

## **Thèse de doctorat**

**Pour obtenir le grade de Docteur de**

**l'Université de VALENCIENNES ET DU HAINAUT-CAMBRESIS**

**et de l'Université LIBANAISE DE BEYROUTH**

Électronique. Acoustique et télécommunications

**Présentée et soutenue par Nadine, SAAD.**

**Le 28/09/2012, à Valenciennes**

**Ecole doctorale** : Sciences Pour l'Ingénieur (SPI)

**Equipe de recherche, Laboratoire** : Institut d'Electronique, de Micro-Electronique et de Nanotechnologie/Département d'Opto-Acousto-Electronique (IEMN/DOAE)

### **Caractérisation par ondes acoustiques des surfaces fonctionnalisées**

#### **JURY**

##### **Président du jury**

- Vereecke, Guy. Senior Scientist at Interuniversity Microelectronics Centre-Leuven-Belgique.

##### **Rapporteurs**

- Despaux, Gilles. Professeur à l'Université de Montpellier 2.

- Kazan, Michel. Professeur à l'Université Américaine de Beyrouth.

##### **Examineurs**

- Vereecke, Guy. Senior Scientist at Interuniversity Microelectronics Centre-Leuven-Belgique.

- Nongaillard, Bertrand. Professeur à l'Université de Valenciennes.

- Khoury, Antonio. Professeur à l'Université Libanaise - FSII.

- Zaouk, Doumit. Professeur à l'Université Libanaise - FSII.

##### **Directeur de thèse**

- Nassar, Georges. Maître de Conférences - HDR à l'Université de Valenciennes..

**Co-directeur de thèse** : Ajaka, Michel. Professeur à l'Université Libanaise - FSII.

**Co-encadrant** : Campistron, Pierre. Maître de Conférences à l'Université de Valenciennes.

**Co-encadrant** : Carlier, Julien. Maître de Conférences à l'Université de Valenciennes.

##### **Membres invités**

- Thomy, Vincent. Maître de Conférences à l'Université de Lille 1.

- Merheb, Bassam. Tutor at Open Arab University, Lebanon.

## Abstract

Surfaces functionalization can change the wetting properties of the surface depending on the physico-chemical properties of fluids. We restricted our study to the characterization by acoustic method of microstructured silicon-fluid interfaces for which a physical etching of a network of small pillars was achieved. The properties of these interfaces depend on the geometry of the etched microtextures, the fluid properties and the interaction between the fluid and the surface. Our objective was to compare modeling and measurements of reflection coefficients of ultrasonic waves at these interfaces. A first stage of work was to model the reflection coefficient of an ultrasonic wave incident on a microtextured surface depending on the state of the liquid on the surface. Two specific physical states have been studied: The state where the liquid remains at the top of the pillars (Cassie state) and when the liquid penetrates in the network of pillars (Wenzel state). Two numerical models were developed: one based on finite element modeling using COMSOL Multiphysics and the second numerical model uses an explicit finite difference method.

The experimental technique is based on a method measuring the electrical reflection coefficient of an ultrasonic transducer according to the frequency using a high frequency network analyzer. Signal processing allows deducing the reflection coefficient at the interface.

The original results obtained demonstrate that an acoustic compression wave is sensitive to the state of a liquid on a surface microtextured.

Keywords: Acoustics, ultrasonic microsystems, wettability, interfaces, microtexturization.

## Résumé

La fonctionnalisation des surfaces permet d'en modifier leur comportement vis-à-vis des propriétés physico-chimiques de fluides. Nous avons restreint notre étude à la caractérisation par méthode acoustique des interfaces microstructurées silicium-fluide pour lesquelles une gravure physique d'un réseau de piliers de petites dimensions a été réalisée. Les propriétés de ces interfaces vis-à-vis des liquides dépendent de la géométrie des gravures, des propriétés du fluide et des conditions d'interaction du fluide avec la surface. Notre objectif a été de confronter des modèles de comportement en terme de mouillabilité de ces surfaces aux mesures des coefficients de réflexion des ondes ultrasonores. Une première étape du travail a consisté à modéliser le coefficient de réflexion d'une onde ultrasonore incidente sur une surface microtexturée en fonction de l'état du liquide sur la surface. Deux états physiques caractéristiques ont été étudiés : l'état où le liquide reste au sommet des piliers (état Cassie) et celui où le liquide pénètre dans le réseau de piliers (état Wenzel). Deux modèles numériques ont été développés : le premier repose sur la modélisation par éléments finis utilisant COMSOL MULTIPHYSICS et le second modèle numérique utilise une méthode explicite aux différences finies. La technique expérimentale est fondée sur une méthode de mesure du coefficient de réflexion électrique d'un transducteur ultrasonore haute fréquence à l'aide d'un analyseur de réseau, qui permet après traitement d'en déduire le coefficient de réflexion à l'interface. Les résultats originaux obtenus démontrent qu'une onde acoustique de compression est sensible à l'état d'un liquide sur une surface microtexturée.

Mots clés : Acoustique, microsystèmes ultrasonores, mouillabilité, interfaces, microtexturation.

**"Le vrai point d'honneur n'est pas d'être toujours dans le vrai. Il est d'oser, de proposer des idées neuves, et ensuite de les vérifier"**

**Pierre Gilles-De Gennes, Prix Nobel de physique en 1991, (1932-2007)**

*Joujou (ma maman chérie)...  
Je te dédie cette thèse, comme le fruit de ta persévérance,  
mille mercis.*

# *Remerciements*

Voilà, c'est fait ! Ces trois années... ben deux ans et demi de thèse sont déjà terminés.

Cette thèse en cotutelle entre l'Université de Valenciennes et du Hainaut Cambrésis en France et l'Université Libanaise au Liban s'est déroulée dans les laboratoires de l'IEMN-DOAE (France) et le laboratoire de physique appliquée LPA (Liban).

Tout d'abord, mes remerciements s'adressent aux personnes qui m'ont proposé le sujet de thèse et qui m'ont encadré tout au long de ces années d'étude :

Que Monsieur Georges Nassar, mon Directeur de Recherche à l'IEMN-DOAE, reçoive toute l'expression de ma reconnaissance pour m'avoir proposé ce sujet de recherche, et, pour tout son dynamisme et ses compétences scientifiques qui m'ont permis de mener, avec une large marge de liberté, à bien ce travail de recherche.

Plus qu'un encadrant, une sorte de mentor, je te remercie Monsieur Bertrand Nongaillard pour tous tes conseils durant cette période. Tu m'as apporté, au travers de nos discussions, une compréhension plus approfondie des divers aspects du sujet. Je salue ton dévouement pour la recherche mais également tes très grandes qualités humaines.

Je remercie chaleureusement mon encadrant Monsieur Pierre Campistron pour ses nombreux conseils, sa bonne humeur, sa disponibilité, et pour toute son aide. Ma thèse ne verrait jamais le jour sans lui. Merci infiniment.

Je remercie Monsieur Julien Carlier de me faire bénéficier de son expertise que ce soit dans la fabrication ou pour les caractérisations nanomatériaux. Je le remercie pour sa contribution très intéressante à ce travail ainsi que pour la qualité de ses explications.

Je tiens à remercier Monsieur Michel Ajaka mon directeur de thèse au Liban pour ses nombreux conseils avisés, et à saluer sa personnalité à la fois sympathique, sérieuse et surtout modeste.

J'ai vraiment eu de la chance d'avoir plusieurs encadrants au cours de cette thèse, travailler sous leur direction a été une chance et une expérience que je souhaite à chaque étudiant. Merci bien !!

Je remercie Monsieur le Professeur Gilles Despau d'avoir accepté d'être rapporteur de ma thèse.

Je remercie Monsieur le Directeur de recherche Guy Vereecke d'avoir accepté d'être examinateur.

Je remercie Monsieur le Professeur Michel Kazan d'avoir accepté d'être rapporteur de ma thèse.

Je remercie Monsieur le Professeur Antonio Khoury d'avoir accepté d'être examinateur.

Je remercie Monsieur le Docteur Doumit Zaouk d'avoir accepté d'être examinateur.

Je remercie vivement Monsieur Vincent Thomy pour son aide, ses conseils précieux ainsi que sa présence au jury.

Ce travail n'aurait pas pu être mené à bien sans le soutien de Monsieur Bassam Merheb, que ce soit pour les modélisations ou pour les conseils scientifiques.

Je désire également exprimer ma reconnaissance à Hossep Achdjian pour son soutien permanent et encouragement incessant.

J'exprime toute mon amitié à, Jinying Zhang pour les fructueux échanges quotidiens, Jiaming Gao pour l'aide apportée avec la fabrication des transducteurs, et je les remercie infiniment.

Je remercie Monsieur Renaud Dufour et Monsieur Maxime Harnois qui ont fabriqué (microtexturé) les échantillons utilisés durant cette thèse.

Toute mon amitié à Frédéric Faëse avec qui j'ai partagé le bureau 007 pendant cette période, et avec qui j'ai eu tant de discussions fructueuses. Tu as été un ami très cher sur lequel j'ai pu compter à toute heure pour me soutenir et me remotiver lors des moments les plus difficiles.

Merci aussi à tous les thésards et amis du laboratoire qui se reconnaîtront ici. Je leur exprime ma profonde sympathie et leur souhaite beaucoup de bien.

Merci à tous les membres du Laboratoire pour m'avoir permis d'effectuer cette thèse dans de très bonnes conditions.

Je souhaite aussi remercier mes amis, en particulier Amina Medjdoub, Yamen Issa, Mazen Aouad, Laila Sakkila Chakour et Hicham Chakour, pour leurs encouragements lors de ce séjour dans le Nord.

Je serai à jamais reconnaissante à Lola Carle et sa famille pour leurs qualités humaines. Lola... tu étais la maman qui me manquait !!

Je tiens tout particulièrement à remercier mon amour Richy qui m'a soutenu et accompagné durant les moments les plus difficiles, je le remercie pour sa patience.

Evidemment, ces remerciements ne seraient complets sans la mention de ma famille, Merci à mes parents pour m'avoir donné le goût des études, pour leur appui sans faille, pour la fierté qu'on peut lire dans leurs yeux, Merci à mon grand frère Bob pour avoir joué le rôle d'ainé durant les moments les plus difficiles, à la gentillesse et le soutien de sa femme Sara et enfin à ma petite sœur Tina pour ses encouragements, son amour et son sourire qui a ensoleillé le ciel gris de Valenciennes. Je vous aime tous très fort.

