermination des paramètres de collision se fait donc *a posteriori*, lors du traitement informatique des images. La reproductibilité pour ce dispositif expérimental doit alors être bien comprise en termes statistiques.

Cette méthode, destructive et nécessitant un grand nombre de répétitions des événements de brumisation, permet l'exploration de petits nombres de Weber. Bien qu'elle soit d'une simplicité didactique, illustrant l'expérience de collision à faible *We* à merveille, elle échoue dans la production d'impacts plus violents, pour lesquels deux autres dispositifs sont utilisés.

Correction asynchrone

Le perçage aléatoire du film, par nature, donne lieu à des ruptures asynchrones. Séparées d'un intervalle de temps Δt, deux ruptures initiales se traduisent en une collision des deux cylindres asymétrique : celui résultant du premier trou à avoir percé a collecté, à la collision, plus de liquide que le second, son rayon a_1 est plus grand que a_2. Il suffit de considérer l'impact d'une goutte de rayon a_2 sur une surface liquide, cas limite où a_1 serait infiniment plus grand que a_2, pour se convaincre d'utiliser a_2, rayon du plus petit cylindre à la collision, dans le calcul du nombre de Weber :

$$a_2 = \sqrt{\frac{hV}{4\pi}\left(1 - \frac{V\Delta t}{\lambda}\right)} = \sqrt{\frac{\lambda h}{4\pi}}\left(1 - \frac{V\Delta t}{2\lambda} + \mathcal{O}\left(\frac{V\Delta t}{\lambda}\right)\right). \tag{4.1.7}$$

La correction pour le nombre de Weber sera donc du premier ordre en $V\Delta t/\lambda$

$$We = \frac{8}{\sqrt{\pi}}\sqrt{\frac{\lambda}{h}}\left(1 - \frac{V\Delta t}{2\lambda}\right). \tag{4.1.8}$$

4.1.2 Rupture contrôlée en nappe de Savart

De même que lors de l'étude de la déstabilisation des films minces (chapitre 2), l'analyse contrôlée de la collision entre deux cylindres liquides est réalisée dans le référentiel en translation d'un film en expansion radiale, d'épaisseur lentement variable : la nappe de Savart — du nom du physicien à l'origine des premières études détaillées sur l'objet (SAVART, 1833). Le film, de symétrie axiale, provient de l'impact et déflection d'un jet de diamètre d sur une surface solide. Le liquide (de l'eau, occasionnellement de l'éthanol) s'écoule radialement, à vitesse constante U, dans un film dont l'épaisseur décroit comme $d^2/8r$, à mesure que la coordonnée radiale r centrée au point d'impact du jet augmente.

De part et d'autre de la nappe sont placés deux couples d'électrodes, distantes l'une de l'autre d'environ 1 mm, reliées à un générateur haute tension et une boîte à décharge. La décharge à la demande d'une haute différence de potentiel dans chaque couple d'électrodes produit un arc électrique dans l'air et à travers la nappe, apportant l'énergie nécessaire à la rupture du film. Les deux trous sont alors advectés radialement avec le liquide, avant de se rencontrer, générant la collision des bourrelets les délimitant (voir figures 4.2 et 4.3a).

La collision est observée en rétro-éclairage, à haute cadence d'acquisition (30 à 50 kHz) et dans le plan Oyz orthogonal au plan du film initial contenant le cylindre résultant de la collision. Le point de vue choisi, inédit à l'aune des études d'impact de gouttes, permet l'étude précise de la dynamique transverse de la collision (réorganisation du liquide, fragmentation).

Nombre de Weber en géométrie de Savart

Si l'expression approchée We_0 (4.1.3) du nombre de Weber convient pour des petites distances entre les électrodes, la divergence radiale de la nappe, tant dans la divergence des lignes de courant que dans la décroissance de l'épaisseur, nécessite les corrections suivantes.

Le repérage dans la nappe de Savart se fait naturellement à l'aide des coordonnées polaires : les couples d'électrodes sont localisés en $(r = r_0, \theta = \pm\theta_0 = \pm\arcsin(\lambda/2r_0))$, la

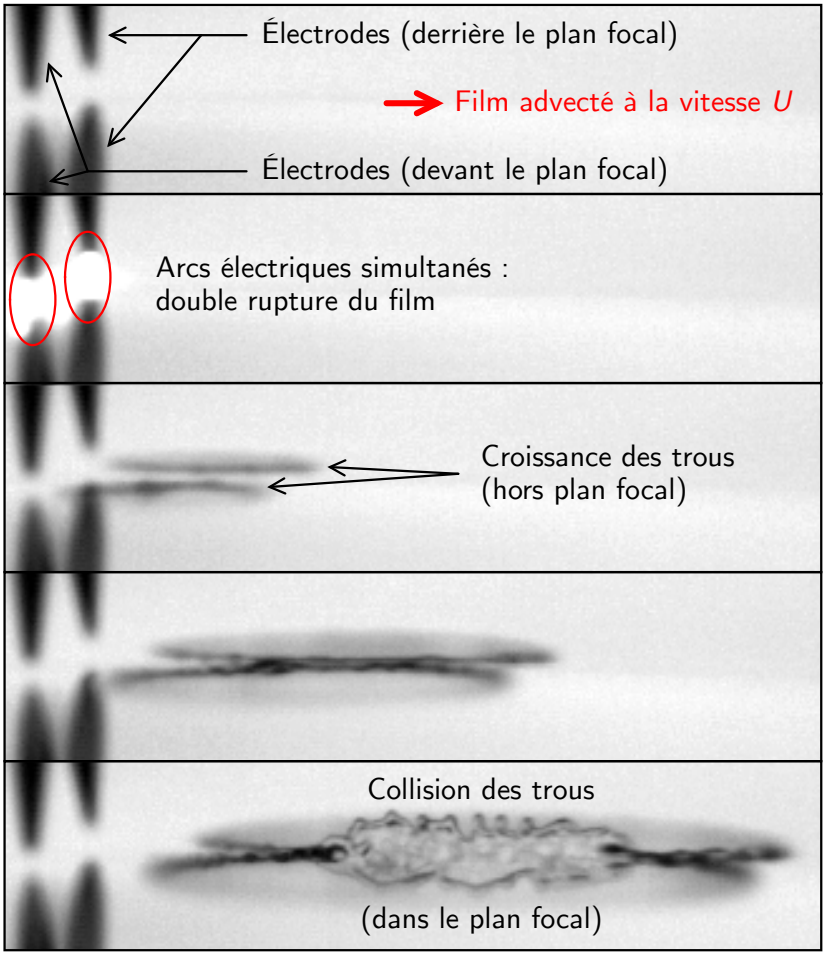

FIGURE 4.2 – Ouverture de trous par application de deux arcs électriques simultanés à travers un film liquide en mouvement. Les images, de largeur 10.2 mm, sont séparées de 0.57 ms. Le plan focal est situé à mi-distance des couples d'électrodes, avec une profondeur de champ faible devant cette distance.

bissectrice définissant ainsi l'origine des angles (voir figure 4.3b). À $t = -t_c$, les deux décharges électriques ouvrent des trous en ces mêmes points. Par symétrie, ces derniers vont se rencontrer en $\theta = 0$ à $t = 0$, à un rayon qu'il convient de déterminer. Si, pour des temps court devant le temps de trajet dans la nappe, les trous s'ouvrent, à une très bonne approximation, circulairement, la variation d'épaisseur dans le film et la divergence radiale des lignes de courant modifient la forme des trous à temps plus long, et *a fortiori* la valeur du nombre de Weber de la collision. La composition des vitesses U, radiale à la nappe, et $V = V_{TC}$, perpendiculaire en tout point au bourrelet délimitant le trou, permet de résoudre, numériquement, cette forme. Cette résolution n'est toutefois pas nécessaire ici : le point du trou qui entrera en collision avec son homologue est, à tout instant $t \in [-t_c, 0]$, tangent à un rayon de la nappe. La composition des vitesses s'écrit donc simplement, pour les coordonnées $(r(t), \pm\theta(t))$ de ce point dans les deux trous :

$$\begin{cases} \dot{r} &= U \\ r(t)\dot{\theta} &= -V(r(t)) \end{cases}, \tag{4.1.9}$$

où $V(r) = V_{TC} = \sqrt{2\sigma/\rho h}$ est dorénavant une fonction de r via la dépendance radiale de l'épaisseur h. La résolution de ce système avec les conditions initiales $(r(-t_c) = r_0, \theta(-t_c) =$

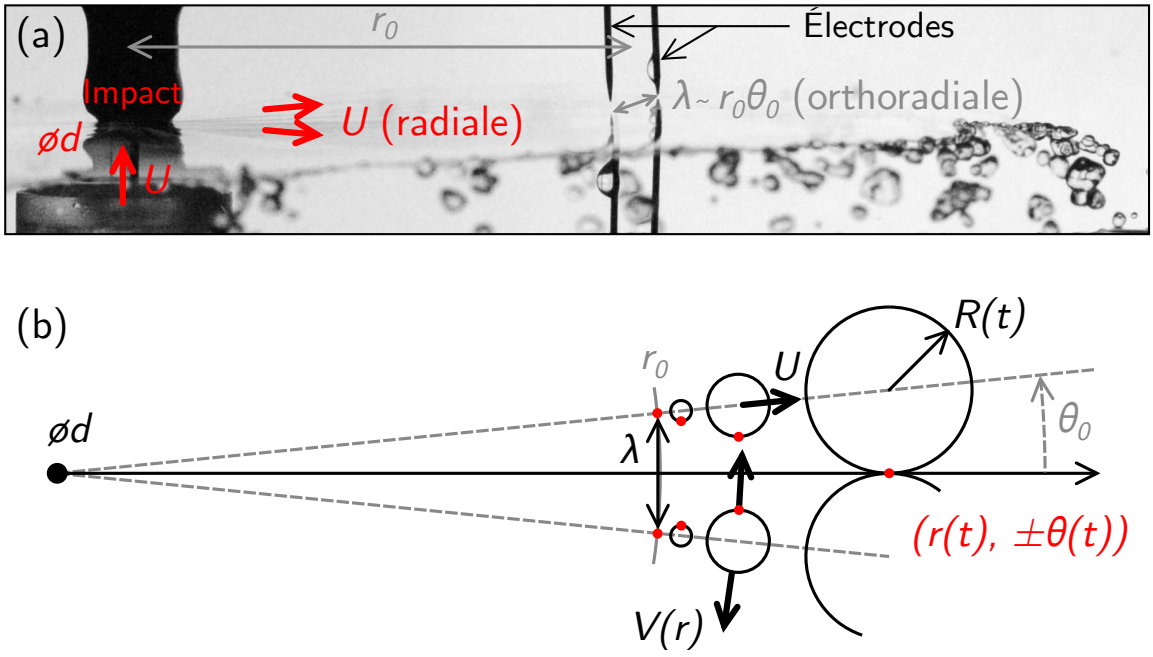

FIGURE 4.3 – Rupture contrôlée d'une nappe de Savart : (a) dispositif expérimental ($d = 3$ mm) et (b) notations.

θ_0) est immédiate :

$$\left\{\begin{array}{rcl} r(t) & = & r_0 + U(t+t_c) \\ \theta(t) & = & \theta_0 - \frac{2V_0}{U}\left(\sqrt{1+\frac{U}{r_0}(t+t_c)} - 1\right) \end{array}\right. , \qquad \text{où } V_0 = V(r=r_0). \tag{4.1.10}$$

La coordonnée orthoradiale $\theta(t)$ décroit avec t jusqu'à s'annuler en $t = 0$, donnant l'expression de t_c l'instant d'ouverture des trous :

$$\frac{U}{r_0}t_c = -1 + \left(1 + \theta_0\frac{U}{2V_0}\right)^2 = \epsilon + \frac{\epsilon^2}{4}, \qquad \text{avec } \epsilon = \theta_0\frac{U}{V_0}. \tag{4.1.11}$$

La vitesse relative d'impact entre les deux tores est alors $2V_c$, où

$$V_c = V(r(0)) = V_0\sqrt{1+\epsilon+\frac{\epsilon^2}{4}}. \tag{4.1.12}$$

Sur son trajet, chacun des bourrelets collecte du liquide dans les deux directions radiale et orthoradiale, sur un substrat d'épaisseur variable. Pour un tore de diamètre $2a(t)$ ouvert selon un rayon $R(t)$, les bilans de masse (4.1.13) et de quantité de mouvement (4.1.14), s'écrivent (voir également VILLERMAUX et BOSSA, 2011) :

$$\pi\rho\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\left(a^2R\right) = \rho h\, R(t)\frac{\mathrm{d}R}{\mathrm{d}t}, \tag{4.1.13}$$

$$\pi\rho\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\left(a^2\, R\frac{\mathrm{d}R}{\mathrm{d}t}\right) = 2\sigma R(t). \tag{4.1.14}$$

L'équation (4.1.13) est intégrée le long de la trajectoire $(r(t), \theta(t))$, avec $R(t) = r(t)(\theta_0 - \theta(t))$, pour obtenir le rayon a_c de chaque bourrelet à la collision (4.1.15). L'expression du nombre de Weber de l'impact dans cette configuration (4.1.16) suit immédiatement.

$$a_c = \sqrt{\frac{h_0 r_0 \theta_0 (24 + 32\epsilon + 9\epsilon^2)}{12\pi(2+\epsilon)^2}} \tag{4.1.15}$$

$$We = \frac{16}{\sqrt{\pi}} (2+\epsilon) \sqrt{1 + \frac{4}{3}\epsilon + \frac{3}{8}\epsilon^2} \, \frac{r_0\sqrt{\theta_0}}{d} \,. \tag{4.1.16}$$

Pour de faibles angles $\theta_0 \sim \lambda/2r_0$ et $U/V_0 = \sqrt{R_{TC}/r_0} = \mathcal{O}(1)$, on retrouve en développant selon $\epsilon \ll 1$ les valeurs de t_c et We dérivées dans le cas de deux trous initialement séparés de la distance λ dans un film d'épaisseur constante $h = h_0 = d^2/8r_0$ (4.1.3) :

$$t_c \sim \frac{\lambda}{2V_0} \tag{4.1.17}$$

$$We \sim 16\sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{\sqrt{\lambda r_0}}{d} = \frac{8}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{\lambda}{h_0}} = We_0 \,. \tag{4.1.18}$$

L'équivalent We_0 (4.1.18) à faible ϵ sous-estime systématiquement la valeur du nombre de Weber (4.1.16). Cette expérience présente l'avantage de l'accès aux deux valeurs du nombre de Weber, exacte et approchée, rassemblées sur la figure 4.4. Considérer We_0 à la place de We, comme cela sera le cas dans le dispositif suivant, où la résolution des équations des bourrelets n'est plus analytiquement et généralement réalisable, pourra conduire à des erreurs relatives importantes sur le nombre de Weber. Dans certains cas de l'expérience présente, pourtant faits à angles θ faibles et nappes de Savart de taille modérée, l'erreur relative peut par exemple dépasser 20 % (voir l'insert de la figure 4.4).

Normalisation

L'expression du nombre de Weber (4.1.16) exhibe une dépendance de la collision en seulement deux paramètres directement accessibles expérimentalement, r_0 et θ_0. Toutefois, pour chaque couple de paramètres, le débit d'eau dans le jet formant la nappe, et donc la vitesse U dans le film, est ajusté de sorte que ce dernier — quelques dizaines de microns d'épaisseur — ne s'accroche pas, le temps des mesures, sur l'une ou l'autre électrode — distantes de 1 mm. Afin de s'affranchir de cette variation, il est nécessaire de reprendre la définition du nombre de Weber We_S pour la nappe, issue elle-même de l'impact d'un jet (vitesse U, diamètre d) sur une surface solide :

$$We_S = \frac{\rho U^2 d}{\sigma} \,. \tag{4.1.19}$$

Il est alors souhaitable de normaliser :

— l'expression du nombre de Weber de la collision (4.1.16) par celui relatif à la nappe (4.1.19) ;

— le rayon d'ouverture du trou r_0 par le rayon d'expansion maximal théorique de la nappe $R_{TC} = dWe_S/16$ (dont l'expression est dérivée à l'introduction) ;

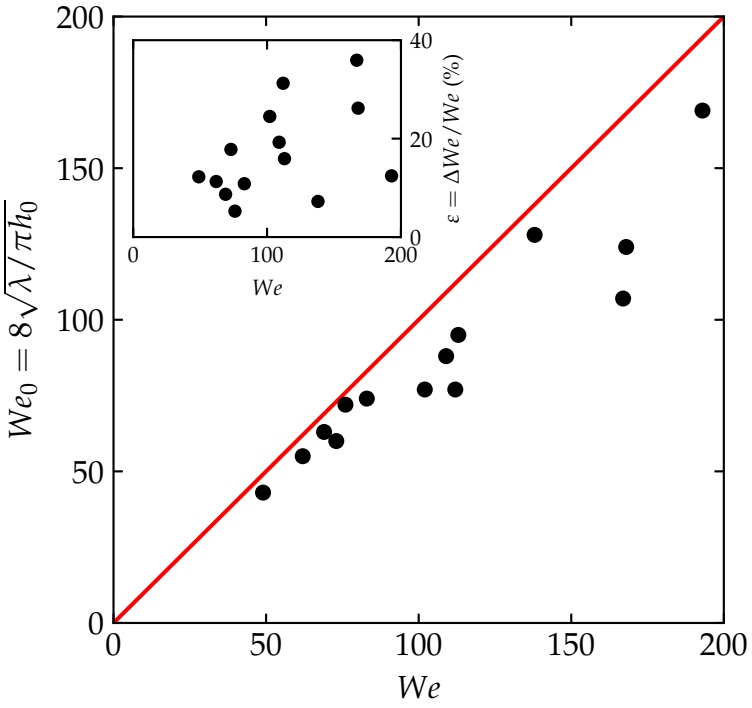

FIGURE 4.4 – Nombre de Weber en géométrie de Savart (4.1.16) et sa valeur approchée We_0 (4.1.18). L'erreur relative $\varepsilon = \Delta We/We = (We - We_0)/We$ est tracée en insert.

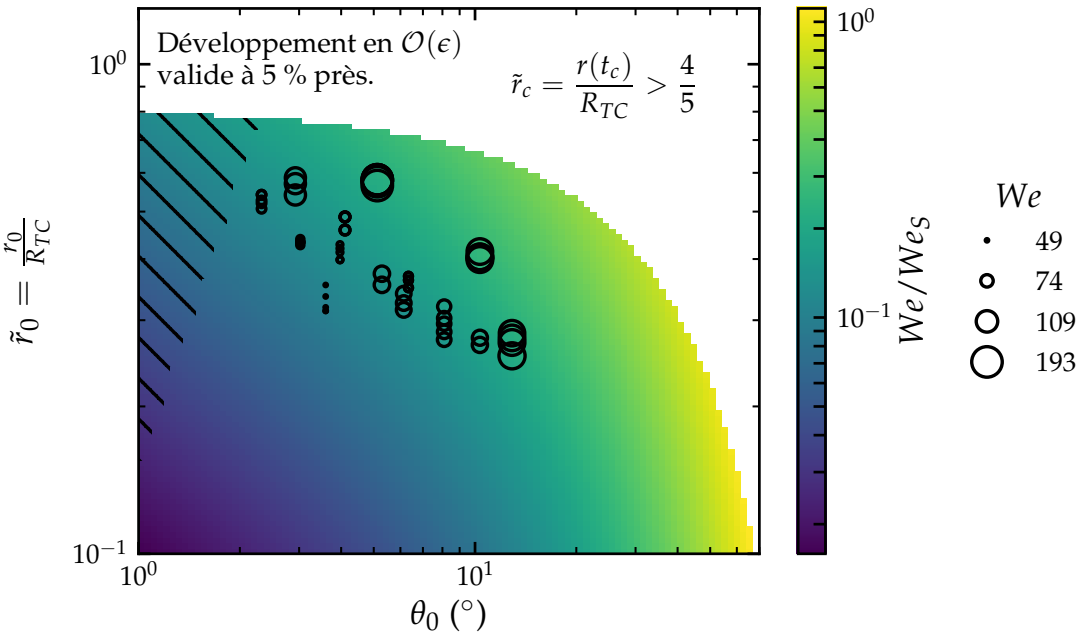

FIGURE 4.5 – Exploration paramétrique du nombre de Weber pour la collision de deux cylindres liquides en géométrie de Savart. Le graphe donne We en valeurs renormalisée par We_S (carte de couleur) et absolue (taille des symboles pour les points expérimentaux), en fonction des paramètres θ_0 et $\tilde{r}_0 = r_0/R_{TC}$. La partie hachurée donne la zone de validité, à 5 % près, du développement (4.1.18). La carte s'arrête à la limite $\tilde{r}_c = 4/5$, au-delà laquelle la continuité de la nappe n'est plus assurée (J. M. GORDILLO, LHUISSIER & VILLERMAUX, 2014).

afin d'obtenir l'expression (4.1.20) pour le nombre de Weber de la collision

$$\frac{We}{We_S} = \frac{2+\epsilon}{\sqrt{\pi}}\sqrt{1+\frac{4}{3}\epsilon+\frac{3}{8}\epsilon^2}\,\tilde{r}_0\sqrt{\theta_0}\,, \qquad \text{avec } \tilde{r}_0 = \frac{r_0}{R_{TC}}. \tag{4.1.20}$$

La figure 4.5 rassemble sur un même graphe l'ensemble des paramètres explorés expérimentalement. On peut notamment y lire que les collisions les plus violentes se feront au mieux pour des nombres de Weber de l'ordre de celui de la nappe de Savart, soit au plus 10^3 si l'on souhaite négliger l'interaction de la nappe avec l'air ambiant (voir CLANET & VILLERMAUX, 2002). Toutefois, les conditions expérimentales sont alors fortement contraintes et difficilement accessibles : l'ouverture des trous doit se faire très proche du point d'impact (faible $\tilde{r}_0$) et à des angles élevés entre les électrodes afin de maximiser la collection de liquide, mais également le trajet des bourrelets, facteur de déstabilisation. Le nombre de Weber maximal atteint expérimentalement est le cinquième de la valeur théorique, pour lequel les cylindres liquides sont déjà corrugués à la collision (voir figure 4.6).

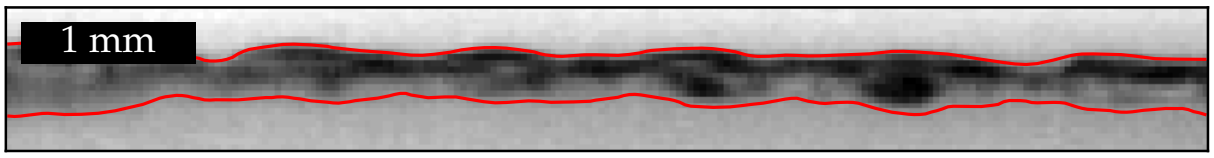

FIGURE 4.6 – Corrugations des cylindres quelques dizaines de microsecondes avant la collision, pour $We = 193$.

Fragments

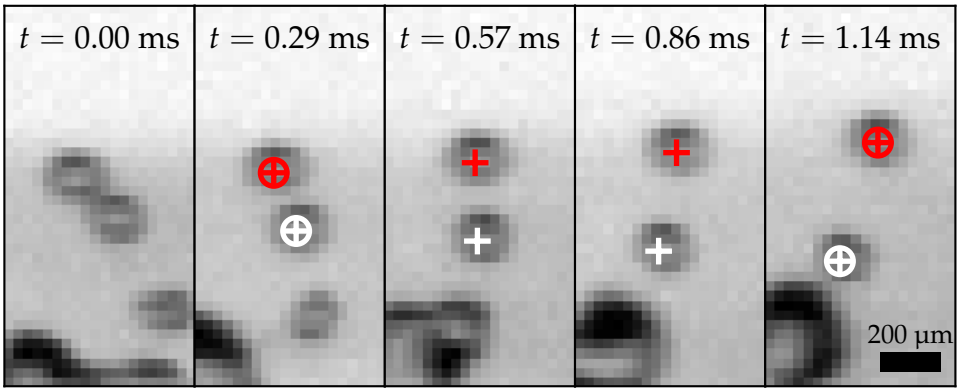

FIGURE 4.7 – Détection et suivi des fragments. La position des gouttes est repérée manuellement aux extrémités visibles de leur trajectoire ($t = 0.29$ ms et $t = 1.14$ ms, $\oplus$), puis interpolée sur une trajectoire ballistique pour les instants intermédiaires ($+$).

Les gouttes issues de la fragmentation sont repérées manuellement et suivies au cours du temps, pour différents événements de collision (un exemple est donné figure 4.7). La résolution en vitesse, un déplacement typique de quelques pixels d'une image à la suivante, nous assure du suivi individuel des fragments. Aux échelles observées, une fenêtre

d'une dizaine de mm de large, leur trajectoire est ballistique et dominée par la vitesse U d'advection de la nappe, horizontale et de valeur typique égale à 4 m s^{-1} (voir figure 4.8a). La détection d'un fragment est ainsi réalisée aux extrémités de sa trajectoire, entre le moment où il se forme et celui où il sort du plan d'observation. La partie intermédiaire de la trajectoire est ensuite déduite par interpolation linéaire, et la vitesse obtenue est donc une valeur moyenne, sur le trajet mesuré. La méthode donne ainsi accès à :

— leur taille, par seuillage et mesure de l'aire,
— leur vitesse, décomposée en ses différentes composantes (nous sommes essentiellement intéressés par la composante verticale).

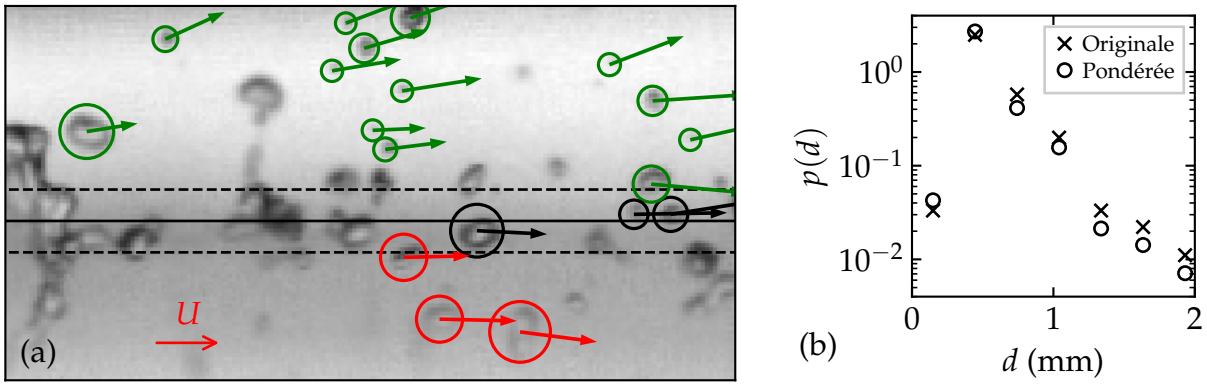

FIGURE 4.8 – Détection et ségrégation des fragments. (a) Les gouttes éjectées dans la partie supérieure au film initial comptent double (vert), celles détectées dans la partie inférieure ne sont pas comptabilisées (rouge). Dans la zone centrale (traits pointillés), de largeur de l'ordre de la taille des cylindres fusionnés (axe en trait plein), les gouttes sont comptées une fois (noir). NB : les gouttes non détectées sur cette image le sont sur une autre de la même séquence. (b) Distributions de tailles de gouttes originale (croix) et pondérée (cercles).

Le point de vue choisi — coïncidence des plans 1. Oxy de réorientation du liquide après la collision et 2. focal, avec un léger angle par-dessus le film initial, voir figure 4.2 — permet d'observer et de documenter précisément la dynamique de la lamelle, de même que la fragmentation. Il rend toutefois compliquée la détection des fragments éjectés en-dessous du film. Cette difficulté est contournée en faisant l'hypothèse raisonnable de la symétrie de la situation par rapport au plan du film initial. On distingue trois zones, en attribuant des poids relatifs aux gouttes, en vue de l'établissement des distributions de tailles de fragments (voir figure 4.8a) :

— la zone inférieure au film, pour laquelle les gouttes détectées se voient attribuer un poids nul ;
— une zone centrale, de largeur sensiblement égale au diamètre des cylindres fusionnés, pour laquelle les gouttes sont comptées de manière unique ;
— la zone supérieure au film, pour laquelle les gouttes détectées (de manière exhaustive) se voient attribuer un poids double.

En moyenne, le poids relatif des petites tailles vis-à-vis des grandes, globalement mieux détectées sur les images, est augmenté par cette pondération (voir figure 4.8b).

Enfin, l'observation, sur une zone fixe et de taille limitée, d'un phénomène advecté à la vitesse U, déjà présentée sur la figure 4.2, échoue à détecter les fragments de très grande taille, ces derniers n'étant pas encore formés qu'ils se trouvent déjà hors du champ de

vision. Cet écueil joue de façon non négligeable sur l'évaluation de la moyenne.

4.1.3 Rupture aléatoire en nappe de Savart

Les principales lacunes des méthodes précédentes (collision de faible intensité, mesure destructive, absence des grandes tailles dans les statistiques de fragments) sont comblées grâce à un montage complémentaire, qui vient en même temps tirer profit des avantages des premiers dispositifs :

1. le choix de la nappe de Savart permet l'établissement d'un film en permanence renouvelé et d'épaisseur contrôlée,
2. *dans* lequel sont introduits des défauts, des bulles incorporées au liquide en amont de l'impact du jet. D'un certain diamètre contrôlé, ces bulles nucléent des trous dans le film autour d'un rayon moyen, trous qui s'étendent et dont les bords se rencontrent (une collision est illustrée figure 4.9a, et voir LHUISSIER, 2011 et LHUISSIER et VILLERMAUX, 2013 pour une description détaillée du montage expérimental). Le cylindre résultant, également advecté, se destabilise ensuite en gouttelettes.
3. Le champ d'observation est cette fois plus large, tant en résolution spatiale qu'en taille absolue d'image — au détriment de la résolution temporelle —, et coïncide avec le plan Oxz du film initial.