# Table des matières

<b>Introduction générale</b>	<b>1</b>
<b>1 Etat de l'art</b>	<b>3</b>
1.1 Adhésion et mouillage	4
1.1.1 Définition	4
1.1.2 Mécanisme d'adhésion directe	4
1.2 L'hydrophobicité	9
1.2.1 Définition	9
1.2.2 La Superhydrophobicité	10
1.2.3 Grandeurs physiques concernées : angle d'avancée, angle de reculée, hystérésis de l'angle de contact	11
1.3 Surfaces superhydrophobes	13
1.3.1 Rugosités et microtexturations	13
1.3.2 Les modèles de Wenzel et de Cassie-Baxter	13
1.3.3 Domaines d'applications	16
1.4 Caractérisation d'une goutte sur une surface	17
1.4.1 Caractérisations macroscopiques optiques	17
1.4.2 Approche à l'échelle microscopiques des interfaces.	18
1.5 Conclusion	23
<b>2 Les Ultrasons : Principes généraux et Applications</b>	<b>24</b>
2.1 Généralités sur les ondes ultrasonores	24
2.1.1 Les ondes de volume	24
2.1.2 Les ondes de surface	25
2.1.3 Choix de l'onde acoustique	27
2.1.4 Génération d'ondes ultrasonores	28
2.2 Notions d'Elasticité	29
2.2.1 Équation de propagation des ondes planes dans un milieu anisotrope	30
2.2.2 Équation de propagation des ondes planes dans un fluide	31
2.3 Grandeurs caractéristiques	32
2.3.1 Impédance ultrasonore	32
2.3.2 Coefficients de Réflexion et de transmission	32
2.4 Conclusion	44

<b>3</b>	<b>Approches Numériques</b>	<b>45</b>
3.1	Propagation dans un cylindre . . . . .	45
3.1.1	Théorie . . . . .	45
3.2	Introduction aux approches numériques . . . . .	53
3.3	Equations de propagation des ondes élastiques . . . . .	54
3.4	Approche par différences finies . . . . .	55
3.4.1	Principe de la méthode . . . . .	55
3.4.2	Définition de la structure étudiée . . . . .	57
3.4.3	Equations et discrétisation . . . . .	59
3.4.4	Conditions d'application . . . . .	62
3.4.5	Les conditions initiales . . . . .	63
3.4.6	Source d'excitation . . . . .	63
3.4.7	Algorithme de récurrence . . . . .	64
3.4.8	Les conditions aux limites . . . . .	64
3.4.9	Résultats . . . . .	64
3.5	Conclusion . . . . .	82
<b>4</b>	<b>Dispositifs expérimentaux, résultats et interprétations</b>	<b>83</b>
4.1	Etapas de réalisation des échantillons . . . . .	83
4.1.1	Microtexturation . . . . .	84
4.1.2	Transducteurs . . . . .	87
4.2	Dispositif de mesure expérimental . . . . .	92
4.2.1	Paramètre mesuré . . . . .	92
4.2.2	Traitement de signal . . . . .	94
4.2.3	Banc de mesure. Procédure d'initialisation . . . . .	100
4.3	Résultats expérimentaux, analyse et interprétations . . . . .	104
4.3.1	Introduction . . . . .	104
4.3.2	Protocole expérimental suivi . . . . .	104
4.3.3	Exploitation des résultats expérimentaux . . . . .	105
4.3.4	Analyse . . . . .	121
	<b>Conclusion</b>	<b>122</b>
	<b>Annexe A Approche par éléments finis</b>	<b>124</b>
	<b>Annexe Approche par éléments finis</b>	<b>124</b>
A.1	Principe de base . . . . .	124
A.2	Logiciel de simulation . . . . .	125
A.3	Formalisme de COMSOL . . . . .	127
A.3.1	Modules et équations . . . . .	127
A.3.2	Modèle de source d'excitation . . . . .	127
A.3.3	Maillage . . . . .	129
A.4	Quantification des grandeurs acoustiques . . . . .	129
A.4.1	Propagation des ondes longitudinale et transversale . . . . .	129
A.4.2	Cas réel : Interface substrat/eau avec une surface microtexturée . . . . .	131
A.5	Validation du modèle . . . . .	133

A.6 Résultats . . . . .	135
<b>Bibliographie</b>	<b>138</b>

# Table des figures

1.1	Interface solide/air. . . . .	7
1.2	Mouillage total : le liquide s'étale complètement sur le substrat sous forme d'un film. . . . .	7
1.3	Mouillage partiel : le liquide forme une goutte d'angle de contact $\theta_e$ avec le substrat. La ligne de séparation S-L-G définit la ligne de contact(ligne triple). . . . .	8
1.4	Représentation vectorielle de Young de l'équilibre d'une goutte d'aluminium sur un substrat d'alumine en (a), pour une température de $700^\circ C$ (liquide mouillant), et en (b), pour une température de $1\ 200^\circ C$ (liquide non mouillant). . . . .	10
1.5	Goutte d'eau sur une surface hydrophobe : on observe bien un comportement superhydrophobe (angle de $170^\circ$ ). . . . .	10
1.6	Image générée par ordinateur de l'effet lotus avec deux gouttes d'eau reposant sur les microstructures (angle voisin de $180^\circ$ ). . . . .	11
1.7	Angle d'avancée $\theta_a$ et angle de reculée $\theta_r$ . . . . .	12
1.8	Hystérésis de l'angle de contact : cette goutte statique est très déformée par l'hystérésis. . . . .	12
1.9	Une goutte d'eau posée sur une plume de canard. . . . .	13
1.10	Les deux états d'une goutte d'eau posée sur un substrat rugueux et hydrophobe : Wenzel(a) ; Cassie(b). . . . .	13
1.11	Une goutte d'eau posée sur une plume de canard. . . . .	14
1.12	Déplacement infinitésimal de la ligne de contact sur une surface mixte. . . . .	15
1.13	L'effet autonettoyant. . . . .	16
1.14	La méthode de "la goutte posée" (Sessile drop fitting). . . . .	17
1.15	Méthode de l'équation de cercle (Cercle fitting). . . . .	18
1.16	Représentation schématique du dispositif expérimental. Une goutte en évaporation est observée simultanément avec : i) une caméra CCD standard équipée d'un objectif macro et ii) avec un microscope inversé. . . . .	20
1.17	Configuration de diffraction avec l'échantillon immergé dans un contenant en verre rempli d'eau. L'agrandissement dans le coin supérieur gauche montre une vue optique d'échantillons dans l'air indiquant la périodicité $T$ et la largeur $w$ des rainures. Le coin du bas montre une image de microscopie optique dun échantillon clivé montrant une vue en coupe des rainures. Les lignes en pointillée indiquent schématiquement les positions des ménisques d'eau dans l'expérience. . . . .	21
2.1	La figure de gauche présente le vecteur d'onde (direction de propagation de l'onde) parallèle au vecteur déplacement dans le cas d'une onde longitudinale. La figure de droite présente le vecteur déplacement dans le cas d'une onde sinusoïdale. . . . .	25
2.2	Représentation schématique du plan de polarisation $(u_1, u_2)$ dans l'espace $x, y, z$ des ondes de Rayleigh en milieu semi-infini élastique homogène et isotrope. . . . .	26
2.3	Représentation de la propagation d'une onde de Rayleigh dans un solide semi-infini. . . . .	26

2.4	Déplacements acoustiques pour une onde de Lamb. . . . .	27
2.5	Loi de Snell-Descartes. Les projections, sur le plan de séparation des deux milieux, des vecteurs des ondes réfléchies et transmises et sont égales à celle du vecteur de l'onde incidente. . . . .	34
2.6	Une jonction silicium-silice. Une onde incidente quasi-transversale dans le cristal engendre, par réfraction, une onde transversale et une onde longitudinale dans la silice et, par réflexion, une onde quasi transversale et une onde quasi-longitudinale dans le silicium. . .	35
2.7	Interface solide/solide en incidence normale. . . . .	36
2.8	Interface solide/fluide en incidence normale. . . . .	38
2.9	Directions de propagation et Polarisation d'une onde TV (à gauche) et d'une onde (TH). . . . .	39
2.10	Interaction d'une onde incidente avec une interface séparant deux milieux isotropes. a) onde incidente L ou TV, b) onde incidente TH (Les polarisations sont indiquées en gras). . . . .	39
2.11	Réflexion d'une onde longitudinale incidente à l'interface solide/air en incidence oblique. . . . .	40
2.12	Réflexion d'une onde longitudinale incidente à l'interface solide/liquide en incidence oblique. . . . .	41
2.13	Interaction d'une onde incidente avec une interface séparant deux milieux dont l'un au moins est anisotrope. a) milieu incident anisotrope, b) milieu incident fluide. . . . .	42
3.1	Courbes de dispersion : $\omega a/c_s$ fonction de $k^{(n)}$ a. Mode 1 : bleu ; mode 2 : vert ; mode 3 : rouge ; mode 4 : cyan ; mode 5 : magenta ; mode 6 : jaune. . . . .	48
3.2	Vitesses de groupes $v_g^{(n)}$ (m/s) fonction de la fréquence [GHz]. Mode 1 :bleu ; mode 2 : vert ; mode 3 : rouge ; mode 4 : cyan ; mode 5 : magenta ; mode 6 : jaune. . . . .	49
3.3	Déplacement $u_r^{(n)}$ et $u_z^{(n)}$ en unité arbitraire fonction du rayon ( $\mu m$ ) pour les 3 premiers modes et à la fréquence de 800 MHz. Mode 1 :bleu ; mode 2 : vert ; mode 3 : rouge. . . . .	50
3.4	Trajectoires de l'extrémité des vecteurs d'ondes multipliés par le rayon du cylindre de 500MHz (points) à 1.5 GHz. Bleu et rouge : 1er mode longitudinal et transversal ; cyan et magenta : 2ème mode longitudinal et transversal ; noir et jaune 3ème mode longitudinal et transversal. . . . .	51
3.5	Courbes de dispersion : $\omega a/c_s$ fonction de $k^{(n)}$ a. Mode 1 :bleu et vert ; mode 2 : rouge et marron ; mode 3 : cyan et jaune. . . . .	51
3.6	Comparaison entre la méthode des différences finies et la méthode des éléments finis en termes de démarches. . . . .	54
3.7	Structure 3D du modèle. . . . .	58
3.8	Structure 2D du modèle en FDTD. . . . .	58
3.9	Grille $i_{max} \times j_{max}$ . . . . .	61
3.10	Organigramme de récurrence pour le calcul des champs de déplacements à l'instant $t_{n+1}$ à partir de l'instant $t_n$ . . . . .	64
3.11	Signal réfléchi sur une surface lisse avec et sans présence d'eau. . . . .	66
3.12	Représentation schématique de la structure de piliers 2D. . . . .	67
3.13	Signal réfléchi du premier modèle texturé (de paramètres suivants : largeur des piliers = $a = 15 \mu m$ , hauteur des piliers= $h = 20 \mu m$ et espacement = $b = 15 \mu m$ ). . . . .	68
3.14	Comparaison des signaux réfléchis par une surface lisse et une surface texturée. . . . .	68
3.15	Retard entre les deux échos réfléchis. . . . .	69
3.16	Retard entre les deux échos pour une hauteur $2h$ . . . . .	69
3.17	Influence de la hauteur des piliers sur l'amplitude du 2nd écho réfléchi. . . . .	70
3.18	Champ de déplacement dans les piliers à $t=46,2$ ns. . . . .	71
3.19	Champ de déplacement dans les piliers à $t=48,6$ ns. . . . .	72