Les variabilités angulaire, radiale et temporelle des nucléations engendrent une variabilité sur les paramètres de collision. À nouveau, la méthode choisie empêche *a priori* de contrôler les lieux d'ouverture des trous. La reproductibilité des résultats est donc à comprendre au sens statistique : quelques 280 impacts ont été répertoriés et caractérisés *a posteriori* (épaisseur du film, diamètre du tore à la collision, vitesse d'impact, etc.), puis reliés aux plus de 2600 gouttes créées par ces derniers et individuellement repérées (voir un exemple figure 4.9a).

Collision

La collision de deux tores liquides bordant deux trous est schématisée figure 4.9b. La caractérisation de cette collision se fait aux approximations près et selon le protocole suivants :

— les contours des trous sont détectés automatiquement et ajustés sur des cercles, grâce à une minimisation en moindres carrés non linéaire, de manière à obtenir rayon et centre de chaque trou, à tout temps.

— la croissance du rayon de chaque trou, indexé par $i = 1, 2$, est ajustée sur un polynôme du premier ordre $R_i = V_i(t - t_{0i})$, faisant l'hypothèse d'une épaisseur constante entre son ouverture et la collision. Dans le cas de la détection du contour en un seul instant, l'épaisseur $h = d^2/8r$, et par suite la vitesse $V_i = V_{TC}(h)$, sont évaluées grâce à la position radiale courante r du centre du trou (avec d le diamètre du jet à l'origine de la nappe).

— les trajectoires des centres des deux trous menant à un impact sont ajustées sur des rayons divergents $(r_i = r_{0i} + U(t - t_{0i}), \theta_i = \theta_{0i})$. La collision est l'instant t_c où la distance entre les centres $\sqrt{(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2}|_{t_c}$ est égale au trajet parcouru par chacun des trous $V_1(t_c - t_{01}) + V_2(t_c - t_{02})$, obtenu par minimisation de la fonction adaptée (voir figure 4.9b).

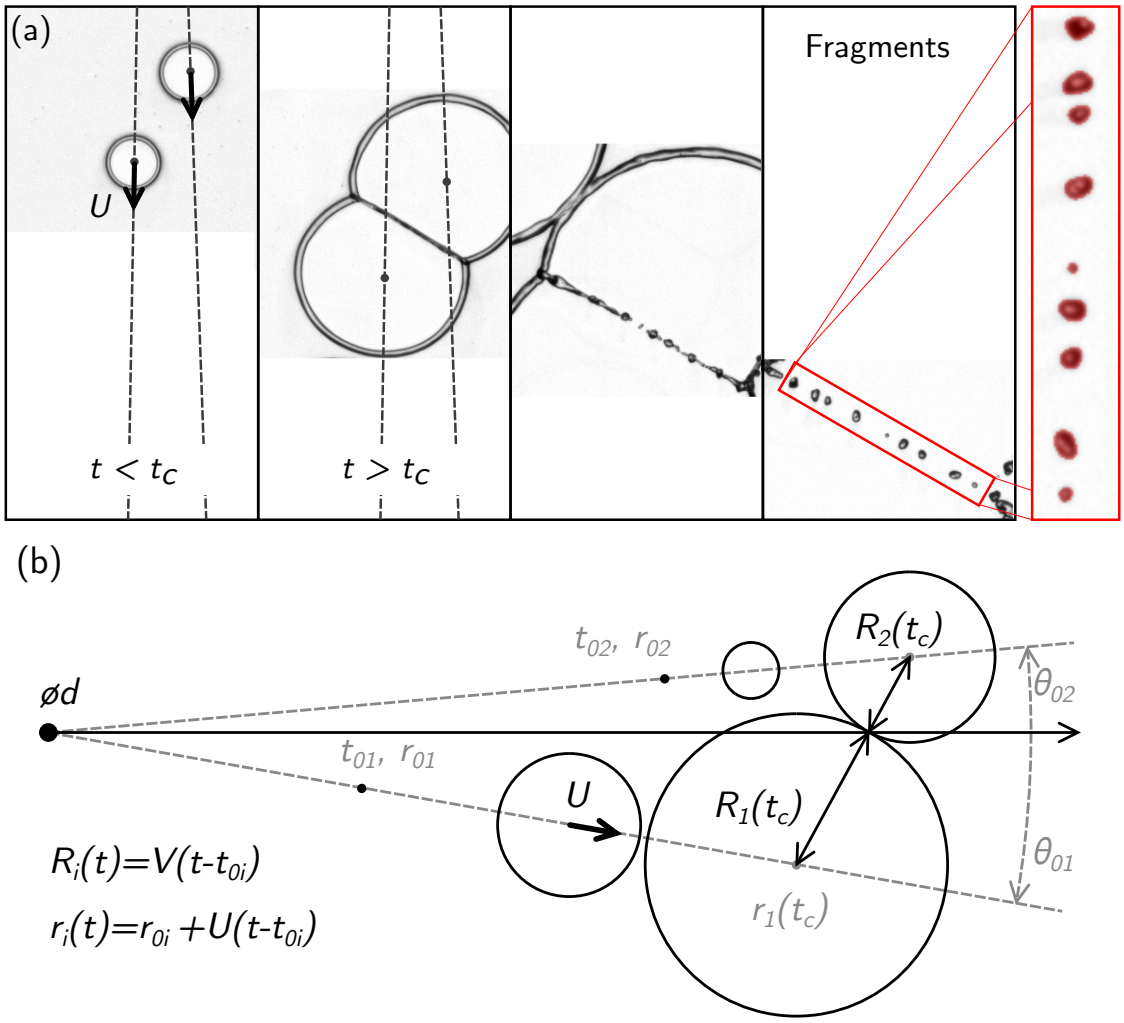

FIGURE 4.9 – Collision de trous nucléés aléatoirement en nappe de Savart, $We = 57$. (a) Illustration par une série temporelle de la croissance des trous ($t < t_c$), leur collision ($t = t_c$) et déstabilisation, puis décompte des fragments ($t > t_c$). Les images sont séparées de 1 ms et ont une largeur égale à 10.2 mm. (b) Schéma de principe et notations utilisées dans le texte.

Une fois les paramètres de la collision déterminés, le nombre de Weber est obtenu par la formule approchée

$$We = \frac{\rho(V_1 + V_2)^2\, 2a_2}{\sigma}, \tag{4.1.21}$$

où, par conservation du volume, $a_2 = \sqrt{R_2 h_2/2\pi}$ est le rayon du *plus petit* des deux cylindres, par le même argument que pour le calcul d'une collision asymétrique (4.1.8).

Fragments

Les contours des gouttes sont ensuite automatiquement détectées par simple seuillage (voir figure 4.9a). La taille de ces fragments est *in fine* calculée comme la racine carrée de l'aire intérieure au contour détecté. La visualisation du plan du film Oxz adoptée dans ce montage ne permet pas de capturer la dynamique transverse de la collision. *A fortiori*, et du fait des faibles profondeur de champ et taux d'acquisition, ce dispositif passe à côté

des dynamiques transverses de gouttes, rapides et de petites tailles comme nous allons voir.

Montages comparés

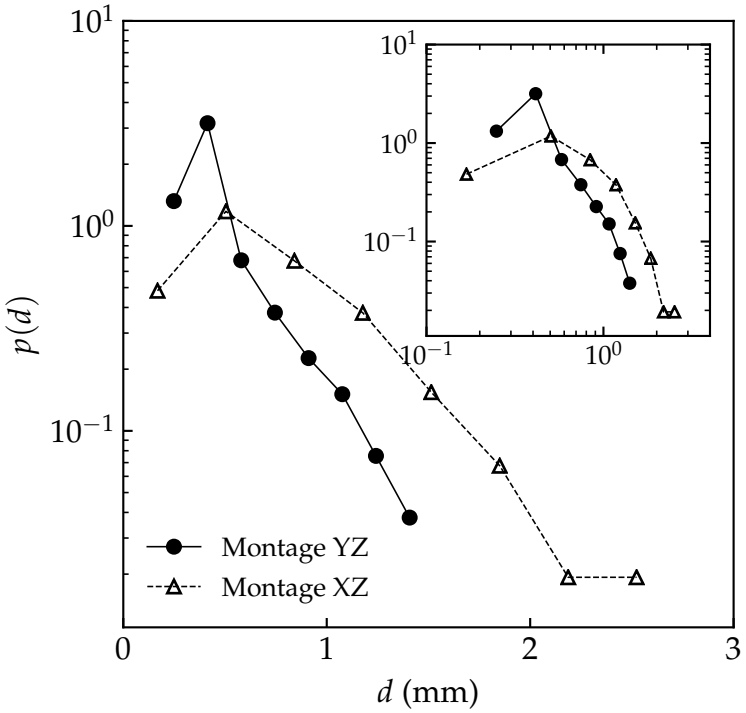

FIGURE 4.10 – Comparaison des montages YZ (•) et XZ (△) par les distributions des tailles de gouttes détectées (We = 128), en abscisse linéaire et logarithmique (insert). Les lignes relient simplement les points.

L'étude proposée de la collision de deux cylindres liquides repose sur deux dispositifs présentant chacun leurs avantages et lacunes, soit dans chaque cas une représentation partielle du phénomène. Ensemble, ils tendent vers une vision globale de la collision. En nommant — YZ le dispositif de rupture contrôlée par arc électrique, — XZ le dispositif de rupture aléatoire par bulles incorporées au liquide, *i.e.* chaque montage par le plan qu'il observe, la remarque vaut tout particulièrement pour l'analyse des tailles de gouttes, mesurées dans les deux cas par des méthodes similaires. Le montage XZ capture la statistique des grandes tailles, là où le dispositif YZ résout les petites tailles en laissant les grandes hors de la fenêtre d'observation. De ce fait, ce dernier sous-estime grossièrement la taille moyenne des fragments, comme on peut le voir sur la figure 4.10.

Finalement, par souci de compatibilité des nombres de Weber entre les différentes expériences et dès lors qu'il faudra, comme précédemment avec les distributions de tailles de gouttes, les comparer, l'expression approchée (4.1.3) sera systématiquement préférée — bien qu'elle tende à sous-évaluer l'intensité de la collision, comme présenté à la figure 4.4.

4.2 Réorganisation à la collision

Forte d'une diversité de points de vue expérimentaux sur un problème simplement posé — la collision supposée non visqueuse de deux cylindres liquides —, l'analyse s'attarde ici sur des aspects essentiels de l'impact, en vue de la compréhension des motifs de fragmentation. Le plan d'observation Oyz, inédit et spécifiquement dégagé, de la direction orthogonale à celle de la collision, s'avère particulièrement pertinent et précis. Le régime de réorganisation transverse est premièrement décrit en termes d'oscillation fortement non linéaire du cylindre fusionné, avant de documenter sa déstabilisation. La transition entre les deux régimes précédents est finalement caractérisée.

4.2.1 Dynamique initiale

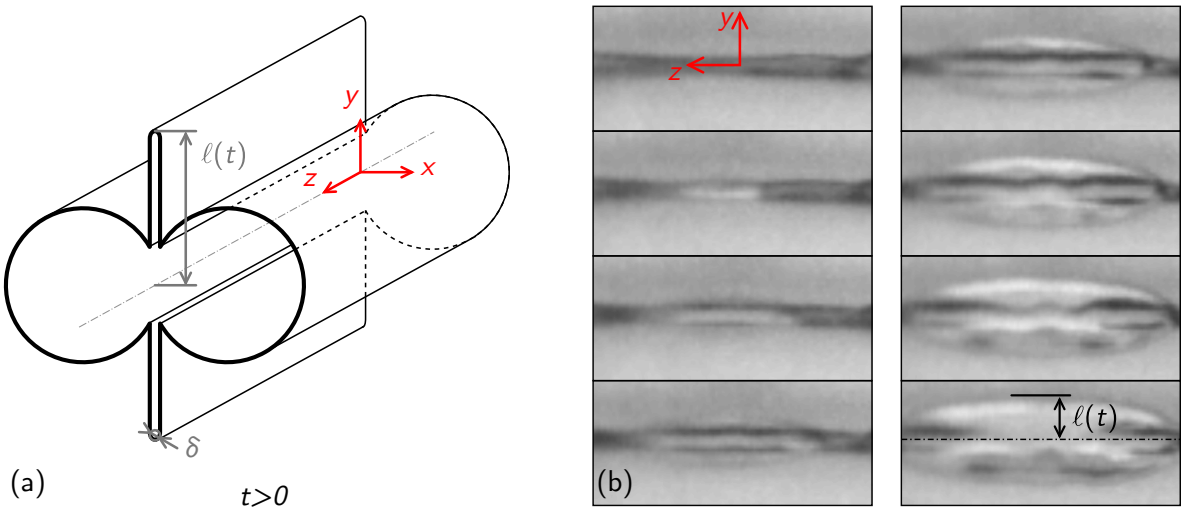

FIGURE 4.11 – (a) Formation d'une lamelle dans la direction transverse. (b) Série temporelle illustrant l'impact de deux tores liquides ($We = 74$), observé dans le plan Oyz. Les images sont séparées de 22 µs et larges de 2.7 mm. La série se lit de haut en bas, colonne de gauche, puis droite.

À la collision, du fait de l'incompressibilité du liquide, quantité de mouvement et masse ne peuvent que subir un changement de direction. Nulle par symétrie avant l'impact, la quantité de mouvement doit donc rester identiquement nulle tout au long de la collision. La réorientation du fluide se fait alors dans la direction perpendiculaire y, de manière symétrique par rapport à la direction initiale x. À $t = 0$, les deux cylindres entrent en contact puis s'interpénètrent, de sorte que le film les reliant disparait pour établir un pont liquide, d'épaisseur $2r(t)$ en $x = 0$ (voir figure 4.1a). Pour des temps courts devant a/V — le temps caractéristique de la fusion des cylindres —, des considérations géométriques relatives au recouvrement de deux disques permettent d'établir que le pont liquide croît comme $\sqrt{Vat}$:

$$r(t) = h + c\sqrt{Vat}. \tag{4.2.1}$$

Le facteur numérique c, d'ordre unité, dépend du détail de l'écoulement à la collision, entre $\sqrt{2}$ pour un recouvrement sans réorganisation du liquide (si le liquide n'était pas in-

compressible) et $\sqrt{6}$ pour une répartition uniforme ($r(x)$ = const.) entre les deux disques. Nous le considérons égal à 1 dans la suite, de même que toute constante d'ordre unité.

Au point de coordonnées ($x = 0, y = 0$), point de stagnation, il s'exerce, de même que lors de l'impact d'un jet sur une surface solide, une force due à la réorientation dans la direction orthogonale de la quantité de mouvement. La masse par unité de longueur m décélérée de $V = V_{TC}$ à 0 est, par incompressibilité du liquide, d'ordre ρr^2 (voir PHILIPPI et al., 2016). Pour des temps courts devant h^2/aV, on peut développer cette masse (4.2.2) avant de la dériver :

$$m = \rho r^2 \simeq \rho(h^2 + 2h\sqrt{Vat}) \,. \tag{4.2.2}$$

La force s'exprime alors $f = \dot{m}V \sim \rho V h\sqrt{aV/t}$ et il suffit de diviser par $r(t) \sim h$ aux mêmes temps $t \ll h^2/aV$ pour obtenir la pression (4.2.3) :

$$p = \frac{f}{r} \sim \rho V^2 \sqrt{\frac{a}{Vt}} \,, \tag{4.2.3}$$

un résultat contenu en germe dans WAGNER, 1932, posé dans COINTE et ARMAND, 1987 et établi en faisant l'hypothèse d'un champ de pression auto-similaire par PHILIPPI et al., 2016.

Cette pression divergente à $t = 0$ sert de moteur à l'éjection du liquide dans la direction transverse y, sous la forme d'un mince film liquide, une lamelle d'extension $\ell(t)$ (figure 4.11). La vitesse v dans le film, supposée uniforme dans l'épaisseur, s'écrit en première approximation :

$$v(y,t) = \frac{\dot{\ell}}{\ell} y \,. \tag{4.2.4}$$

L'équation d'Euler (4.2.5), intégrée entre 0 et $\ell(t)$, nous permet alors de relier les pressions de stagnation et en bout de lamelle à sa dynamique d'extension (4.2.6).

$$\partial_t v + v\partial_y v = -\partial_y p \tag{4.2.5}$$

$$\partial_y p = -\rho \frac{\ddot{\ell}}{\ell} y$$

$$p(\ell) - p(0) = -\frac{1}{2}\rho \ell \ddot{\ell} \,. \tag{4.2.6}$$

La pression en bout de lamelle $p(\ell)$ est essentiellement due à la courbure de l'interface, soit $p(\ell) = \sigma/\delta$, où δ est évalué par conservation du volume de liquide dans la lamelle $\delta\ell \sim r^2$ (voir le schéma 4.11a). À temps court, cette contribution est négligeable devant la pression de stagnation et la dynamique initiale de la lamelle est contenue dans l'équation :

$$\frac{1}{2}\rho \ell \ddot{\ell} = p(0) = \rho V^2 \sqrt{\frac{a}{Vt}} \,. \tag{4.2.7}$$

Intégrée deux fois en prenant pour ℓ son équivalent en $t = 0$, $\ell(t) \sim h$, (4.2.7) donne l'expression de la trajectoire initiale de la lamelle

$$\ell(t) = h\left(1 + \sqrt{\frac{a}{h}}\left(\frac{V}{h}t\right)^{3/2}\right). \tag{4.2.8}$$

Comme notifié plus haut, cette relation est valable pour des temps petits devant l'échelle très rapide h^2/aV. En guise d'illustration, cette échelle de temps est, dans l'expérience présentée sur la figure 4.11b, de l'ordre de la microseconde, plus d'un ordre de grandeur en deça de la résolution temporelle disponible dans ces expériences. L'expression (4.2.8) est toutefois représentée, à valeur d'exemple, sur la figure 4.12, superposée aux données expérimentales.

4.2.2 Rétraction

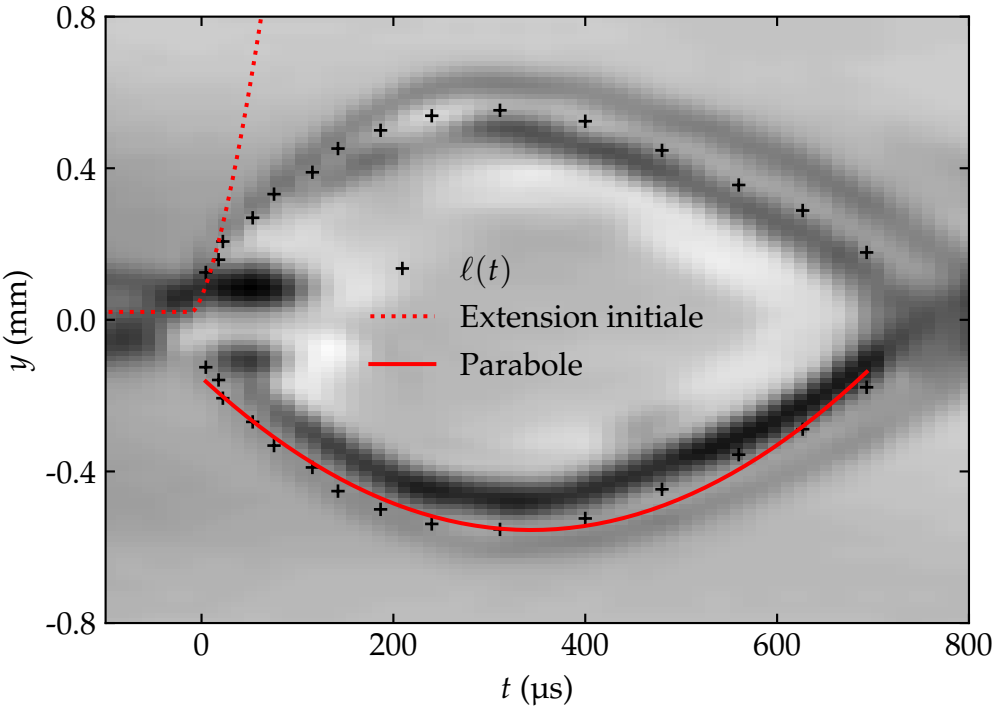

FIGURE 4.12 – Extension de la lamelle après la collision, diagramme spatio-temporel d'une collision individuelle (We = 88), sur lequel sont superposés les points expérimentaux et leur ajustement sur une parabole (trait plein). L'extension initiale (4.2.8) est tracée en pointillés.

La croissance de la lamelle est d'emblée enrayée par l'action de la capillarité : que l'on considère la force de tension, non équilibrée, exercée par le film sur l'extrémité de la lamelle, ou de manière équivalente à temps court la pression de Laplace, maximale à l'extrémité où l'interface est convexe, il résulte un écoulement dans la direction opposée au mouvement d'extension. Comme on peut le voir sur les figures 4.11b et 4.12, le liquide s'accumule même rapidement en bout de lamelle pour former un bourrelet, de courbure et donc de pression bien plus faible que celle estimée à temps courts $p(\ell) = \sigma\ell/h^2$. Plutôt que l'application directe de la pression de Laplace, le moteur de la rétraction est alors la dynamique non linéaire d'un bourrelet, relié à un film liquide, à la fois alimenté par ce dernier et soumis à la tension capillaire non équilibrée (le mécanisme est détaillé en introduction). Résolues dans des cas simples (vitesse d'entrée dans le bourrelet et épaisseur du film constants par exemple), les équations exhibent des oscillations, de période $T \sim \tau_C$, le temps capillaire basée sur la taille a des bourrelets (4.0.1). De manière remarquable, malgré l'absence d'une description détaillée des champs d'épaisseur $h(\ell, t)$ et de vitesse $v(\ell, t)$ du fluide à l'entrée dans le bourrelet, la trajectoire $\ell(t)$ s'ajuste sur une parabole, courbe en cloche la plus simple qu'il nous soit possible d'envisager (voir la figure 4.12) :

$$\ell(t) = h + \frac{t}{T}\left(1 - \frac{t}{T}\right)L\,. \tag{4.2.9}$$

La période capillaire $T = \tau_C$, l'échelle temporelle d'oscillation du problème, se réécrit

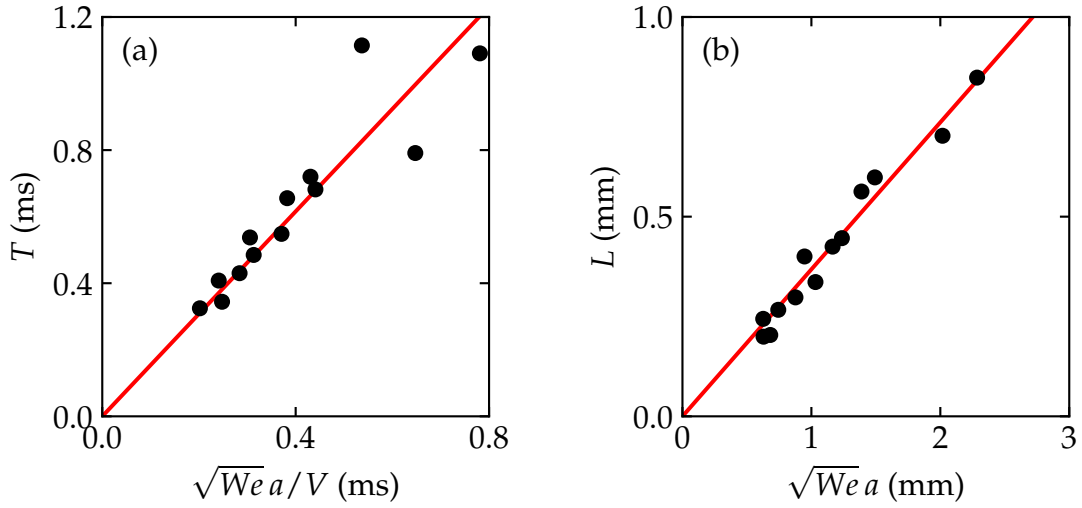

FIGURE 4.13 – (a) Période T et (b) extension maximale L de la lamelle en fonction des échelles (4.2.10) et (4.2.11). Les droites représentent la meilleure optimisation linéaire sur les données expérimentales.

dans le contexte de la collision :

$$T = \tau_C = \sqrt{\frac{\rho a^3}{\sigma}} \sim \frac{a}{V}\sqrt{We}\,. \tag{4.2.10}$$

La figure 4.13a (et plus loin la figure 4.16) confirme le dimensionnement 4.2.10. L'extension maximale de la lamelle L, quant à elle, est mise avec succès à l'échelle capillaire spatiale $V\tau_C$ (4.2.11), comme l'illustre la figure 4.13b :

$$L \sim V\tau_C \sim a\sqrt{We}\,. \tag{4.2.11}$$

4.2.3 Déstabilisation longitudinale

Dès sa formation et à temps court $t \ll h/V$, la lamelle est soumise en son extrémité extérieure à la pression de Laplace $\sigma\ell/h^2$, qui exerce sur elle l'accélération

$$\ddot{\ell} = -\frac{\sigma}{\rho h^2}, \tag{4.2.12}$$

négative et constante. Il s'agit d'une situation instable au sens de Rayleigh-Taylor : la lamelle, tout en se rétractant, se déstabilise longitudinalement (voir figure 4.14). L'analyse donne, en loi d'échelles, une longueur d'onde λ et un temps de croissance de l'instabilité τ caractéristiques

$$\lambda \sim \sqrt{\frac{\sigma}{\rho|\ddot{\ell}|}}\,; \qquad \frac{1}{\tau} \sim \sqrt{\frac{|\ddot{\ell}|}{\lambda}}\,. \tag{4.2.13}$$

D'où, en remplaçant par l'accélération (4.2.12) :

$$\begin{cases} \lambda & \sim & h \\ \tau & \sim & \sqrt{\dfrac{\rho h^3}{\sigma}} \sim \dfrac{h}{V} \end{cases}. \tag{4.2.14}$$

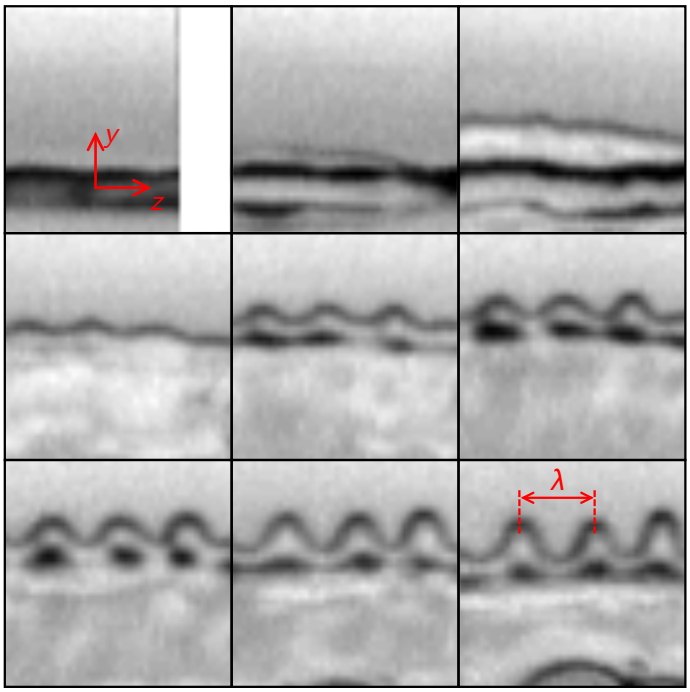

FIGURE 4.14 – Déstabilisation de la lamelle suite à la collision de deux cylindres liquides (We = 77). Les images sont séparées de 80 µs et larges de 1.4 mm.

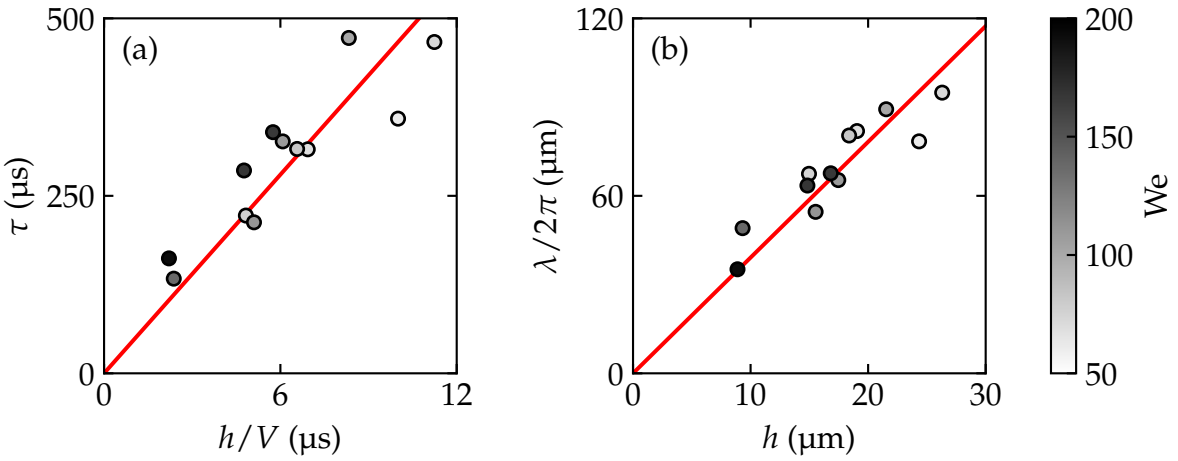

FIGURE 4.15 – Échelles de déstabilisation de la lamelle, en fonction des échelles caractéristiques de l'instabilité inertielle (4.2.14). (a) Temps de déstabilisation et (b) longueur d'onde. Les droites représentent la meilleure optimisation linéaire sur les données expérimentales.