3.20	Champ de déplacement dans les piliers à $t=51$ ns. . . . .	73
3.21	Champ de déplacement dans les piliers à $t=52$ ns. . . . .	74
3.22	Champ de déplacement dans les piliers à $t=58$ ns. . . . .	75
3.23	Champ de déplacement dans les piliers à $t=60$ ns. . . . .	76
3.24	Influence des surfaces réfléchissantes supérieure et inférieure sur les amplitudes des ondes réfléchies.(Structures (a,b,h) et (2a,b,h)) . . . . .	77
3.25	Influence de la pénétration de liquide sur l'amplitude des échos (Géométrie (a,b,h)). . . . .	78
3.26	Echos réfléchis pour des interfaces Si/eau mixtes (modèle FDTD). . . . .	80
4.1	Etapes de microtexturation des échantillons. . . . .	84
4.2	Dispositif expérimental de dépôt par spin coating. . . . .	85
4.3	Bâti de gravure ICP-DRIESTS MPO 562. . . . .	86
4.4	Images de la surface de l'échantillon obtenues par un microscope électronique à balayage(a) et par un microscope optique (b). . . . .	87
4.5	Procédé de fabrication des transducteurs. . . . .	88
4.6	Schéma de principe de la pulvérisation cathodique. . . . .	89
4.7	Principe du procédé de pulvérisation cathodique magnétron. . . . .	90
4.8	Bâtis de dépôt : à gauche : évaporation ; à droite : pulvérisation magnétron. . . . .	91
4.9	Image d'un réseau de transducteurs de $100\mu m$ de diamètre obtenue par microscopie optique. . . . .	92
4.10	Notation utilisée dans le cas d'un quadripôle. . . . .	93
4.11	Notation utilisée dans le cas d'un dipôle. . . . .	93
4.12	Dispositif de mesure. . . . .	94
4.13	Paramètre $S_{11}$ mesuré avec l'analyseur de réseau. . . . .	95
4.14	Transformée de Fourier inverse de $S_{11}$ . . . . .	96
4.15	Impédance électrique des transducteurs. . . . .	96
4.16	Représentation du paramètre $S_{11}^{ac}(t)$ . . . . .	97
4.17	Réflexion au sommet des piliers et sur le plan situé à leur base (que nous appellerons bas de piliers dans la suite). . . . .	98
4.18	Transformée de Fourier inverse de $S_{11}$ . . . . .	98
4.19	Réflexions des ondes acoustiques à l'interface microtexturée. . . . .	99
4.20	(a) interface de référence ; (b) interface à caractériser. . . . .	100
4.21	Positionnement de la pointe de mesure. . . . .	101
4.22	Analyseur de réseau. . . . .	101
4.23	Coïncidence de l'axe de la caméra d'observation de la goutte avec l'axe de mesure acoustique. . . . .	102
4.24	Banc de mesure. . . . .	103
4.25	Diagramme d'écho. . . . .	105
4.26	Image de la "piscine". . . . .	106
4.27	Déplacement de la ligne de contact et remplissage de la surface texturée après ajout d'alcool. Passage de l'état Cassie à l'état Wenzel. . . . .	108
4.28	Dispositif microfluidique utilisé. . . . .	109
4.29	Système microfluidique pour la production de gouttes. . . . .	109
4.30	Images données par les différentes caméras. . . . .	110
4.31	Mouillage d'une zone présentant des défauts de surface. . . . .	112
4.32	Séquence d'images montrant la transition de l'état Cassie à l'état Wenzel lors d'ajout d'alcool. . . . .	113
4.33	Coefficients de réflexion $r_1$ aux bas des piliers et $r_2$ aux sommets des piliers. . . . .	114

4.34	Zone d'étude. . . . .	115
4.35	Image de la goutte initialement déposée. . . . .	115
4.36	Séquence d'images montrant l'évaporation d'une goutte d'eau posée sur la surface de silicium. Les images sont prises toutes les 2-3 minutes environ et la totalité de l'expérience dure une heure. L'image (8) montre la déformation de la goutte et sa transition de l'état Cassie à l'état Wenzel. . . . .	116
4.37	Coefficients de réflexion $r_1$ au bas des piliers et $r_2$ au sommet des piliers. . . . .	117
4.38	Trace laissée par l'évaporation de la goutte d'eau sur la surface de silicium. . . . .	117
4.39	Dispositif d'électromouillage. . . . .	118
4.40	Electromouillage : Passage de l'état Cassie à l'état Wenzel. . . . .	118
4.41	Coefficients de réflexion $r_1$ aux bas des piliers et $r_2$ au sommet des piliers lors d'une expérience d'électromouillage. . . . .	119
4.42	Avancée du front mouillant sous EWOD. . . . .	120
4.43	les coefficients de réflexion $r_1$ et $r_2$ respectivement au bas et au sommet des piliers, pour les états Cassie et Wenzel. La ligne horizontale en pointillés correspond à $r = 0,86$ , ce qui est la valeur théorique pour la réflexion sur une interface silicium /eau. . . . .	121
A.1	Diagramme de modélisation utilisant COMSOL 3.5a. . . . .	126
A.2	Vecteur unitaire sur $\partial\Omega$ :(a)modèle 2D ; (b) modèle 3D. . . . .	128
A.3	Exemple d'éléments de maillage éléments finis. . . . .	129
A.4	1ère géométrie simulée. Propagation des ondes longitudinale et transversale. . . . .	130
A.5	Propagation d'une onde longitudinale. . . . .	131
A.6	Propagation d'une onde transversale. . . . .	131
A.7	Géométries du modèle. . . . .	132
A.8	Configurations étudiées. . . . .	132
A.9	Représentation du vecteur de Poynting. . . . .	133
A.10	Lignes de champ du vecteur de Poynting. . . . .	134
A.11	Flux du vecteur de Poynting cumulé au cours du temps. . . . .	134
A.12	Premier paramètre étudié. . . . .	135
A.13	Déplacement suivant l'axe y en fonction du temps au point $(x = 0, y = 10 \mu m)$ pour deux géométries étudiées. . . . .	136
A.14	Déplacement suivant l'axe y en fonction du temps au point $(0, 10\mu m)$ pour un pas de calcul 30 fois plus petit. . . . .	137

# Liste des tableaux

3.1	Tableau de coefficients de réflexion attendus en première approximation (cas d'une surface plane) pour des interfaces $S_i$ /air et $S_i$ /eau. . . . .	78
3.2	Tableau de coefficients de réflexion au bas et au sommet des piliers, respectivement, pour différents états de mouillage (Cassie, Wenzel et Composite) de la géométrie (a,b,h). . . . .	79
3.3	Tableau de coefficients de réflexion au bas et aux sommets des piliers, respectivement, pour différents états mixtes de mouillage de la géométrie (a,b,h). . . . .	80
3.4	Tableau de coefficients de réflexion au bas et au sommet des piliers, respectivement, pour différents états de mouillage (Cassie et Wenzel) de la géométrie (a,b,2h). . . . .	81
3.5	Tableau de coefficients de réflexion au bas et aux sommets des piliers, respectivement, pour différents états de mouillage (Cassie et Wenzel) de la géométrie (2a,b,h). . . . .	81
3.6	Tableau de coefficients de réflexion au bas et aux sommets des piliers, respectivement, pour différents états de mouillage (Cassie et Wenzel) de la géométrie (a,2b,h). . . . .	81

# Introduction générale

Dans de nombreuses applications technologiques, les phénomènes physiques en jeu aux interfaces jouent un rôle majeur. Dans le domaine industriel le développement de polymères pour la réalisation de collages a largement contribué à l'accroissement des études sur les mécanismes physico-chimiques intervenant dans les phénomènes d'adhésion de surfaces.

Les enjeux économiques liés aux retombées industrielles de ces études sont considérables, en particulier dans le domaine des transports terrestres et aéronautiques où les structures collées sont de plus en plus nombreuses. Les développements importants des micro et nanotechnologies et de leurs applications plus particulièrement dans les domaines des sciences du vivant et de la chimie ont contribué à susciter l'intérêt scientifique pour la compréhension phénomènes physiques ou chimiques des interfaces solide - liquide ou solide - cellules biologiques. Ce thème de recherche particulièrement multidisciplinaire a contribué au développement des interfaces fonctionnalisées chimiquement ou mécaniquement pour le développement des laboratoires sur puces en particulier dans leurs applications à la biologie.

Plusieurs fonctions utilisant le contrôle des propriétés des interfaces ont ainsi été développées dans les laboratoires sur puce : on peut citer la fonctionnalisation chimique par dépôt de molécules présentant une affinité chimique avec une autre molécule cible au une cellule biologique (brins d'ADN, . . .) et d'autre part la texturation physique des surfaces de façon à contrôler l'écoulement d'un fluide dans un canal.

De nombreuses méthodes de caractérisation des propriétés d'interfaces ont été proposées. Elles sont ou trop locales telles que la caractérisation par microscope à force atomique ou trop macroscopiques telles que la mesure de l'angle de goutte pour caractériser les propriétés d'hydrophobicité d'une surface.

C'est la raison pour laquelle nous avons proposé dans ce travail l'utilisation d'une méthode acoustique de caractérisation des propriétés d'interfaces afin d'évaluer son potentiel à caractériser des surfaces texturées de façon à contrôler l'écoulement de fluides sur ces surfaces. En effet par le choix de la géométrie et de la fréquence de l'élément actif acoustique il est possible de caractériser localement une interface sous un fluide ou un milieu viscoélastique tel qu'une cellule biologique.

L'utilisation d'une onde acoustique haute fréquence pour la caractérisation locale des propriétés de mouillabilité d'une surface texturée est un sujet original dans lequel nous nous attacherons à évaluer

les potentialités de la méthode. Ceci passe par la proposition et la validation d'un modèle d'interaction d'une onde acoustique avec une surface texturée.

Dans le premier chapitre de ce travail, et après une introduction sur les phénomènes d'adhésion et de mouillabilité, nous ferons un tour d'horizon des approches ainsi qu'une introduction sur les principaux travaux qui traitent des caractérisations des différentes interfaces et plus spécifiquement des interfaces solides-fluides.

Le deuxième chapitre abordera les notions sur la propagation des ondes ultrasonores dans les milieux fluides ou solides et en présence d'une interface.

Au chapitre 3, nous proposerons une approche par éléments finis (FEM) via COMSOL MULTIPHYSICS et une approche par différences finies (FDTD) développée en FORTRAN afin de modéliser l'interaction des ondes acoustiques avec les surfaces texturées.

Au chapitre 4, nous présenterons les technologies mises en œuvre pour la texturation de surfaces et la fabrication des transducteurs, avant d'analyser le comportement ultrasonore de la surface microtexturée en fonction de l'état du liquide sur la surface.

Enfin, nous comparerons les résultats du modèle et expérimentaux avant de tirer les conclusions de ce travail.

# Chapitre 1

## Etat de l'art

Les propriétés d'interfaces sont déterminantes dans de nombreuses applications. Les développements de colles polymères performantes ont permis de substituer un collage dans de nombreuses applications aux techniques d'assemblage par rivetage lourdes à mettre en œuvre. C'est le cas de l'aéronautique, l'industrie de l'automobile, etc.

La qualité du collage dépend à la fois des propriétés physico-chimiques de surface (dont la mouillabilité) et des propriétés de rugosité de l'interface.

Dans ce cas, lorsqu'on souhaite augmenter les propriétés d'adhérence on recherchera à optimiser le paramètre de rugosité et l'affinité chimique du polymère vis-à-vis des matériaux à coller. Ce sont le plus souvent des interfaces solide-solide qui sont recherchées.

Une autre application dans l'industrie agroindustrielle réside dans la fonctionnalisation de surfaces d'emballages de produits viscoélastiques de façon à minimiser la rétention de produits ou de micro-organismes pathogènes. Cette dernière application met en jeu clairement les propriétés de mouillabilité des surfaces et dans ce cas on recherchera plutôt des propriétés hydrophobes ou oléophobes.

Enfin dans les laboratoires sur puce le déplacement de gouttes ou de fluides continus sur les surfaces doit s'accompagner de pertes de produit minimales de façon à éviter la contamination entre échantillons ou de façon à retenir des microorganismes dans une zone de mesure. Dans le premier cas la texturation de la surface permettra de rendre la surface superhydrophobe alors qu'une fonctionnalisation chimique de la surface dans le dernier cas permettra d'augmenter l'affinité locale du micro-organisme avec la surface de l'hôte.

Les propriétés d'adhésion et de mouillabilité sont donc extrêmement dépendantes et ont fait l'objet de développements scientifiques nombreux. Nous allons dans le chapitre qui suit présenter les propriétés physiques concernées et leurs différentes méthodes de mesure.

## 1.1 Adhésion et mouillage

### 1.1.1 Définition

On peut définir l'adhésion comme étant un phénomène interfacial dans lequel des forces physiques et/ou chimiques se créent entre deux surfaces mises en contact. En d'autres termes, la force d'adhésion est une mesure du degré d'attraction entre deux surfaces et c'est donc l'étude des mécanismes qui participent à la formation d'une interface plus ou moins forte et stable entre deux matériaux. Néanmoins, l'adhérence est la propriété de résistance à la rupture de ces deux surfaces. C'est un phénomène qui s'oppose au glissement de deux surfaces en contact. La notion d'adhésion est souvent relative à l'interface entre deux solides élastiques ou deux milieux viscoélastiques.

La mouillabilité d'une surface n'est en fait qu'une variante de cette propriété dans son application aux interfaces liquides-solides. Elle caractérise l'adhésion d'un liquide à la surface d'un solide.

### 1.1.2 Mécanisme d'adhésion directe

La compréhension du phénomène d'adhésion a fait l'objet de nombreux travaux compte tenu de l'importance grandissante des structures collées dans les domaines de production d'automobile, l'aéronautique, la biologie, le packaging,...

On peut classer les théories développées afin de caractériser l'adhésion entre milieux en 6 catégories :

- La théorie mécanique ;
- La théorie physique de l'adsorption ;
- La théorie de la diffusion ;
- La théorie de la liaison chimique ;
- La théorie électrique ;
- La théorie thermodynamique.

#### L'ancrage mécanique

En 1925, Mac Bain et Hopkins [1] ont été les premiers à proposer la théorie mécanique de l'adhésion. Leur modèle attribue l'origine de l'adhésion à l'accrochage du revêtement à la surface des substrats dans les aspérités, les cavités et les pores. Ils envisagent alors une interpénétration "macroscopique" entre les deux matériaux en contact. On remarque tout de suite que la rugosité ainsi que la topographie des surfaces jouent un rôle important dans le phénomène d'adhésion. Si on augmente la rugosité, on augmente par conséquent la surface de contact entre les deux surfaces : ceci permet d'augmenter le nombre de liaisons chimiques probables.

Une telle approche est valable, en partie pour les matériaux poreux (fibreuse) de rugosité importante, cependant, l'adhésion sur des surfaces parfaitement lisses suppose d'autres théories.

### La théorie physique de l'adsorption

Selon cette théorie, l'adhésion est le résultat de liaisons intermoléculaires qui ne se produisent qu'à très faibles distances entre les molécules du polymère et celles du substrat. Ces forces sont connues sous le nom de forces de Van Der Waals. Elles sont de trois types :

- Les forces d'orientation ou de Keesom : il s'agit d'interactions entre molécules polaires (interactions dipôle-dipôle). En effet, deux molécules polaires possédant des moments de dipôle non-nuls peuvent trouver des orientations favorables pour maximiser l'attraction entre elles. Les dipôles ont tendance à se réorienter et à s'aligner pour minimiser l'énergie. L'énergie d'interaction n'est efficace qu'à courte distance.
- Les forces d'induction ou de Debye : ces interactions se produisent entre des molécules possédant un moment dipolaire permanent et des molécules non polaires, entre molécule polaire et molécule apolaire (interaction dipôle-dipôle induit). L'importance de cet effet induit dépend de la grandeur du moment dipolaire de la molécule polaire, mais aussi de la polarisabilité de la molécule non polaire.
- Les forces de dispersion ou de London : ces interactions se produisent entre deux molécules apolaires (interaction dipôle induit-dipôle induit). Dans de telles molécules, les électrons qui constituent le nuage électronique sont perpétuellement en mouvement sur leur orbite. Ces fluctuations spatiales font que la molécule à chaque instant peut présenter un dipôle électrique instantané (bien que, en moyenne, le moment dipolaire soit nul). Il existera donc des interactions électrostatiques instantanées qui vont donner une cohésion aux liquides ou aux solides.

### La théorie de l'inter-diffusion

Cette théorie développée par Voyuskii (1971) [2] repose sur le phénomène de la diffusion. Elle est principalement utilisée pour décrire l'adhésion de deux matériaux de même nature. Pour les polymères, l'inter-diffusion se traduit par un enchevêtrement des macromolécules au niveau de l'interface des deux polymères assemblés. La diffusion est régie par des paramètres thermodynamiques (compatibilité entre les deux matériaux assemblés) et cinétiques (lié à la capacité des macromolécules à venir s'enchevêtrer dans l'autre matériau). On peut remarquer que ces interactions ne peuvent avoir lieu que lorsque les molécules des matériaux sont suffisamment mobiles. Dans ce cas, il existe une zone d'inter-diffusion mutuelle ou interphase, responsable de l'adhésion et dans laquelle les variations des propriétés physico-chimiques sont continues.

### La théorie de liaisons chimiques

La théorie chimique a été proposée par Buchan et Rae (1946) [3]. L'adhésion est basée ici sur la formation de liaisons chimiques iono-covalentes. Ces liaisons sont parmi les plus fortes (jusqu'à  $1000 \text{ kJ.mol}^{-1}$ ) : elles assurent aux assemblages collés une résistance à la rupture importante et une meilleure durabilité, contrairement aux liaisons de type Van der Waals ou liaisons Hydrogène.

### La théorie électrique

Pour expliquer le phénomène de l'adhésion, cette théorie, proposée par Deryagin (1948) [4] par le biais d'un transfert d'électrons, lié à des propriétés électroniques différentes d'un métal et d'un polymère. La double couche électrique formée suite à ce transfert est assimilée à un condensateur plan. Le travail nécessaire pour séparer ses faces est donné par la formule suivante :

$$W = \frac{K \sigma^2 h}{\varepsilon} \quad (1.1)$$

Avec  $K$  : constante ;  $\sigma$  : densité de charges ;  $h$  : distance séparant les charges et  $\varepsilon$  : constante diélectrique de la zone interfaciale.

### La théorie thermodynamique / Phénomène de Mouillage

Décrite par Sharpe et Schonhorn (1970) [5], cette théorie repose sur le phénomène de mouillage décrivant la capacité d'un liquide à se répandre plus ou moins rapidement sur la surface au contact de laquelle il se trouve au moment de la pose.

En effet, la formation d'interfaces nécessite de l'énergie ; "énergie interfaciale" notée  $\gamma$ . Celle-ci est définie comme l'énergie libre  $E$  à fournir pour augmenter la surface  $S$  d'une unité d'aire :

$$\gamma = \frac{\partial E}{\partial S} \quad (1.2)$$

Pour comprendre cette notion d'énergie d'interface on peut prendre l'exemple de l'interface solide/air (figure1.1). En fait, les molécules localisées au centre du solide sont entourées d'autres molécules de même nature. Ces molécules ont besoin d'une faible énergie d'attraction pour interagir avec les molécules à proximité. En revanche, à l'interface solide/air, les molécules du solide vont trouver des "voisins" du côté solide mais ne vont pas en trouver du côté de l'air. Cette organisation n'étant pas aussi favorable du point de vue énergétique, les molécules vont avoir tendance à s'entourer d'autant de molécules que possible et donc à minimiser l'aire occupée par l'interface solide/air(principe qui explique la forme sphérique d'une goutte), d'où l'existence de la tension de surface.

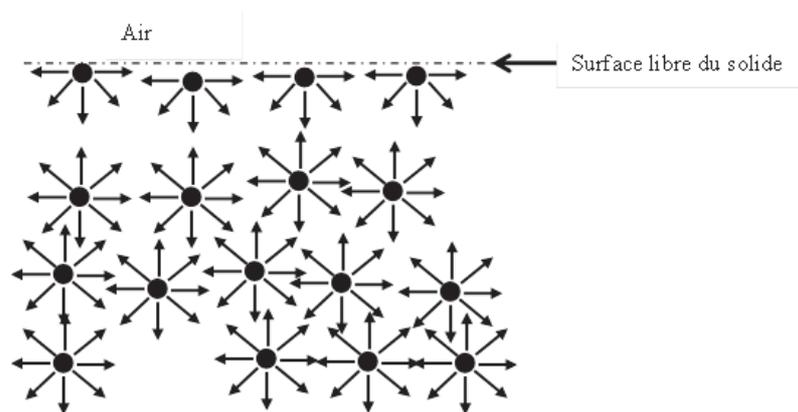


FIGURE 1.1 – Interface solide/air.

La technique dite de mouillage est basée sur l'exploitation de ces tensions de surface.

Le mouillage d'un liquide sur un solide désigne d'une part la forme que prend le liquide à la surface du solide (mouillage statique) et la façon dont il se comporte lorsqu'on essaye de le faire se déplacer (hystérésis, ancrage, mouillage dynamique). Lorsqu'on dépose un liquide à la surface d'un solide, celui-ci tend à se répandre sur la surface. On peut distinguer deux cas de figure :

### Le mouillage total

Le liquide couvrira toute la surface du solide. On peut expliquer cela grâce aux tensions de surface ou énergies de surface. Dans ce cas de figure, trois tensions de surface se distinguent :

1.  $\gamma_{S/L}$  : la tension de surface à l'interface solide/liquide,
2.  $\gamma_L$  : la tension de surface à l'interface liquide/air,
3.  $\gamma_S$  : la tension de surface à l'interface solide/air, (cas où le solide est seul et entouré d'air).