Comme le montre la figure 4.15, les expériences confirment la tendance linéaire de la loi (4.2.14). Le préfacteur numérique élevé pour le temps de croissance τ peut surprendre à première vue. Les équations (4.2.14) n'ont toutefois été données qu'en ordre de grandeur, la multiplication de plusieurs facteurs, pourtant tous d'ordre unité, pouvant alors jouer de façon plus ou moins favorable. La longueur d'onde λ par exemple, divisée par 2π pour se ramener à l'inverse d'un nombre d'onde, grandeur naturelle dans le contexte des instabilités, exhibe un préfacteur plus raisonnable, d'ordre 1.

Transition

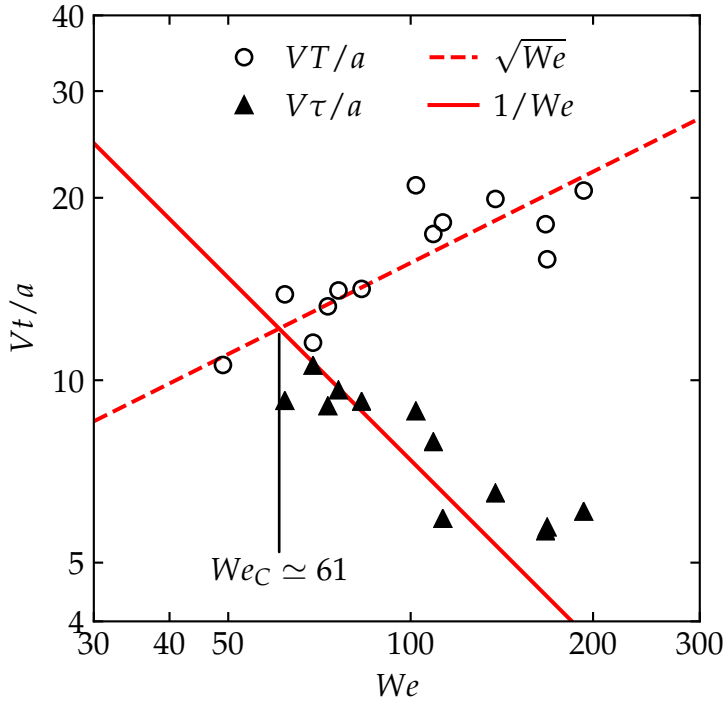

FIGURE 4.16 – Période T et temps de croissance de l'instabilité τ de la lamelle, normalisés par le temps de la collision a/V, en fonction du nombre de Weber d'impact. Les lois d'échelles (4.2.10) et (4.2.14) sont ajustées sur les données expérimentales, de manière à évaluer le nombre de Weber d'apparition de l'instabilité We_C.

La lamelle, évoluant selon un temps typique $T \sim \sqrt{We}\, a/V$, se déstabilise longitudinalement selon le temps court $\tau \sim h/V$. En tenant compte des préfacteurs α et β de T et τ, respectivement, l'égalisation de ces deux temps marque une transition dans le comportement de la lamelle : pour $\tau < T$, la lamelle a le temps de se déstabiliser, ce qui n'est pas le cas si $\tau > T$. La transition $T = \tau$ se passe à un nombre de Weber critique We_C (voir la figure 4.16) :

$$We_C = \left(\frac{\beta}{\alpha}\right)^{2/3} \simeq 61, \tag{4.2.15}$$

valeur en accord avec l'observation faite par LHUISSIER et VILLERMAUX, 2013.

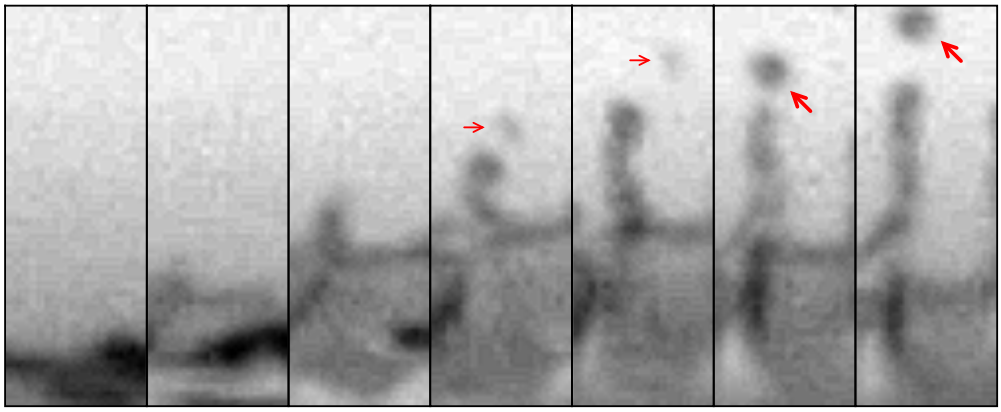

FIGURE 4.17 – Éjection de (deux) gouttes fines et rapides, $We = 193$. Les images sont séparées de 57 µs, larges de 0.62 mm.

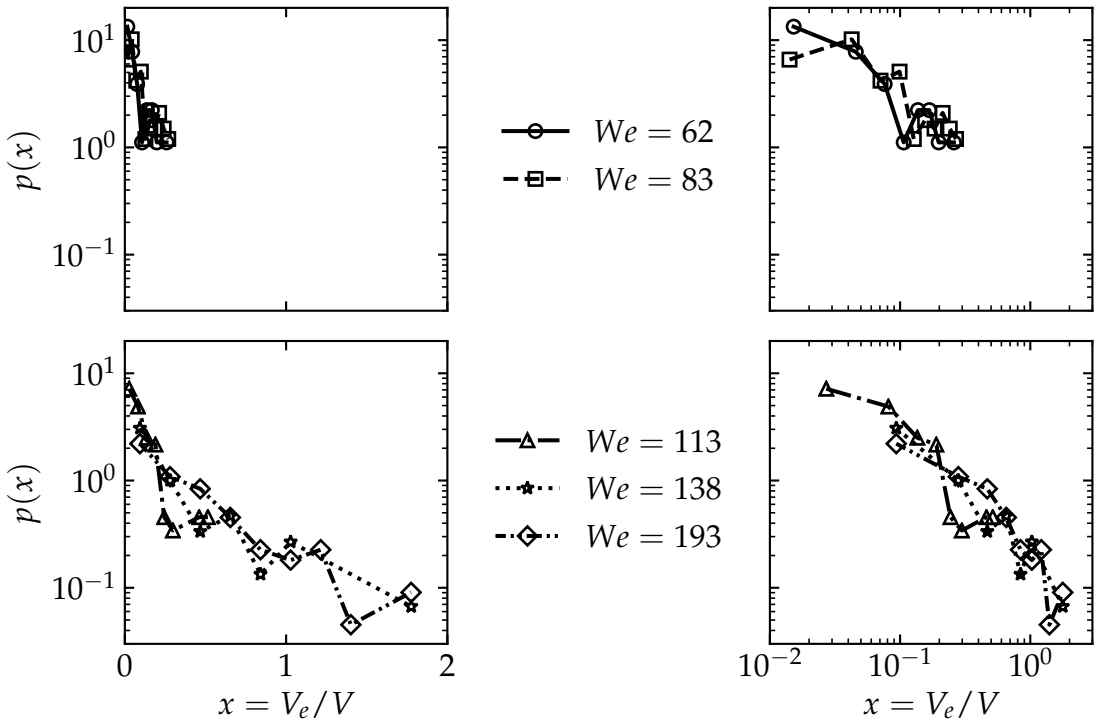

FIGURE 4.18 – Distributions $p(x = V_e/V)$ des vitesses transverses (en valeur absolue) V_e des gouttes, normalisées par la vitesse V des cylindres incidents, pour des nombres de Weber croissant. À petit nombre de Weber (première ligne), les vitesses exhibent une faible dispersion autour de la valeur nulle (en échelles semi-logarithmique à gauche et logarithmique à droite). À grand We ($\gtrsim 100$, seconde ligne), l'éjection de gouttes rapides augmente la valeur moyenne et élargit la queue de la distribution, pour explorer des valeurs extrêmes supérieures à V.

Éjection de gouttes rapides

À nombre de Weber élevé, la tension de surface, dans son rôle de rétraction, ne parvient plus à maintenir la cohésion du liquide. Passée la valeur critique We_C, la déstabilisation longitudinale de la lamelle (observée à la figure 4.14) mène à l'éjection de gouttes fines et rapides, illustrée figure 4.17. L'éjection violente de ces fragments est, des suites de la déstabilisation, une autre conséquence de l'impulsion de pression initiale. Leur vitesse V_e, mesurée au cours de leur mouvement ballistique et une fois séparés du film transverse, est évaluée au temps $t = h/V$ typique de l'instabilité longitudinale (4.2.14), que l'on injecte dans l'expression d'évolution initiale de la lamelle (4.2.8), issue de l'impulsion de pression :

$$V_e \sim \dot{\ell}\left(\frac{h}{V}\right) \sim V\sqrt{We - We_C}\,, \tag{4.2.16}$$

où l'introduction de la valeur critique We_C rend compte du seuil d'apparition de ces fragments.

Les distributions des vitesses des gouttes issues de la fragmentation des cylindres à l'impact (tous mécanismes confondus), présentées figure 4.18, suivent à petits We une statistique piquée autour de la vitesse nulle. Une faible dispersion est malgré tout mesurée, signature d'une asymétrie à la collision, même à petit nombre de Weber (rugosité, extension asymétrique et longitudinalement irrégulière de la lamelle de part et d'autre du film). Passée une certaine valeur $We \simeq 100$, les grandes excursions se font plus nombreuses et plus lointaines à mesure que le nombre de Weber augmente. Les faibles valeurs de V_e, relativement, prennent moins de poids dans la distribution, renforçant la croissance de la valeur moyenne $\langle V_e \rangle$.

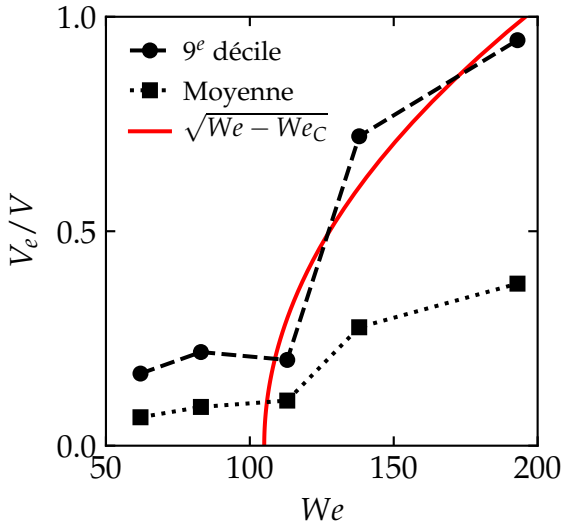

FIGURE 4.19 – Vitesse d'éjection des gouttes (moyenne et 9^e décile), en fonction du nombre de Weber. La loi (4.2.16) est ajustée au 9^e décile, *i.e.* les gouttes les plus rapides.

La figure 4.19 montre la transition vers le régime impulsionnel des grands We, visible sur les gouttes éjectées les plus rapides comme sur leur valeur moyenne (*i.e.* en incluant les fragments lents). Le seuil en We, autour de 105, apparaît toutefois plus élevé que celui du développement de l'instabilité de la lamelle ($We_C \simeq 61$), différence comprise comme un effet de retard (en We) entre l'émergence des ligaments transverses issus de l'instabilité inertielle et l'expulsion transverse, sans plus aucune retenue capillaire, des fragments.

On relie enfin qualitativement la taille des gouttes à leur vitesse d'éjection (voir figure 4.20) : un nombre de Weber croissant va produire des gouttes d'autant plus petites et plus rapides. Cette situation n'est évidemment pas sans rappeler la formation, dans une géométrie différente, de l'*ejecta sheet* observée par THORODDSEN, 2002, mais également de l'émergence d'un jet à la surface d'un bain après un choc, *jet spray* (ANTKOWIAK, BREMOND, DIZÈS & VILLERMAUX, 2007) ou à l'effondrement de la cavité suivant l'éclatement d'une bulle de surface (DEIKE et al., 2018). Le dénominateur commun entre ces diverses études est l'impulsion de pression à l'impact, décrite par l'expression (4.2.3).

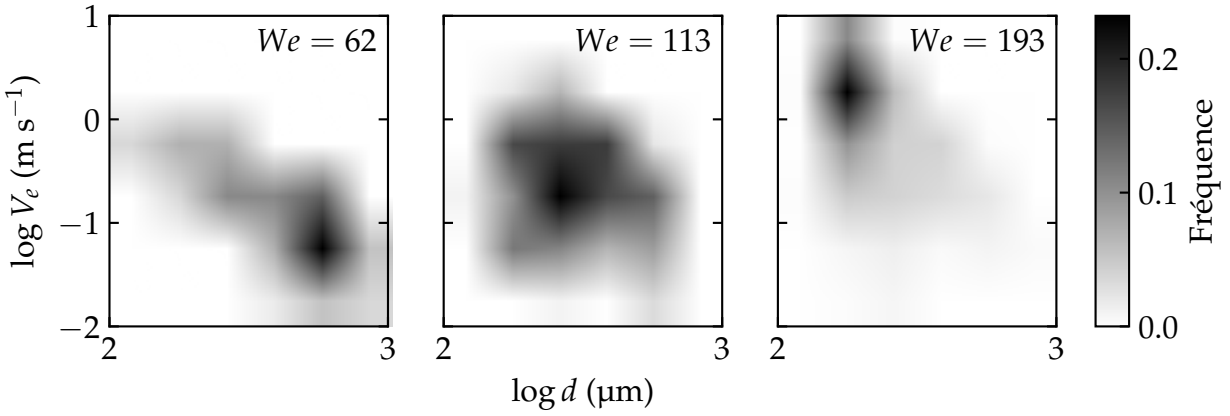

FIGURE 4.20 – Histogrammes bidimensionnels, pour des nombres de Weber croissants, de la vitesse d'éjection en fonction de la taille des gouttes. Les grandes vitesses contribuent exclusivement à la production de fines gouttes.

4.3 Fragmentation

Suite à leur collision, les deux cylindres liquides fusionnent, formant idéalement un unique cylindre de rayon constant le long de l'axe — y compris dans le cas de l'impact de tores (voir LHUISSIER & VILLERMAUX, 2013). L'émergence puis rétraction d'un film transverse, essentiellement, retarde la fusion, exceptions faites des gouttes issues de sa déstabilisation longitudinale et de la formation de ligaments secondaires, comme nous allons voir. Si nous avons mis en évidence un mécanisme individuel de fragmentation (voir le paragraphe précédent 4.2.3), producteur de gouttes d'autant plus fines et rapides que le nombre de Weber de la collision est élevé, il faut le replacer à présent dans le contexte de la fragmentation générale du film, parmi d'autres mécanismes décrits ci-dessous.