Il y a mouillage total lorsque la somme des tensions de surface solide/liquide et liquide/air est inférieure à la tension de surface solide/air :  $\gamma_{S/L} + \gamma_L < \gamma_S$

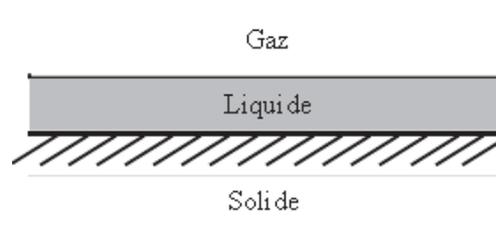


FIGURE 1.2 – Mouillage total : le liquide s'étale complètement sur le substrat sous forme d'un film.

## Le mouillage partiel

Lorsque la relation  $\gamma_{S/L} + \gamma_L < \gamma_S$  n'est pas respectée, ce n'est plus le cas d'un de mouillage total. On observe alors une couverture partielle de la surface du solide et la formation d'une goutte. Cette goutte trouve sa forme d'équilibre grâce aux tensions de surface décrites par la relation suivante (appelée équation de Young) :

$$\cos\theta_e = \frac{\gamma_S - \gamma_{S/L}}{\gamma_L} \quad (1.3)$$

Cet angle dépend alors de la nature du liquide, de l'environnement et de la surface.

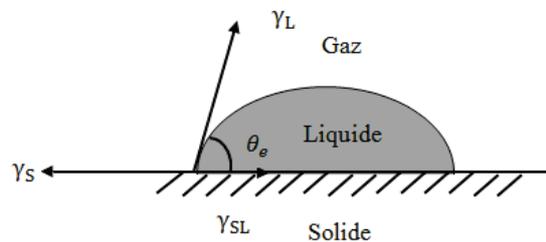


FIGURE 1.3 – Mouillage partiel : le liquide forme une goutte d'angle de contact  $\theta_e$  avec le substrat. La ligne de séparation S-L-G définit la ligne de contact (ligne triple).

Cependant l'énergie d'interaction de l'interface entre un solide et un liquide n'est en général pas connue. Des modèles ont été proposés dans le but d'approximer cette énergie interfaciale. Citons par exemple le modèle de Dupré qui consiste à considérer l'énergie d'adhésion avec la somme des énergies nécessaire à créer chacune des surfaces.

L'énergie d'adhésion de la goutte sur le solide est alors définie par la relation suivante :

$$W_a = \gamma_S + \gamma_L - \gamma_{S/L} \quad (1.4)$$

La mesure de l'angle de contact d'un liquide sur un solide permet de déterminer l'énergie d'adhésion. Les différents phénomènes liés à l'adhésion cités précédemment mettent en évidence l'importance cruciale du phénomène de mouillage. Ce phénomène interfacial qui gouverne la formation, l'organisation et la structuration de l'interface concerne non seulement l'adsorption et l'étalement des polymères mais aussi la cristallisation interfaciale, l'inter-diffusion, la bio-adhésion, l'adhésion cellulaire, . . . Dans ce cadre nous avons plus spécifiquement focalisé notre travail sur le caractère hydrophile ou hydrophobe d'une surface et donc sur la quantification des propriétés de mouillabilité d'une structure solide (substrat) à l'échelle micrométrique.

De nombreux travaux ont été développés dans le domaine des applications à la biologie afin d'étudier par exemple la capacité de polymères initialement non mouillables tels que les silicones d'hydroxyle à présenter après traitement une bonne mouillabilité. L'application directe en a été l'amélioration du confort de port des lentilles de contact.

Dans la suite, nous aborderons le principe physique du phénomène de mouillage en mettant l'accent sur des modèles de Wenzel et de Cassie-Baxter décrivant deux états extrêmes de la goutte sur une surface texturée. Nous discuterons ensuite les méthodes d'analyse qui permettent de caractériser ces états. Enfin, nous présenterons quelques exemples d'applications.

## 1.2 L'hydrophobicité

La recherche et la mise au point de surfaces hydrophobes, voire superhydrophobes, présentent des enjeux scientifiques et économiques importants mettant en jeu la science des interfaces. Normalement, de telles surfaces doivent avoir des propriétés autonettoyante ou de séchage qui les rendent fonctionnelles pour des applications pratiques vis-à-vis de nombreux produits ; par exemple, les applications médicales et alimentaires, les vêtements et les chaussures, les vitres, . . . tous ces matériaux sont rendus imperméables. Dans la littérature, les chercheurs ont montré qu'un traitement chimique pouvait changer les propriétés d'une surface en la rendant superhydrophile ou superhydrophobe. Des recherches récentes ont démontré la possibilité de rendre une surface hydrophile, hydrophobe voire même superhydrophobe par texturation.

### 1.2.1 Définition

L'hydrophobicité peut se définir comme le fait que le solide ne se mouille pas instantanément lorsqu'on applique de l'eau à sa surface. Un solide hydrophobe ralentira ou même bloquera le passage de l'eau.

L'hydrophobicité des surfaces est déterminée par l'angle de contact donné par la loi de Young :

$$\cos\theta = \frac{\gamma_S - \gamma_{S/L}}{\gamma_L} \quad (1.5)$$

Où  $\gamma_S, \gamma_{S/L}$  et  $\gamma_L$  désignent respectivement la tension superficielle des interfaces solide/gaz, solide/liquide et liquide/gaz.

Plus cet angle de contact est grand, plus la surface est hydrophobe. Les surfaces présentant un angle de contact inférieur à  $90^\circ$  sont qualifiées d'hydrophiles, celles dont l'angle de contact est supérieur à  $90^\circ$  sont qualifiées d'hydrophobes (Figure 1.4).

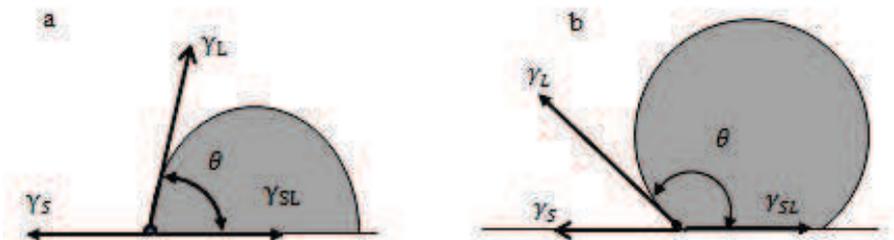


FIGURE 1.4 – Représentation vectorielle de Young de l'équilibre d'une goutte d'aluminium sur un substrat d'alumine en (a), pour une température de  $700^{\circ}\text{C}$  (liquide mouillant), et en (b), pour une température de  $1\ 200^{\circ}\text{C}$  (liquide non mouillant).

A signaler qu'une surface plane hydrophobe (dans un environnement d'air) ne peut présenter d'angles de contact supérieurs à  $120^{\circ}$ .

## 1.2.2 La Superhydrophobicité

Un matériau est dit superhydrophobe (angle de contact  $> 150^{\circ}$ ) lorsque sa surface est extrêmement difficile à mouiller (avec l'eau, et à priori avec n'importe quel liquide)(figure 1.5 [6])

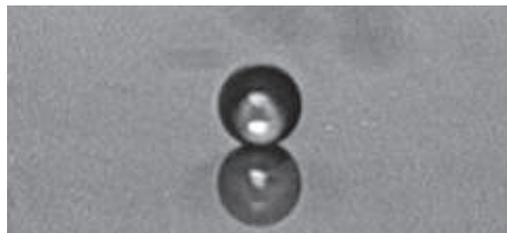


FIGURE 1.5 – Goutte d'eau sur une surface hydrophobe : on observe bien un comportement superhydrophobe (angle de  $170^{\circ}$ ).

La nature offre des exemples remarquables de surfaces superhydrophobes, notamment les feuilles de lotus sur lesquelles l'eau ruisselle sans jamais les mouiller. C'est pourquoi ce phénomène est dénommé aussi l'effet lotus (Figure 1.6). Cette observation a suscité de nombreux travaux afin de fabriquer des surfaces artificielles superhydrophobes aux propriétés autonettoyantes, en créant une surface rugueuse sur un matériau hydrophobe,

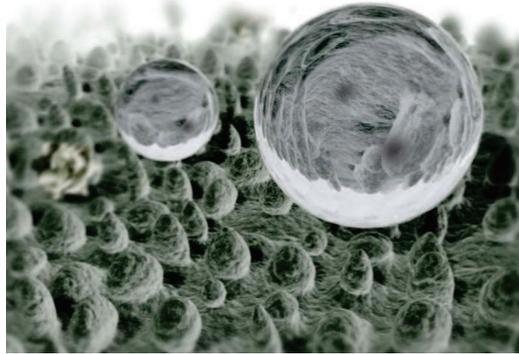


FIGURE 1.6 – Image générée par ordinateur de l'effet lotus avec deux gouttes d'eau reposant sur les microstructures (angle voisin de  $180^\circ$ ).

ou en modifiant une surface rugueuse avec des revêtements hydrophobes.([7],[8],[9],[10],[11]). Les deux méthodes nécessitent une surface à faible énergie de surface et donc un angle de contact supérieur à  $90^\circ$ . Les procédés permettant d'obtenir une faible énergie de surface consistent généralement à modifier les surfaces avec des revêtements chimiques (organiques). Toutefois, l'hydrophobicité des surfaces traitées chimiquement se détériore au fil du temps, ce qui entraîne des problèmes majeurs sur les surfaces superhydrophobes artificielles tels que le vieillissement et la détérioration (longévité). C'est pourquoi la fonctionnalisation physique semble être la meilleure solution pour renforcer l'hydrophobicité des surfaces. Selon la technique de fabrication de surface, la rugosité de surface induisant la superhydrophobicité peut provenir d'obstacles irréguliers ([10],[12],[13],[14]) ou régulièrement microtexturés ([15],[16],[17],[18],[19],[20],[21]), de rugosités fractales ([22],[23],[24])ou hiérarchiques, ou de forêts de nanofils ou nanotubes ([8],[25],[26],[27],[28],[29]).

### 1.2.3 Grandeurs physiques concernées : angle d'avancée, angle de reculée, hystérésis de l'angle de contact

Pour évaluer davantage le caractère hydrophobe des surfaces solides, il est possible d'exploiter les mesures d'angle de contact.

La relation de Young prédit qu'un solide, un liquide et une vapeur définissent un angle de contact unique " $\theta$ " représentant un angle à l'équilibre. Or, cet angle n'a de sens que si le solide a une surface idéalement lisse, homogène, plane et non déformable. Or en pratique, la surface présente une certaine rugosité ou un défaut chimique. Le système choisit un angle de contact métastable en fonction du volume de la goutte, de l'impact de l'environnement mais surtout selon la manière dont la goutte a été déposée. On appelle angle d'avancée, " $\theta_a$ ", l'angle obtenu en gonflant une goutte (avec une ligne triple fixe) et l'angle de reculée, " $\theta_r$ " celui en l'aspirant ;  $\theta_r < \theta < \theta_a$ . On appelle hystérésis de l'angle de contact la différence  $\theta_a - \theta_r$  due aux inévitables imperfections de la surface solide qui permettent l'accrochage de la ligne de contact.

$$\Delta\theta = \theta_a - \theta_r \quad (1.6)$$

Par conséquent, si on mesure l'hystérésis entre l'angle  $\theta_a$  et  $\theta_r$ , on estime l'état d'homogénéité physique (rugosité) ou chimique de la surface. Par exemple, sur une surface non idéale (du plastique, un métal), la différence entre l'angle d'avancée et l'angle de reculée vaut typiquement de  $10^\circ$  à  $60^\circ$ .

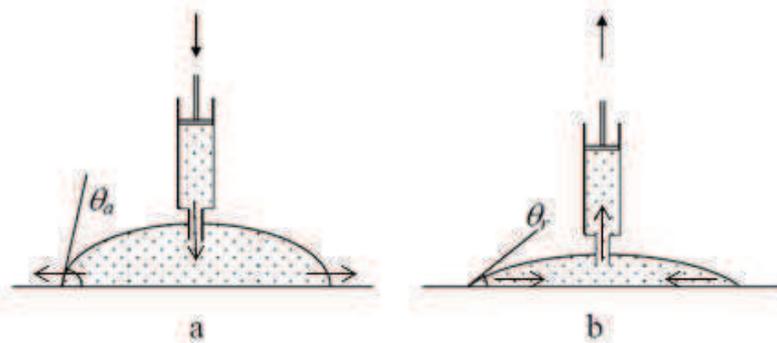


FIGURE 1.7 – Angle d'avancée  $\theta_a$  et angle de reculée  $\theta_r$ .

D'autre part, l'hystérésis de l'angle de contact peut être mesuré sur un plan incliné. En réalité, une goutte posée sur un substrat incliné peut rester accrochée bien que la gravité tende à la faire glisser. La goutte ainsi déformée par la gravité présente un angle de contact différent à l'avant  $\theta_a$  et à l'arrière  $\theta_r$ . Cette différence entre les deux angles (hystérésis), juste avant que la goutte ne glisse, engendre une force de rappel qui s'oppose au poids de la goutte (figure 1.8).

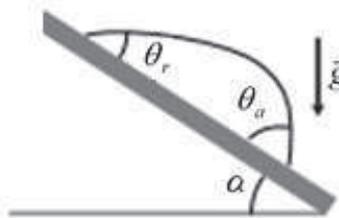


FIGURE 1.8 – Hystérésis de l'angle de contact : cette goutte statique est très déformée par l'hystérésis.

## 1.3 Surfaces superhydrophobes

### 1.3.1 Rugosités et microtexturations

Par définition, la rugosité reflète les irrégularités de surface d'un matériau aux échelles macroscopiques et microscopiques (figure 1.9 [30]). La taille, la forme et la distribution de ces irrégularités à la surface représentent la topographie. La relation entre rugosité et mouillabilité fait l'objet de nombreuses études, à la fois théoriques et expérimentales.

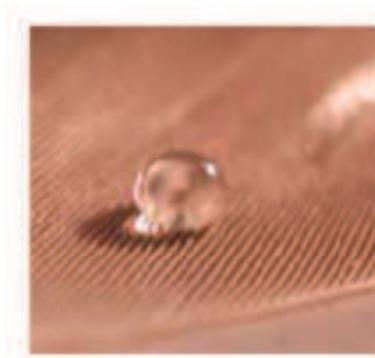


FIGURE 1.9 – Une goutte d'eau posée sur une plume de canard.

Plusieurs modèles ont été proposés pour prendre en compte la rugosité aux échelles micro ou nanométriques lors de la description ou de la prédiction de la mouillabilité. Parmi les modèles les plus importants, nous porterons un intérêt particulier aux modèles de Wenzel et de Cassie-Baxter.

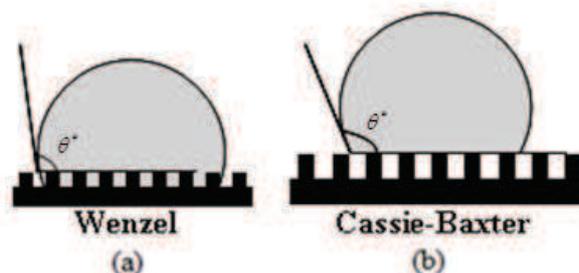


FIGURE 1.10 – Les deux états d'une goutte d'eau posée sur un substrat rugueux et hydrophobe : Wenzel(a) ; Cassie(b).

### 1.3.2 Les modèles de Wenzel et de Cassie-Baxter

La mouillabilité d'un corps solide peut être modifiée soit par traitement chimique de la surface en modifiant sa composition c'est à dire en fonctionnalisant l'interface par des molécules de propriétés chimiques différentes soit en formant un film sur la surface. On peut également jouer sur sa texturation

en modifiant sa rugosité.

On trouve, dans la littérature, deux modèles permettant de décrire l'influence de la texturation sur le mouillage : le modèle de Wenzel pour les surfaces rugueuses et le modèle de Cassie-Baxter pour les surfaces composites.

Le modèle de Wenzel (1936) [31] suppose que la goutte de liquide déposée sur une surface chimiquement homogène et rugueuse avec une échelle de rugosité petite devant la taille de la goutte, épouse le relief de la surface Figure 1.11. On note  $r$  la rugosité de la surface définie par la relation :

$$r = \frac{\text{surface réelle}}{\text{surface apparente}} \quad (1.7)$$

La surface réelle prend en compte les aspérités de la surface alors que la surface apparente est la surface géométrique plane correspondante donc le facteur  $r$  est par construction supérieur ou égal à l'unité. Wenzel a proposé en 1936 une relation entre l'angle apparent  $\theta^*$  mesuré sur cette surface et l'angle d'équilibre  $\theta_e$  mesuré sur la surface plane formée du même matériau.

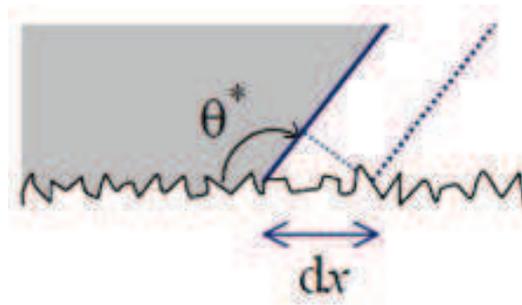


FIGURE 1.11 – Une goutte d'eau posée sur une plume de canard.

L'angle apparent  $\theta^*$  est défini en calculant la variation d'énergie lors d'un déplacement  $dx$  de la ligne de contact qui s'écrit :

$$dE^* = r(\gamma_{S/L} - \gamma_S)L dx + \gamma_L \cos\theta^* L dx \quad (1.8)$$

Où  $L$  est l'extension latérale de la ligne, et  $\gamma_S$ ,  $\gamma_{S/L}$  et  $\gamma_L$  désignent respectivement la tension superficielle des interfaces solide/gaz, solide/liquide et liquide/gaz.

A l'équilibre  $dE^* = 0$  d'où :

$$\cos\theta^* = r(\gamma_S - \gamma_{S/L})/\gamma_L \quad (1.9)$$

Si on introduit la relation de Young, on obtient la relation dite de Wenzel :

$$\cos\theta^* = r \cos\theta_e \quad (1.10)$$

Nous pouvons faire les remarques suivantes :

- La rugosité amplifie le type de mouillage : rendue rugueuse, une surface hydrophobe devient plus hydrophobe ( $r \cos\theta_e \leq \cos\theta_e \leq 0$ ) et une surface hydrophile devient plus hydrophile ( $r \cos\theta_e \geq \cos\theta_e \geq 0$ ). L'hydrophobicité est donc amplifiée par la rugosité et par conséquent, une surface hydrophobe rugueuse aura un angle de contact plus grand et devient superhydrophobe.
- L'hystérésis de l'angle de contact en état Wenzel est grande. Effectivement, la surface étant rugueuse, l'angle de contact apparent peut prendre de nombreuses valeurs, ce qui conduit à une forte hystérésis de l'angle de contact.

Cassie et Baxter (1944)[32], se sont également intéressés aux propriétés de mouillage de surfaces planes chimiquement hétérogènes. Leur modèle repose sur une description énergétique semblable à celle faite par Wenzel. La surface est ainsi constituée de deux matériaux différents 1 et 2 avec les fractions surfaciques respectives  $f_1$  et  $f_2$  schématisées par les tranches hachurées et blanches de la Figure 1.12. Chacun des matériaux est caractérisé par un angle de contact propre pour un liquide donné. Une goutte de liquide déposée sur la surface présente un angle de contact qui peut être exprimé en fonction des angles de contact  $\theta_1$  et  $\theta_2$  obtenus sur les matériaux homogènes 1 et 2 respectivement.

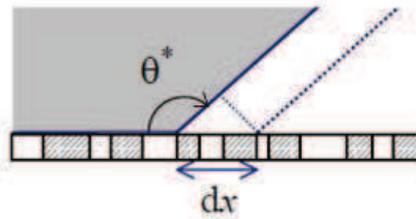


FIGURE 1.12 – Déplacement infinitésimal de la ligne de contact sur une surface mixte.

La variation d'énergie associée à un déplacement infinitésimal  $dx$  de la ligne de contact s'écrit :

$$dE^* = f_1(\gamma_{S1/L} - \gamma_{S1})Ldx + f_2(\gamma_{S2/L} - \gamma_{S2})Ldx + \gamma_L \cos\theta^* Ldx \quad (1.11)$$

A l'équilibre  $dE^* = 0$  d'où :

$$\cos\theta^* = f_1 \frac{\gamma_{S1} - \gamma_{S1/L}}{\gamma_L} + f_2 \frac{\gamma_{S2} - \gamma_{S2/L}}{\gamma_L} \quad (1.12)$$

L'introduction de la relation de Young pour chaque solide  $\cos\theta_1 = (\gamma_{S1} - \gamma_{S1/L})/\gamma_L$  et  $\cos\theta_2 = (\gamma_{S2} - \gamma_{S2/L})/\gamma_L$  conduit ainsi à la relation de Cassie-Baxter :

$$\cos\theta^* = f_1 \cos\theta_1 + f_2 \cos\theta_2 \quad (1.13)$$

Cette relation se généralise si d'autres matériaux viennent se juxtaposer à la surface composite. Lorsque la rugosité est importante, le liquide repose sur une surface composite de solide et d'air. L'angle de contact sur de l'air vaut  $180^\circ$ , l'angle apparent est donné par la relation :

$$\cos\theta^* = f_S \cos\theta_1 - f_{air} \quad (1.14)$$

Enfin, en remarquant que  $f_2 = 1 - f_1, \theta_1 = \theta_e$  l'angle de contact de Young sur la surface lisse et en appelant  $f_1 = \phi_S$  la fraction surfacique du solide, on obtient la relation dite de Cassie-Baxter :

$$\cos\theta^* = -1 + \phi_S(1 + \cos\theta_e) \quad (1.15)$$

Nous pouvons faire les remarques suivantes :

- Si la fraction surfacique du solide est faible, le cosinus de l'angle apparent est proche de -1 et donc l'angle  $\theta^*$  est très proche de  $180^\circ$ . Ainsi, quelle que soit la valeur de  $\theta_e$  ( $\theta_e > 90^\circ$ ), la surface est superhydrophobe.
- L'hystérésis de l'angle de contact est très réduit (il y a peu de surface de contact).