Le mécanisme de Plateau-Rayleigh, brique élémentaire de la fragmentation columnaire détaillée en introduction de cette thèse, est rapidement dépassé et complété. La nature ne se satisfaisant pas de la représentation idéale d'un cylindre de diamètre parfaitement constant, la rugosité de la surface liquide est alors prise en compte. Le modèle détermine, distributions expérimentales à l'appui, la fragmentation dans une certaine gamme de collisions. Enfin, la déstabilisation longitudinale pour des collisions de haute intensité produit, outre l'éjection de gouttelettes relativement marginale, l'émergence de ligaments secondaires. La fragmentation de ces derniers concourt substantiellement à la diversité, distribuée et illustrée, des tailles de gouttes.

4.3.1 Dépasser Plateau-Rayleigh

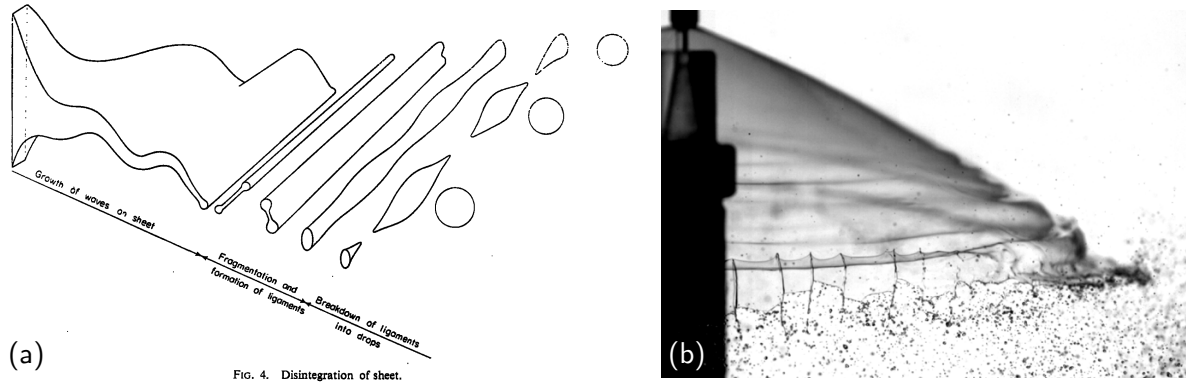

FIG. 4. Disintegration of sheet.

FIGURE 4.21 – Une image classique de l'instabilité de Plateau-Rayleigh, dans le contexte de la fragmentation liquide. (*a*) La formation d'un spray, schématisée et simplifiée par DOMBROWSKI et JOHNS, 1963, donne à voir des fragments monodisperses en taille. (*b*) La description détaillée d'un spray modèle met à mal, par des mécanismes de déstabilisation fondamentalement différents, la monodispersité des fragments (LHUISSIER & VILLERMAUX, 2012).

L'image classique, dans la lignée de laquelle se situent ces travaux, pourrait être résumée dans la figure 4.21a, empruntée aux travaux de DOMBROWSKI et JOHNS, 1963. Un film mince, dans ce cas initialement déstabilisé par une interaction de cisaillement avec le milieu environnant (SQUIRE, 1953), est découpé en bandes qui se rétractent sur elles-mêmes par capillarité (TAYLOR, 1959 ; CULICK, 1960), pour fusionner en cylindres. Ces derniers se déstabilisent à leur tour selon le mécanisme de Plateau-Rayleigh. La figure de fragmentation prédite est alors une assemblée de gouttes de taille unique, répartie le long de l'axe selon la longueur d'onde la plus instable. Par conservation du volume, le diamètre d_{PR} des gouttes dans le scénario idéal de la fusion de *deux* cylindres de rayon individuel a est :

$$d_{PR} = 1.89 \times 2\sqrt{2}a\,. \tag{4.3.1}$$

Bien que l'application de ce mécanisme simple aux sprays ait déjà montré ses limites (voir par exemple LHUISSIER et VILLERMAUX, 2012, d'où est issu la figure 4.21b), il demeure la brique élémentaire de la fragmentation de cylindres liquides. Il est, en moyenne et jusqu'à une certaine intensité de collision, corroboré par les expériences (voir figure 4.22). La taille moyenne des fragments issus de l'impact de deux cylindres, tracée sur la figure 4.22a, sature toutefois au-delà de $We_C \approx 80$, pour les deux dispositifs expérimentaux (voir la comparaison au paragraphe 4.1.3) : il faut bien évidemment voir ici la signature d'une production non négligeable de gouttes de petites tailles, les « fines ».

S'il est nécessaire d'insister sur le besoin de dépasser la vision classique, notons finalement que l'évolution linéaire observée sur la figure 4.22a à petits nombres de Weber est une tendance *moyenne*, les fragments étant distribués en taille autour de leur valeur moyenne. La figure 4.22b montre, pour $We = 58 < We_C$, la distribution des tailles de gouttes issues de l'impact de cylindres liquides, normalisée par le diamètre d_{RP} (4.3.1). La distribution, bien que piquée autour de $d = d_{PR}$, n'en est pas pour autant monodisperse.

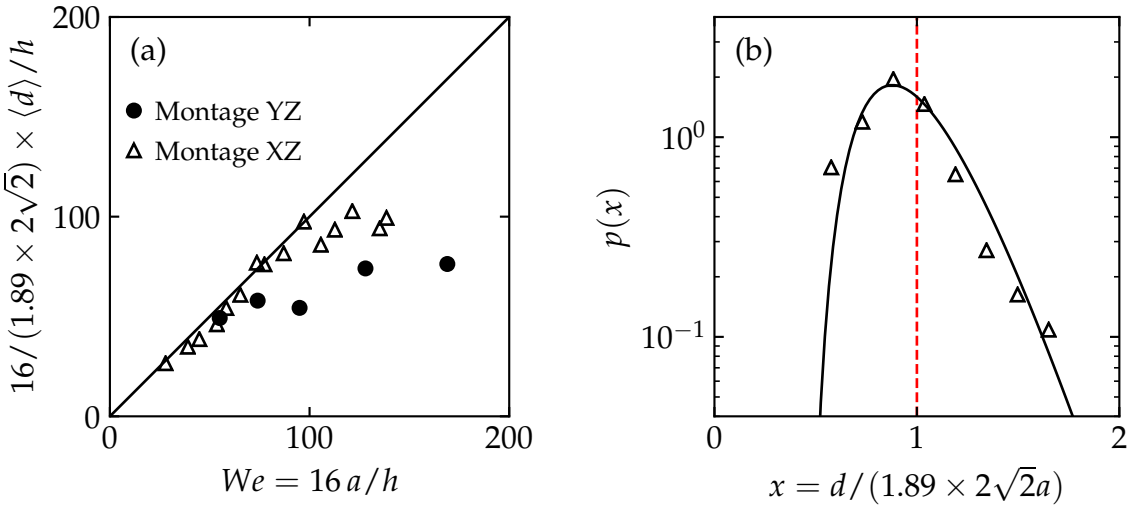

FIGURE 4.22 – (a) Diamètre moyen des gouttes $\langle d\rangle$, adimensionné par l'épaisseur h du film, en fonction du nombre de Weber de la collision. Les données des montages YZ (•) et XZ (△), qui sous-évalue (respectivement surestime) la moyenne $\langle d\rangle$ par l'absence des gros (resp. petits) fragments, saturent à grands We. La droite en trait plein est le résultat de la théorie linéaire de Plateau-Rayleigh. (b) Pour $We = 58$, distribution des tailles de gouttes, normalisées par le diamètre attendu (4.3.1). Une loi gamma (4.3.2) d'ordre 5 (trait plein) est superposée aux données expérimentales (△, montage XZ).

4.3.2 Rugosité

La théorie linéaire de Plateau et Rayleigh, dans sa prédiction de la taille, unique, des gouttes issues de la déstabilisation d'une colonne liquide, offre évidemment une vision idéale de la réalité. L'illustration de la production d'un spray (figure 4.21b) suffit à embrasser la complexité de cette dernière. La théorie linéaire, plus spécifiquement, s'intéresse seulement au développement initial de l'instabilité, et non à la dynamique de la rupture des cylindres. Le mécanisme physique de l'instabilité, qui met en jeu les pressions capillaires, garde toutefois sa pertinence dans l'explication du pincement final, y compris dans le cas de la collision de cylindres liquides.

Dans les expériences présentées ici, une première limite à la théorie linéaire est l'existence, avant même la collision des cylindres, d'une rugosité ξ modulant leur rayon moyen a, comme on peut en voir des exemples figure 4.23a. En moyenne nulle par définition, la corrugation est caractérisée par sa variance $\langle\xi^2\rangle = \langle a^2\rangle - \langle a\rangle^2$, qui croît avec le nombre de Weber (voir figure 4.23). La dissipation visqueuse à la collision, négligée jusqu'ici dans l'analyse de la dynamique d'impact, représente une autre limite à la théorie linéaire. Celle-ci intervient *in fine* via les mouvements hiératiques du liquide, pour dissiper une grande partie de l'énergie cinétique incidente et contribuer à la rugosité ξ du ligament central issu de la collision.

Distribution des fragments

VILLERMAUX, MARMOTTANT et DUPLAT, 2004 se sont intéressés aux produits de la fragmentation d'un cylindre liquide dont le rayon $a(z)$ varie avec la coordonnée longitudinale z : $a(z) = a + \xi(z)$. En modélisant le ligament comme un chapelet de gouttes, ou *globules*, de tailles individuelles d et liées aux plus proches voisines par le jeu des pres-

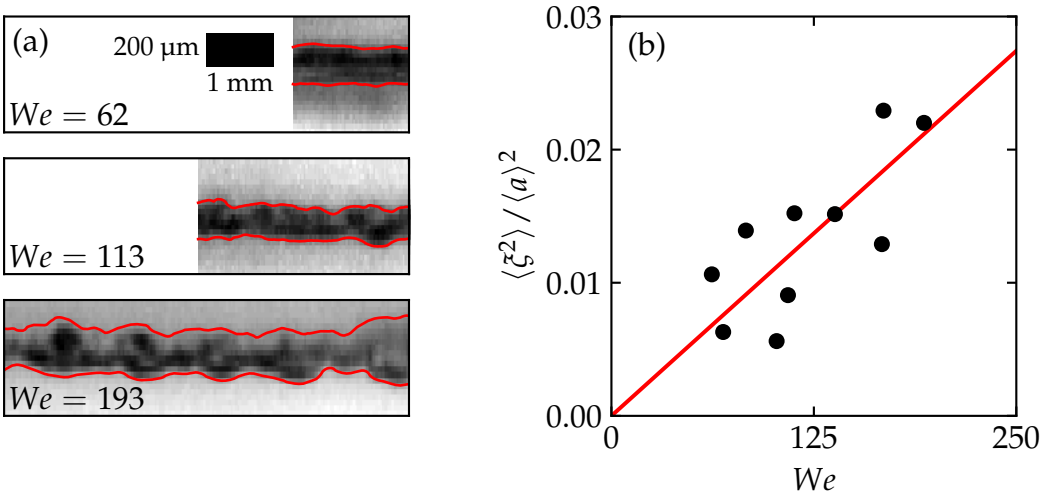

FIGURE 4.23 – Rugosité des cylindres. (*a*) Détection des bords des cylindres, quelques microsecondes avant la collision. (*b*) Rugosité en fonction de l'énergie cinétique (adimensionnée) de la collision. Une tendance linéaire est soulignée par la droite rouge.

sions de Laplace, ils ont établi que les fragments sont distribués en tailles selon une loi gamma d'ordre n (4.3.2), signature du caractère agrégatif des interactions entre gouttes avant le pincement :

$$p(x) = \Gamma_n(x) = \frac{n^n}{\Gamma(n)} x^{n-1} e^{-nx}, \qquad \text{avec } x = \frac{d}{\langle d \rangle}. \tag{4.3.2}$$

Le paramètre n code la largeur de la distribution, les petites valeurs correspondant à une grande dispersion des fragments, les grandes valeurs à une distribution de plus en plus piquée. Il est même une mesure directe de la rugosité du ligament, selon l'expression dérivée par BREMOND et VILLERMAUX, 2006 :

$$n = \frac{a^2}{\langle \xi^2 \rangle}. \tag{4.3.3}$$

La largeur de la distribution de rugosité $\sqrt{\langle \xi^2 \rangle}$ ne pouvant surpasser la valeur du rayon, n ne saurait être inférieur à 4, un résultat exposé par LHUISSIER et VILLERMAUX, 2013.

Énergie cinétique

À la collision, l'énergie cinétique — par unité de longueur — des cylindres incidents $\frac{\pi}{2}\rho(2V)^2a^2$ se répartit entre agitation cinétique, création de surface et dissipation visqueuse :

$$2\pi\rho V^2 a^2 = \frac{\pi}{2}\rho\langle \mathbf{v}^2 \rangle a^2 + 2\pi\langle \left(\sqrt{1+\xi'^2} - 1\right)\sigma a \rangle + \text{dissipation}, \qquad \xi' \ll 1. \tag{4.3.4}$$

En faisant l'hypothèse d'équipartition de l'énergie, le terme d'agitation cinétique incohérente vaut en moyenne celui de création de surface. La somme des deux représente alors une faible fraction de l'énergie incidente — le reste est dissipé —, et à un facteur numérique près,

$$\frac{1}{2}\rho V^2 \sim \frac{\sigma}{a}\langle \xi'^2 \rangle. \tag{4.3.5}$$

On en déduit

$$\langle \xi'^2 \rangle \sim We\,. \tag{4.3.6}$$

Les fluctuations de la surface ξ, *i.e.* la rugosité, qui donnent naissance aux gouttes, varient sur une taille typique a, à savoir la longueur d'onde issue de la théorie linéaire de Plateau-Rayleigh. Ainsi $\xi' \sim \xi/a$, de même $\langle \xi'^2 \rangle \sim \langle \xi^2 \rangle / a^2$ et l'ordre de la distribution de tailles des fragments s'écrit simplement

$$n \sim \frac{1}{We}, \tag{4.3.7}$$

à un fort préfacteur numérique près, réminiscence de la fraction non dissipée de l'énergie incidente.

4.3.3 Fragmentation transverse

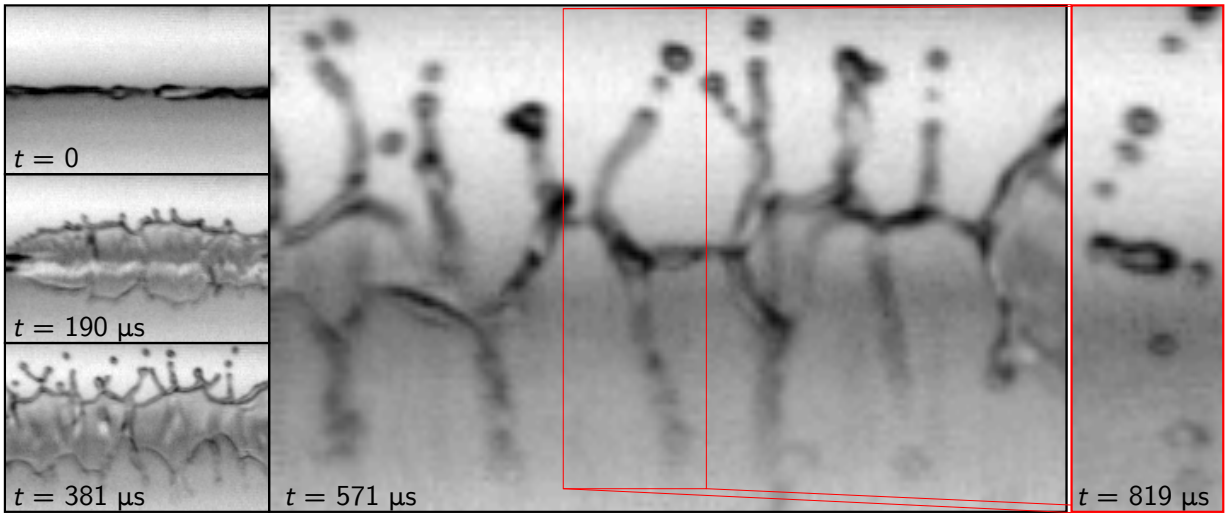

FIGURE 4.24 – Ligaments issus de la déstabilisation de la nappe transverse, We = 169 (image centrale, de largeur 5.3 mm). La colonne de gauche illustre 1. la collision (a = 107 µm, h = 8.8 µm), 2. la formation et déstabilisation de la nappe transverse, et 3. l'émergence des ligaments contemporaine de l'éjection de gouttes hors du plan du film initial. La déstabilisation des ligaments donne naissance à des fragments distribués en tailles (image de droite).

On conçoit comment la dynamique d'agrégation de « globules » liquides le long d'un cylindre corrugué, décrite au paragraphe précédent, est effective dans le cas d'une collision laissant relativement intacts les deux cylindres, *i.e.* lorsque le nombre de Weber est suffisamment faible. La loi gamma (4.3.2), de même que dans VILLERMAUX et al., 2004, décrit bien la distribution des tailles de fragments résultant d'une telle collision — y compris en présence d'une nappe transverse, vue alors comme une simple oscillation non-linéaire autour de la forme columnaire (voir la figure 4.22b).

En revanche, passée la valeur particulière We_C du nombre de Weber, la formation de la nappe transverse devient contemporaine d'une instabilité inertielle (partie 4.2). Au cours de son mouvement d'extension et rétraction, modulé longitudinalement, émergent alors dans le plan yz de la lamelle des ligaments secondaires (voir figure 4.24). Ces derniers, qui

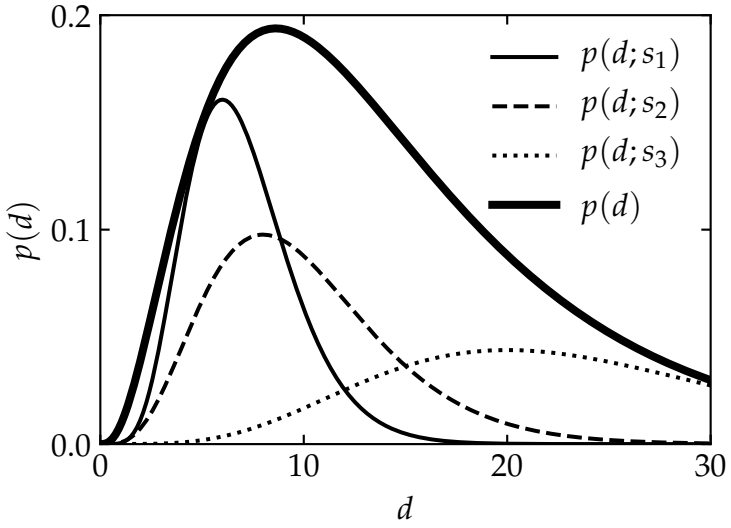

FIGURE 4.25 – Composition (schématique) des probabilités $p(d;s_i)$ des tailles des fragments issus de 3 ligaments corrugués de tailles initiales s_1, s_2 et s_3. Les distributions $p(d;s_i)$ des tailles de fragments sont des lois gamma (4.3.2), de même que la distribution des tailles s de ligaments. L'intégration sur toutes les tailles de ligaments donne la loi $p(d)$ (4.3.8), en trait plein épais.

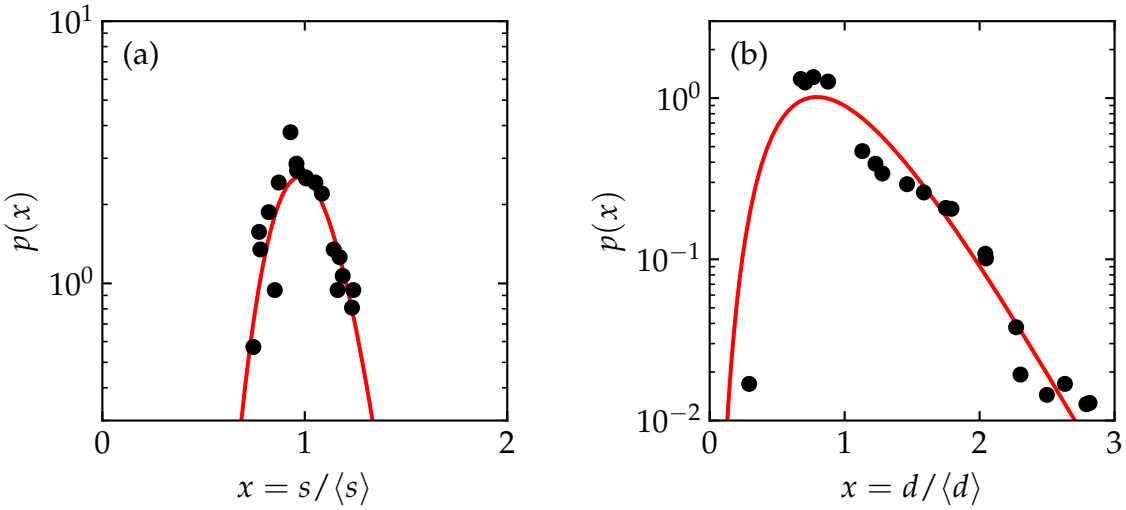

FIGURE 4.26 – Distribution des tailles pour une collision à $We = 193$. (a) La distribution des ligaments transverses, définis comme la racine cubique des volumes mesurés, est décrite par une loi gamma d'ordre $m = 4$. (b) Les fragments issus de la déstabilisation des ligaments, corrugués, sont distribués selon la loi composée (4.3.8), d'ordres $m = 40, n = 6$ (ligne rouge).

se déstabilisent à leur tour, chacun selon le mécanisme individuel décrit au paragraphe 4.3.2, affectent la distribution totale des tailles de gouttes de la manière suivante.

— Les volumes s^3 des ligaments secondaires proviennent directement des globules soumis à la dynamique d'agrégation décrite au paragraphe 4.3.2. Leur taille s est donc une variable aléatoire, dont la distribution est précisément, les ligaments étant les premiers fragments issus de cette dynamique, une loi gamma (4.3.2), d'ordre m.

— Ces ligaments, individuellement, sont corrugués. Soumis à la même dynamique d'agrégation, dans le même temps que leur déstabilisation capillaire, ils donnent donc des fragments distribués selon la même loi gamma, d'ordre *n a priori* dépendant de la taille du ligament, et différent de m.

La distribution totale doit donc intégrer la variabilité des tailles s des ligaments transverses, comme illustré schématiquement sur la figure 4.25. Sous l'hypothèse d'indépendance de l'ordre de la distribution des fragments vis-à-vis de la taille du ligament duquel ils proviennent, les gouttes sont distribuées en taille selon la loi dérivée par VILLERMAUX et BOSSA, 2009 :

$$p\left(x = \frac{d}{\langle d \rangle}\right) = \frac{2(mn)^{\frac{m+n}{2}}}{\Gamma(m)\Gamma(n)} x^{\frac{m+n}{2}-1} K_{m-n}\left(2\sqrt{mnx}\right), \tag{4.3.8}$$

où K_{m-n} est la fonction de Bessel modifiée de deuxième espèce, de rang $m - n$.

Bien que les ligaments semblent dispersés en volumes, l'ordre m de la distribution des tailles s est estimé, pour une collision de $We = 193$, à $m = 40$, valeur élevée comme le révèle la distribution piquée présentée figure 4.26a, dérivée expérimentalement à partir des volumes s^3. La distribution des fragments correspondant, qui compose la distribution des ligaments d'origine et les lois gamma issues des corrugations de ces derniers, est décrite avec succès par la loi (4.3.8), d'ordres $m = 40, n = 6$ (figure 4.26b).

Lorsque $m \to +\infty$, c'est-à-dire lorsque les ligaments sont répartis uniformément en tailles et le long de l'axe des cylindres incidents, alors $p(x) \to \Gamma_n(x)$, on retrouve paradoxalement le cas d'un ligament unique corrugué : tout se passe comme si la déstabilisation de la lamelle, en sélectionnant *parfaitement* une taille unique, n'intervenait pas dans les processus d'agrégation et de fragmentation à l'origine de la dispersion des tailles de fragments. À l'inverse, pour des tailles de ligaments elles-mêmes corruguées, alors m vaut au minimum 4, et en supposant que les bourrelets sont également corrugués ($n = 4$), les fragments sont distribués selon la loi :

$$p(x) = \frac{2^{15}}{9} x^3 K_0(8\sqrt{x}), \tag{4.3.9}$$

la distribution de la pluie (VILLERMAUX & BOSSA, 2009).

Les deux distributions limites, la loi gamma (4.3.2) établie pour un cylindre corrugué non déstabilisé, et la distribution de la pluie (4.3.9) pour un cylindre très corrugué déstabilisé en ligaments eux-mêmes corrugués, encadrent le mécanisme intermédiaire donnant lieu à la distribution composée (4.3.8). L'illustration de trois distributions expérimentales (observées et mesurées dans le plan xz du film initial) pour des nombres de Weber croissant ($We = 28 < 74 < 135$, voir la figure 4.27) présente un bon accord avec la théorie. Elle donne également à voir la variation rapide des comportements sur une courte gamme de nombres de Weber.

Finalement, en ajustant sur l'ensemble des données expérimentales l'unique distribution composée (4.3.8), l'ordre des corrugations n, dernière pièce du mécanisme, suit bien une dépendance inverse en We (figure 4.28), comme annoncé dans l'expression (4.3.7).

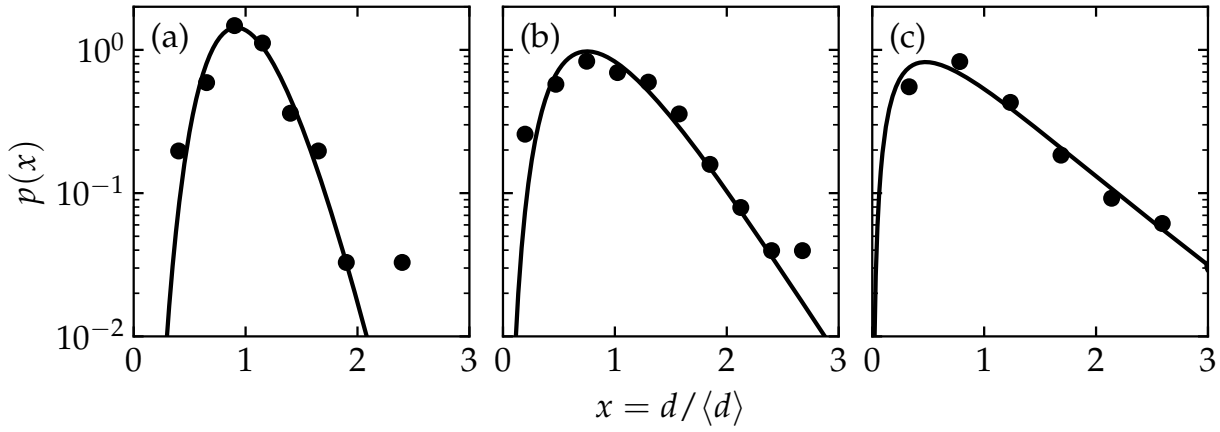

FIGURE 4.27 – Distributions des tailles de gouttes (dans le plan xz du film initial) pour trois nombres de Weber croissants $We = 28, 74, 135$. Sont superposées aux données expérimentales : (a), une loi gamma (4.3.2) d'ordre $n = 12$; (b), la loi composée (4.3.8) de rangs $n = 6, m = 18$; (c), la distribution (4.3.9), sans paramètre ajustable.

Conclusion

Fragmentation. En faisant un dernier arrêt sur ce terme, et dès lors que lui est accolé le qualificatif *liquide*, on peut de manière générale percevoir deux idées sous-jacentes. La première est celle de réduction des tailles, qui pour le cas d'un volume constant de liquide, s'accompagne généralement d'une augmentation de l'aire totale de l'interface entre le liquide et son environnement. La question posée est de comprendre comment ce volume initialement homogène, de taille typiquement grande devant la longueur capillaire (car en parlant de surface vient immédiatement la notion de tension superficielle), va traverser les échelles. De là, on voit apparaître la seconde idée émergeant à l'évocation de la notion de fragmentation, à savoir qu'il s'agit d'un vaste champ d'investigation, recouvrant une multitude d'approches débouchant sur autant de mécanismes individuels. Le point commun, passée l'échelle capillaire, est la prédominance des forces de tension de surface, couplées à l'inertie des fragments.

Dans le cadre général de cette thèse — la rupture de films liquides — a été isolé, présenté et documenté dans ce chapitre un mécanisme à l'œuvre dans la formation des sprays, illustration par excellence de la complexité du champ d'étude. Grâce à l'observation et la description de la collision de deux cylindres liquides, configuration géométrique relativement simple à la fois analytiquement et expérimentalement, nous apportons un nouveau point de vue sur la collision binaire de gouttes, thème pourtant déjà largement débattu. Trois classes de fragments émergent d'une telle collision :

— des gouttes fines et rapides éjectées perpendiculairement au plan du film initial, signatures 1. d'une divergence de la pression à l'impact et 2. de la déstabilisation inertielle longitudinale de la nappe transverse résultant — phénomène générique à rapprocher de l'*ejecta sheet* et des *spray jets*. Ces fragments représentent une faible fraction de l'ensemble, bien que croissante à mesure que l'énergie cinétique des cylindres incidents augmente.