La microstructure de la surface joue un rôle primordial : une surface chimiquement hydrophobe l'est encore plus si elle est rugueuse. L'énergie nécessaire pour que le liquide épouse les aspérités de la surface devenant alors importante et celle nécessaire à maintenir le liquide au sommet des piliers étant minimale, cela permet de maintenir le liquide au sommet.

### 1.3.3 Domaines d'applications

Avec les avancées technologiques, plusieurs domaines d'applications sont concernés par les propriétés d'hydrophobicité. Un large éventail d'applications touche à la fois les applications en microfluidique pour les biotechnologies, la lubrification, les textiles imperméables, les revêtements, les applications 'antibuée', les surfaces autonettoyantes et à faible traînée, les surfaces anticorrosion. . .

C'est le cas des vitrages autonettoyants à base de Titane (fonction autonettoyante) [33] qui, associé à un caractère hydrophile, aide la pluie à parachever cet effet autonettoyant : la surface se nettoie d'elle-même car les gouttes emportent sur leur passage saletés et bactéries.

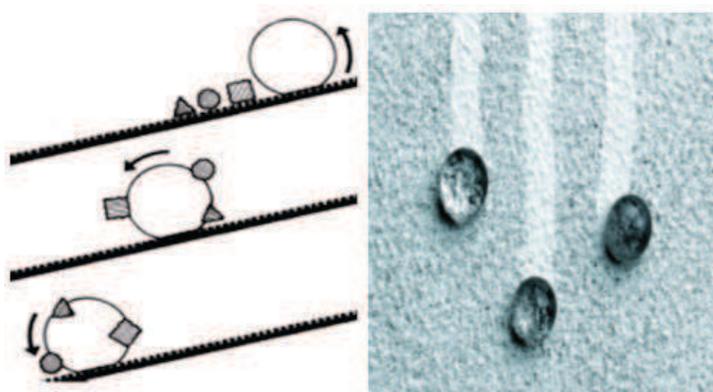


FIGURE 1.13 – L'effet autonettoyant.

D'autres travaux sont conduits dans le domaine du traitement de l'air, pour l'application sur des filtres [33].

Survenant dans les deux processus de glissement et de l'évaporation, la réalisation d'une faible hystérésis d'angle de contact (faible taux de rétention) est nécessaire pour les applications à la microfluidique discrète impliquant le mouvement des liquides ou l'auto-nettoyage [33], [34]. La majorité de microcanaux nécessite une surface superhydrophobe pour assurer le glissement des liquides sur les surfaces pendant qu'ils sont en contact minimal avec les parois du canal. Par conséquent, des échantillons très limités peuvent être préservés pendant le transport dans le microcanal. Un autre domaine de la microfluidique, qui nécessite des substrats superhydrophobes est celui des dispositifs en goutte, où les microgouttes en remplacement des microflux continus sont impliquées [35],[36].

## 1.4 Caractérisation d'une goutte sur une surface

Au cours de la dernière décennie, plusieurs méthodes ont été élaborées afin de déterminer l'état d'une goutte sur une surface, en particulier une surface rugueuse.

### 1.4.1 Caractérisations macroscopiques optiques

Il existe de nombreuses méthodes de mesure de l'angle de contact.

- La microscopie à contraste interférentiel est une technique permettant de mesurer les petits angles en déduisant, à partir de la distribution des franges d'interférences, la forme de la goutte. Une observation optique directe est l'une des plus simples méthodes accédant aux valeurs de l'angle de contact. Pour cela, la goutte à caractériser est posée entre une source lumineuse et une lentille convergente ( $d$  distance lentille-goutte). L'image est projetée sur un écran placé à une distance " $L$ " de la goutte avec un grandissement d'un rapport  $\frac{L-d}{d}$ . Si la surface solide est réfléchissante, on obtient une figure symétrique.
- La méthode de "la goutte posée" (sessile drop fitting) décrit le contour de la goutte mathématiquement en adaptant l'équation de Young-Laplace aux contours courbes. L'angle de contact est déduit de la tangente au point triple solide-liquide-vapeur (Figure 1.14 [37]).

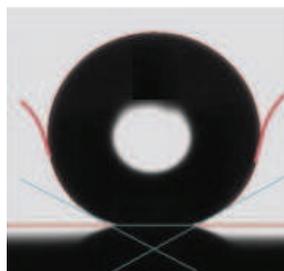


FIGURE 1.14 – La méthode de "la goutte posée" (Sessile drop fitting).

- La méthode de l'équation de cercle (cercle fitting) est adaptée aux faibles valeurs d'angles de contact ( $< 30^\circ$ ). Le contour de la goutte est mathématiquement corrélé à la forme d'un arc de cercle. De ce fait, tout le contour de la goutte est évalué et pas uniquement la zone d'intersection avec la ligne de base (Figure 1.15 [37]).

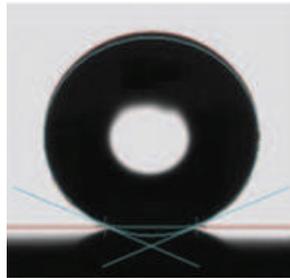


FIGURE 1.15 – Méthode de l'équation de cercle (Cercle fitting).

La déformation d'un quadrillage dessiné sur un substrat peut également être une méthode permettant de déduire l'angle de contact.

- Ces méthodes s'intéressent davantage à la mesure des angles d'avancée et de reculée. Par action mécanique (déposée délicatement, on incline légèrement le support à l'aide d'un goniomètre jusqu'à obtenir des angles d'avancée et de reculée constants), on visualise alors directement les angles avançant et reculant sur l'écran. On peut également mesurer ces angles d'avancée et de reculée en gonflant ou en aspirant la goutte.

#### 1.4.2 Approche à l'échelle microscopiques des interfaces.

**Extrand** [38],[39] a développé un modèle théorique permettant de calculer soit la densité de lignes de contact soit la hauteur des aspérités afin d'estimer la suspension ou l'effondrement des gouttes liquides sur des surfaces rugueuses.

**Jiadao Wang et Darong Chen** [40] ont montré que le gaz piégé (état Cassie) peut exister en dessous d'une goutte si deux conditions sont remplies :

1. L'interface liquide-gaz en dessous de la goutte doit être capable d'être dans un état d'équilibre des forces.
2. Les aspérités doivent être assez hautes pour que le liquide pénétrant entre elles ne touche pas le solide sous-jacent.

En outre, la configuration de Cassie correspond à l'état de plus basse énergie dans le cas composite, alors que la configuration de Wenzel correspond à l'état de plus basse énergie dans le cas mouillé. Deux minima d'énergie sont obtenus pour le système (un pour le cas composite (Cassie) et un pour le cas mouillé (Wenzel)). Le minimum absolu d'énergie interfaciale correspond au plus bas minimum d'angle de contact des deux configurations. C'est, alors, une 3ème méthode de détermination de l'état de la goutte [41].

Afin de modéliser l'hystérésis d'angle de contact dans le cadre des formules de Cassie et de Wenzel, **Neelesh A. Patankar** [42] a quantifié séparément l'énergie dissipée par les lignes de contact d'avance et de recul. Il a confronté les données d'angle de contact de la littérature pour les gouttes dans les états Cassie sur des géométries de rugosité ayant la forme de piliers.

Les résultats théoriques et expérimentaux de **Juan C. Tuberquia et al.** [43] ont montré la capacité des méthodes de mesure d'impédance à caractériser de façon appropriée des interfaces superhydrophobes immergées dans des solutions aqueuses et à distinguer les différents états de mouillage qui régissent les applications de ces surfaces.

**S.Moulinet et D.Bartolo** [44] ont utilisé les techniques de microfabrication ainsi que la microscopie optique interférentielle pour l'imagerie 3D de l'interface liquide (Figure 1.16). En effet, ils combinent deux techniques optiques pour, observer en trois dimensions la forme complète d'une goutte déposée sur une surface superhydrophobe et prévoir une description quantitative du scénario de son empalement. Ils utilisent des substrats en PDMS (polydimethylsiloxane : polymère transparent) qu'ils déposent sur un microscope inversé. L'interface air/eau en dessous de la goutte est observée par microscopie à contraste interférentiel en réflexion RCIM (Reflection Interference Contrast Microscopy) à travers la surface PDMS transparente. Simultanément, l'évolution du rayon de la goutte est directement suivie par l'intermédiaire d'une caméra CCD. Leur méthode permet de suivre l'empalement de la goutte et donc de caractériser les différents états d'équilibre de la goutte qui ne correspondent ni à l'état Cassie ni à celui de Wenzel mais à des états intermédiaires sur un substrat transparent. Une telle caractérisation optique apporte des réponses dans la compréhension d'une interface de configuration composite. Toutefois, elle est limitée à des surfaces transparentes.

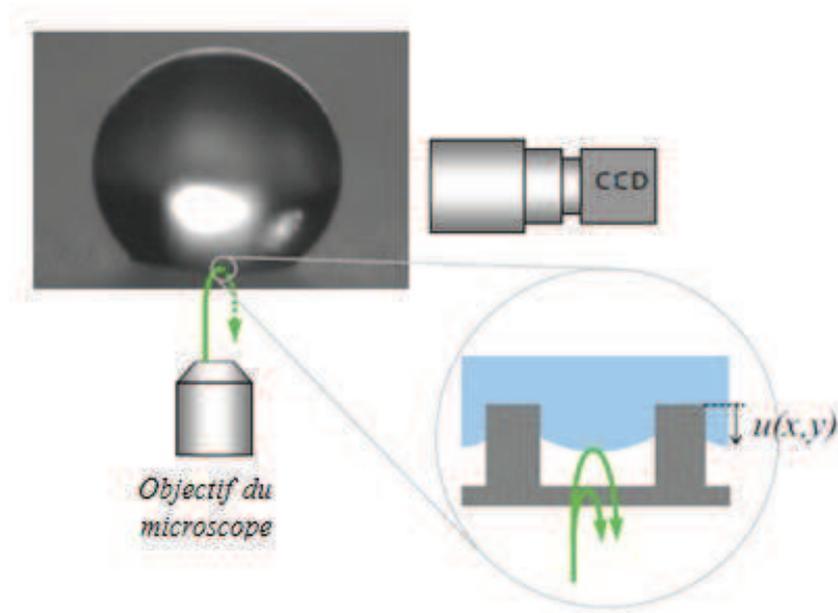


FIGURE 1.16 – Représentation schématique du dispositif expérimental. Une goutte en évaporation est observée simultanément avec : i) une caméra CCD standard équipée d'un objectif macro et ii) avec un microscope inversé.

**Helmut Rathgen et Frieder Mugele** [45], arrivent à reconnaître, à partir de mesures du champ optique diffracté, la forme des ménisques liquides qui s'écoulent entre les crêtes adjacentes de la texture de surface. Cette forme est déterminée en mesurant l'intensité de plusieurs ordres de diffraction en fonction de l'angle d'incidence et en ajustant les données à des calculs numériques de diffraction. L'angle de contact microscopique est déterminé en mesurant le rayon du ménisque avant l'effondrement de la goutte. Cette méthode conduit à une description très précise du ménisque liquide entre les aspérités (incertitude de quelques nanomètres), mais nécessite une mise en œuvre relativement complexe (laser d'Argon avec coupelle en verre rotative et photodiodes) qui la rend inadaptée à l'intégration dans des dispositifs de laboratoires-sur-puce.