— les gouttes provenant de la déstabilisation capillaire du ligament fusionné, porteur d'une rugosité d'autant plus grande que la collision est violente. Par conservation et équipartition de l'énergie, la largeur de la distribution des tailles de fragments est

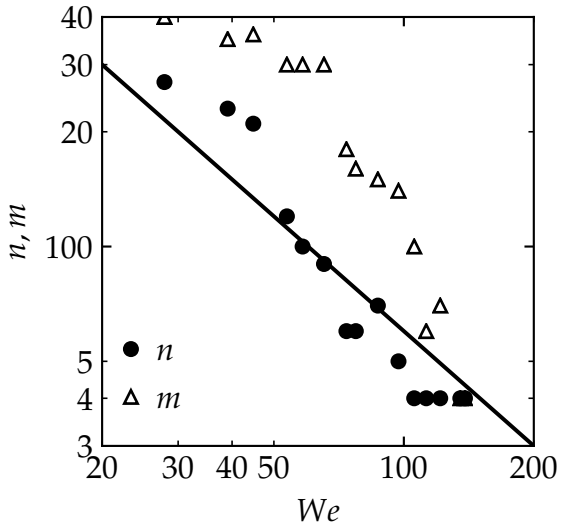

FIGURE 4.28 – Évolution du paramètre d'ordre n en fonction du nombre de Weber, pour un ajustement des distributions expérimentales sur la loi composée (4.3.8).

inversément proportionnelle à l'énergie cinétique des cylindres.

— les gouttes provenant de la double déstabilisation 1. inertielle de la nappe transverse et 2. capillaire des ligaments transverses résultant. La rugosité joue de même dans ce scénario, cette fois aux deux endroits des cylindres incidents et des ligaments transverses (et donc aux deux ordres de la distribution correspondante).

Les tailles de fragments issus des deux dernières classes sont distribuées selon des lois gamma, simple ou composée, démontrant le caractère agrégatif des processus de fragmentation à l'œuvre. Naturellement, dès lors que la déstabilisation inertielle a lieu, ces deux scénarios se déroulent sur les mêmes échelles de temps : il serait illusoire de vouloir les distinguer expérimentalement, la distribution composée faisant preuve d'une certaine latitude sur la détermination des deux ordres. Le troisième scénario, un cran plus général et contenant le second comme cas limite, décrit finalement le mieux le détail de ce processus collisionnel.

Dans tous les cas, nous avons réaffirmé l'importance capitale du nombre de Weber, rapport des énergies cinétique et superficielle mises en jeu à la collision, notamment à travers des variations comportementales rapides. Si la gamme explorée dans les expériences présentées peut paraître finalement faible, précisons que dépasser les bornes signifierait, dans l'état actuel des dispositifs expérimentaux, mélanger à nouveau des comportements ici isolés, ce que fait constamment la nature.

Références

ANTKOWIAK, A., BREMOND, N., DIZÈS, S. L. & VILLERMAUX, E. (2007). Short-term dynamics of a density interface following an impact. *J. Fluid Mech. 577*, 241-250.

ASHGRIZ, N. & POO, J. Y. (1990). Coalescence and separation in binary collisions of liquid drops. *J. Fluid Mech. 221*, 183-204.

BRAZIER-SMITH, P. R., JENNINGS, S. G. & LATHAM, J. (1972). The interaction of falling water drops : coalescence. *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, *326*(1566), 393-408.

BREMOND, N. & VILLERMAUX, E. (2006). Atomization by jet impact. *J. Fluid Mech. 549*, 273-306.

CLANET, C. & VILLERMAUX, E. (2002). Life of a Smooth Liquid Sheet. *J. Fluid Mech. 462*, 307-340.

COINTE, R. & ARMAND, J.-L. (1987). Hydrodynamic Impact Analysis of a Cylinder. *J. Offshore Mech. Arct. Eng*, *109*(3), 237-243.

COOKER, M. J. & PEREGRINE, D. H. (1995). Pressure-Impulse Theory for Liquid Impact Problems. *J. Fluid Mech. 297*, 193-214.

CULICK, F. E. C. (1960). Comments on a Ruptured Soap Film. *J. Appl. Phys. 31*, 1128-1129.

DEIKE, L., GHABACHE, E., LIGER-BELAIR, G., DAS, A. K., ZALESKI, S., POPINET, S. & SÉON, T. (2018). Dynamics of jets produced by bursting bubbles. *Phys. Rev. Fluids*, *3*, 013603.

DOMBROWSKI, N. & JOHNS, W. R. (1963). The Aerodynamic Instability and Disintegration of Viscous Liquid Sheets. *Chem. Eng. Sci. 18*, 203-214.

EDGERTON, H. E. & KILLIAN, J. R. (1939). *Flash ! : Seeing the unseen by ultra high-speed photography*. Hale, Cushman & Flint.

GORDILLO, J. M., LHUISSIER, H. & VILLERMAUX, E. (2014). On the cusps bordering liquid sheets. *J. Fluid Mech. 754*(R1), 1-11.

GORDILLO, L., SUN, T.-P. & CHENG, X. (2018). Dynamics of drop impact on solid surfaces : evolution of impact force and self-similar spreading. *J. Fluid Mech. 840*, 190-214.

JOSSERAND, C. & THORODDSEN, S. T. (2016). Drop Impact on a Solid Surface. *Annu. Rev. Fluid Mech. 48*(1), 365-391.

KOROBKIN, A. A. & PUKHNACHOV, V. V. (1988). Initial Stage of Water Impact. *Annu. Rev. Fluid Mech. 20*(1), 159-185.

LESSER, M. B. & FIELD, J. E. (1983). The Impact of Compressible Liquids. *Annu. Rev. Fluid Mech. 15*(1), 97-122.

LEVIN, Z. & HOBBS, P. V. (1971). Splashing of water drops on solid and wetted surfaces : hydrodynamics and charge separation. *Phil. Trans. R. Soc. Lond., Ser. A*, *269*(1200), 555-585.

LHUISSIER, H. (2011). *Nappes, trous, ligaments et gouttes* (Mécanique et physique des fluides, Université de Provence - Aix Marseille I).

LHUISSIER, H. & VILLERMAUX, E. (2012). Crumpled water bells. *J. Fluid Mech. 693*, 508-540.

LHUISSIER, H. & VILLERMAUX, E. (2013). 'Effervescent' atomization in two dimensions. *J. Fluid Mech. 714*, 361-392.

LOW, T. B. & LIST, R. (1982a). Collision, Coalescence and Breakup of Raindrops. Part I : Experimentally Established Coalescence Efficiencies and Fragment Size Distributions in Breakup. *J. Atmos. Sci. 39*(7), 1591-1606.

LOW, T. B. & LIST, R. (1982b). Collision, Coalescence and Breakup of Raindrops. Part II : Parameterization of Fragment Size Distributions. *J. Atmos. Sci. 39*(7), 1607-1619.

PHILIPPI, J., LAGRÉE, P.-Y. & ANTKOWIAK, A. (2016). Drop impact on a solid surface : short-time self-similarity. *J. Fluid Mech. 795*, 96-135.

RIOBOO, R., TROPEA, C. & MARENGO, M. (2001). Outcomes from a drop impact on solid surfaces. *Atomization Sprays*, *11*(2).

RYLEY, D. J. & BENNETT-COWELL, B. N. (1967). The Collision Behaviour of Steam-Borne Water Drops. *Int. J. mech. Sci. 9*(12), 817-IN1.

SAVART, F. (1833). Mémoire sur le Choc d'une Veine liquide lancée contre un plan circulaire. *Ann. Chim. Phys. 54*, 55-87.

SQUIRE, H. B. (1953). Investigation of the Instability of a Moving Liquid Film. *Br. J. Appl. Phys. 4*(6), 167.

TAYLOR, G. I. (1959). The Dynamics of Thin Sheets of Fluid. III. Disintegration of Fluid Sheets. *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, *253*, 313-321.

THORODDSEN, S. T. (2002). The ejecta sheet generated by the impact of a drop. *J. Fluid Mech. 451*, 373-381.

THORODDSEN, S. T., ETOH, T. G., TAKEHARA, K. & TAKANO, Y. (2004). Impact jetting by a solid sphere. *J. Fluid Mech. 499*, 139-148.

VILLERMAUX, E. (2007). Fragmentation. *Annu. Rev. Fluid Mech. 39*(1), 419-446.

VILLERMAUX, E. & BOSSA, B. (2009). Single-Drop Fragmentation Determines Size Distribution of Raindrops. *Nat. Phys. 5*(9), 697-702.

VILLERMAUX, E. & BOSSA, B. (2011). Drop fragmentation on impact. *J. Fluid Mech. 668*, 412-435.

VILLERMAUX, E., MARMOTTANT, P. & DUPLAT, J. (2004). Ligament-Mediated Spray Formation. *Phys. Rev. Lett. 92*(7), 074501.

WAGNER, H. (1932). Über Stoß- und Gleitvorgänge an der Oberfläche von Flüssigkeiten. *Z. Angew. Math. Mech. 12*(4), 193-215.

WORTHINGTON, A. M. (1876). On the forms assumed by drops of liquids falling vertically on a horizontal plate. *Proc. R. Soc. London*, *25*, 261-272.

WORTHINGTON, A. M. (1877). A second paper on the forms assumed by drops of liquids falling vertically on a horizontal plate. *Proc. R. Soc. London*, *25*, 498-503.

WORTHINGTON, A. M. (1908). *A Study of Splashes*. Longmans, Green & Co.

XU, L., ZHANG, W. W. & NAGEL, S. R. (2005). Drop Splashing on a Dry Smooth Surface. *Phys. Rev. Lett. 94*(18), 184505.

YARIN, A. L. (2006). Drop Impact Dynamics : Splashing, Spreading, Receding, Bouncing... *Annu. Rev. Fluid Mech. 38*(1), 159-192.

YARIN, A. L. & WEISS, D. A. (1995). Impact of drops on solid surfaces : self-similar capillary waves, and splashing as a new type of kinematic discontinuity. *J. Fluid Mech. 283*, 141-173.

Conclusion

Par son cheminement propre, cette thèse m'a amené à (dé)couvrir divers champs d'investigation de la vaste hydrodynamique, me portant, souvent sans le formuler clairement, sur des sujets pourtant brûlants de l'actualité scientifique. Sous le prétexte de la discussion de la transmission de la vorticité depuis la surface jusqu'au cœur du liquide, le premier chapitre expose et explique non seulement une instabilité Marangoni, mais également un phénomène critique, auto-similaire. À n'en point douter, les principes physiques énoncés qualitativement dès le milieu du XIX$^{\text{è}}$ siècle (MARANGONI, 1865), n'ont pas fini, par leurs conséquences quantitatives et pratiques, d'étonner les chercheurs (DEEGAN et al., 1997 ; ROCHÉ et al., 2014 ; KEISER, BENSE, COLINET, BICO et REYSSAT, 2017 ; WODLEI, SEBILLEAU, MAGNAUDET et PIMIENTA, 2018). Les deuxième et troisième chapitres, s'ils semblent faire peu de cas de la transmission de la vorticité à travers le film, s'appuient au contraire pleinement sur la compréhension présentée au premier chapitre. La déstabilisation (chapitre 2) puis la structure de choc qui en dérive (chapitre 3) sont des mécanismes Marangoni. Le chapitre 3 conclue, quant à l'origine de la rupture des films, à un choc, défini par un nombre de Weber et anticipant sur l'objet du quatrième chapitre. Car il est bien question dans ce dernier chapitre du choc, ou impact, de deux objets liquides, proposant sous couvert de fragmentation une résolution de la dynamique de la collision de gouttes.

Références

DEEGAN, R. D., BAKAJIN, O., DUPONT, T. F., HUBER, G., NAGEL, S. R. & WITTEN, T. A. (1997). Capillary Flow as the Cause of Ring Stains from Dried Liquid Drops. *Nature*, *389*(6653), 827-829.

KEISER, L., BENSE, H., COLINET, P., BICO, J. & REYSSAT, E. (2017). Marangoni Bursting : Evaporation-Induced Emulsification of Binary Mixtures on a Liquid Layer. *Phys. Rev. Lett. 118*(7), 074504.

MARANGONI, C. (1865). *Sull'espansione delle goccie d'un liquido galleggianti sulla superfice di altro liquido* (Università di Pavia, Pavia).

ROCHÉ, M., LI, Z., GRIFFITHS, I. M., LE ROUX, S., CANTAT, I., SAINT-JALMES, A. & STONE, H. A. (2014). Marangoni Flow of Soluble Amphiphiles. *Phys. Rev. Lett. 112*(208302).

WODLEI, F., SEBILLEAU, J., MAGNAUDET, J. & PIMIENTA, V. (2018). Marangoni-driven flower-like patterning of an evaporating drop spreading on a liquid substrate. *Nat. Commun. 9*(1).

Résumé

Placée sous le signe de la fragmentation liquide, cette thèse met l'emphase sur une série d'étapes pouvant, d'un film suspendu, mener à une assemblée de gouttes : déstabilisation, rupture puis fragmentation. Elle prend appui sur des expériences originales, analysées à l'aide de modèles à la portée générale.

En guise de prologue, capillarité, cisaillement et viscosité sont discutées à travers l'étude de la déstabilisation Marangoni d'un filament d'huile visqueuse déposé à la surface de l'eau. La mise en mouvement du filament, pilotée par une différence de tensions de surface, produit une cascade critique auto-similaire, accélérée jusqu'à la dilution complète de l'huile, miscible à l'eau.

Sur un film, l'effet Marangoni créé par un déficit localisé de tension de surface, dont le support (la température ou un soluté) diffuse, engendre sa déstabilisation, étudiée au deuxième chapitre. L'analyse linéaire exhibe une échelle de temps inertielle basée sur le cisaillement surfacique, sur laquelle s'établit un écoulement interstitiel, caractérisé expérimentalement. Le scénario introduit un nombre de Péclet, critère pour la rupture spontanée des films épais.

Les conséquences sur la stabilité finale du film sont explorées au troisième chapitre, avec la revue des possibles régularisations. La dynamique de rupture est interprétée en termes de choc.

Enfin, suivant la rupture d'un film en divers points, la collision de cylindres liquides est isolée en tant que mécanisme individuel de fragmentation. L'analyse détaillée de l'impact révèle la transition entre deux régimes, vers des gouttes de plus en plus fines.

Mots-clés Fragmentation liquide, capillarité, effet Marangoni

Abstract

This thesis deals primarily with liquid films fragmentation. It consists, thanks to quantitative and original experiments, in the transformation of a free suspended film into a collection of droplets: destabilization, rupture, and fragmentation.

In a prologue, notions of capillarity, momentum transfer and viscosity are introduced by the Marangoni-driven destabilization of a thin thread of viscous oil on water. The difference of surface tension feeds an accelerated, critical, self-similar cascade which ends up with the complete dilution of oil into water.

When applied to a free film, the Marangoni effect driven by a localized deficit of surface tension, whose carrier (temperature or a solute) is diffusing into the liquid, destabilizes it (chapter two). The linear instability analysis points out the crucial role of an inertial timescale based on the surface shear stress. Experiments validate the prediction of an interstitial flow, which digs out the film in the case of a surface tension deficit. These observations offer new insights into a long-standing problem, namely the spontaneous nucleation of holes on planar liquid films.

The third chapter investigates the consequences of the linear instability, as far as the film final stability is concerned, reviewing possible regularizations. The rupture dynamics is described within the framework of shocks.

In the final chapter, the collision of liquid cylinders is identified as an individual mechanism for liquid fragmentation. The impact dynamics is analyzed, leading to two principal fragmentation regimes. The onset to the splashing one, which produces fine and fast droplets, is described.

Keywords Liquid fragmentation, capillarity, Marangoni effect