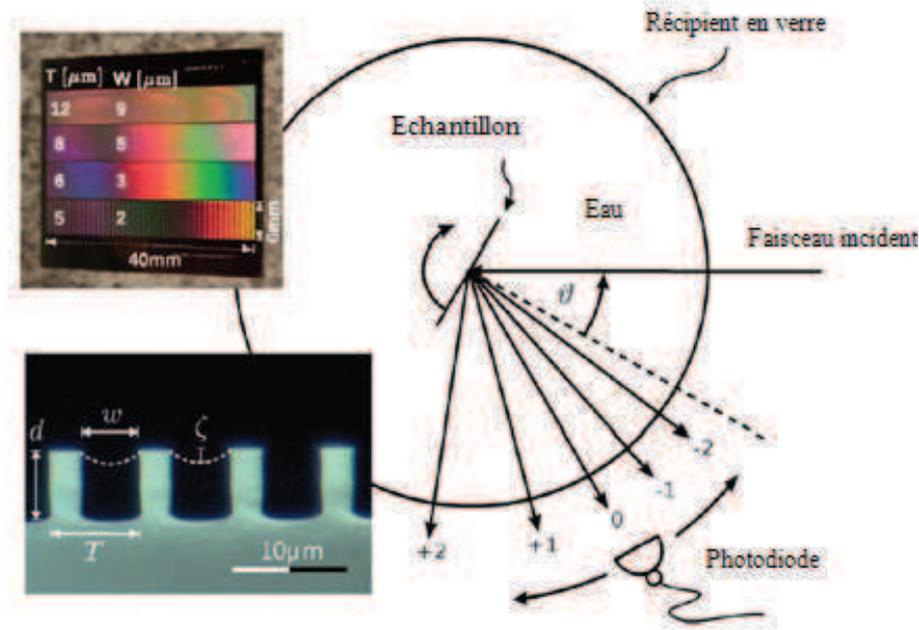


FIGURE 1.17 – Configuration de diffraction avec l'échantillon immergé dans un contenant en verre rempli d'eau. L'agrandissement dans le coin supérieur gauche montre une vue optique d'échantillons dans l'air indiquant la périodicité  $T$  et la largeur  $w$  des rainures. Le coin du bas montre une image de microscopie optique d'un échantillon clivé montrant une vue en coupe des rainures. Les lignes en pointillée indiquent schématiquement les positions des ménisques d'eau dans l'expérience.

Quant à **McHale et al** [46], ils ont été parmi les premiers à utiliser les ultrasons dans ce domaine. Leur méthode consiste à détecter, à l'aide d'une microbalance à quartz dont la surface est texturée, la masse de la phase gazeuse ou liquide. Le dispositif a été caractérisé à partir d'une mesure du décalage en fréquence en fonction des propriétés du liquide ou de la texturation de l'interface. McHale a montré que lorsque la longueur de glissement est très inférieure à la profondeur de pénétration des ondes de cisaillement, la condition limite de glissement prédit la réponse en fréquence avec une réponse égale au terme liquide de Kanazawa et Gordon plus une masse liquide additionnelle "rigide" (Sauerbrey); au premier ordre la dissipation est inchangée de la valeur de Kanazawa et Gordon. Ce résultat est interprété comme l'effet de la pénétration du liquide dans la structure de surface. Pour la surface avec des micropiliers, la diminution en fréquence et l'augmentation de la dissipation sont nettement inférieurs aux valeurs prévues par l'équation de Kanazawa et Gordon. Il interprète cela du point de vue acoustique par la présence d'une couche d'air, en raison de la superhydrophobicité. Puisque cette méthode consiste à plonger le résonateur dans le milieu liquide, elle n'est pas adaptée pour la caractérisation des gouttes et ne peut donc pas être difficilement mise en œuvre dans un dispositif microfluidique. Elle donne une mesure globale intégrée sur toute la surface du capteur en contact avec le liquide.

Les ultrasons ont, dans le domaine du contrôle non destructif, été largement utilisés pour caractériser les matériaux et leurs interfaces (propriétés d'adhésion) ([47], [48], [49], [50], [51]).

Ces méthodes permettent de révéler des défauts, les problèmes d'adhésion ainsi que quelques propriétés d'interface. Parmi les travaux les plus significatifs, on peut citer :

- Wang et al. [52] qui ont étudié les interfaces mal collées.
- Les études de microanalyse par sonde électronique (Electron Probe Micro Analysis, EPMA) sur les interfaces menées par Kar et al [53].
- La spectroscopie du coefficient de réflexion ultrasonore [54] (ultrasonic reflection coefficient spectroscopy, URCS) utilisée pour étudier les pores, les microfissures et les revêtements.
- A. Baltazar et al. [55] qui ont développé une méthode estimant les propriétés des interfaces. Cette méthode est basée sur la spectroscopie ultrasonore des signaux réfléchis par l'interface. Les résultats obtenus ont montré la possibilité d'utiliser la méthode pour estimer la rigidité interfaciale, la présence de la déformation plastique et prédire la surface réelle de contact, ce qui, dans le passé, était encore impossible à mesurer avec précision.

Les ultrasons ont démontré depuis de nombreuses années leur aptitude à caractériser non seulement les matériaux solides mais aussi les fluides.

Nous allons présenter dans cette thèse une méthode ultrasonore originale pour la caractérisation du phénomène de mouillage sur une surface. Elle consiste à mesurer le coefficient de réflexion des ondes ultrasonores sur une surface de silicium microtexturée. Notre objectif au travers cette étude sera de valider le développement d'un outil de mesure locale de l'interface entre une surface superhydrophobe et un liquide.

## 1.5 Conclusion

La connaissance de l'état d'un liquide sur des surfaces superhydrophobes est un sujet largement étudié. Les études sur les propriétés de surface visent à accroître l'hydrophobicité d'une surface. Le développement des technologies de microélectronique permet, actuellement, de caractériser et de contrôler l'hydrophobicité des surfaces ; toutefois, l'absence d'une méthode intégrée permettant la mesure locale de l'état d'une goutte déposée sur une surface texturée de silicium nous a mené à proposer une technique ultrasonore de caractérisations offrant à la fois une information sur la géométrie de la goutte, sa position et l'état physique de l'interface (goutte-substrat).

# Chapitre 2

## Les Ultrasons : Principes généraux et Applications

Dans le chapitre 1, nous avons en conclusion précisé que notre objectif était de développer et de valider une méthode ultrasonore de caractérisation locale de la mouillabilité des interfaces microtexturées. Après avoir abordé la physique des interfaces solide-liquide, le but de ce chapitre sera de présenter d'une manière résumée les notions importantes de la physique des ondes ultrasonores ainsi que les applications principales qui en résultent. Après quelques généralités, nous présenterons les bases des équations de propagation des ondes acoustiques dans des différents milieux (solide, fluide).

Ce chapitre a vocation à donner les notions de base sur la propagation des ondes acoustiques de façon à rendre plus explicites l'analyse des résultats expérimentaux.

### 2.1 Généralités sur les ondes ultrasonores

Les ondes sonores sont des ondes mécaniques caractérisées par des variations des positions des molécules et de pression. Ces grandeurs caractéristiques sont des fonctions du temps et de l'espace. La célérité des ondes dépend du milieu de propagation. A la différence de la lumière et des ondes électromagnétiques en général, la propagation d'ondes acoustiques ou ultrasonores nécessite un milieu matériel.

On distingue différents types d'ondes sonores en fonction de l'excitation appliquée, du milieu de propagation, ... Ces ondes se différencient suivant la direction du déplacement mécanique vis-à-vis de la direction de propagation ainsi que les propriétés physique des milieux.

#### 2.1.1 Les ondes de volume

##### Les ondes longitudinales

Ces ondes sont également appelées ondes de compression. Cette appellation est due à la déformation qu'elle fait subir à un milieu lors de son passage. En effet la propagation d'une onde longitudinale dans un milieu a pour effet de comprimer puis dilater de proche en proche des "tranches" de ce milieu. On appelle onde longitudinale une onde qui a la particularité d'avoir sa direction de polarisation, aussi appelée direction du déplacement des particules, parallèle à la direction de propagation de l'onde. Ces ondes peuvent se propager aussi bien dans un milieu solide que dans un milieu fluide. Lors de la

propagation de celle-ci, le milieu est soumis à une variation de volume.

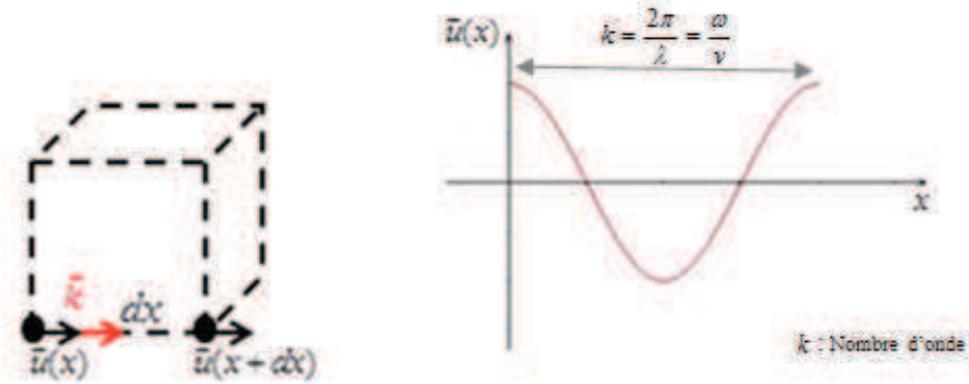


FIGURE 2.1 – La figure de gauche présente le vecteur d’onde (direction de propagation de l’onde) parallèle au vecteur déplacement dans le cas d’une onde longitudinale. La figure de droite présente le vecteur déplacement dans le cas d’une onde sinusoïdale.

## Les ondes transversales

Ces ondes sont également appelées ondes de cisaillement. Cette appellation est elle aussi due à la sollicitation imposée au matériau lors de sa propagation. Contrairement aux ondes longitudinales, la direction du déplacement est perpendiculaire à la direction de propagation et il n’y a pas de variations de volume. Ce type d’onde est sensible aux contraintes de cisaillement. Cependant, l’onde ne peut se propager que dans des milieux solides ou fluides visqueux.

### 2.1.2 Les ondes de surface

Par définition, les ondes élastiques (ou acoustiques) de surface sont des ondes qui se propagent parallèlement à la surface d’un solide, le vecteur d’onde et le vecteur du flux d’énergie étant parallèles à la surface ou formant un faible angle avec le plan de la surface considérée. L’amplitude de ces ondes décroît exponentiellement à partir de la surface de sorte que l’énergie de l’onde est négligeable au-delà d’une profondeur d’environ une longueur d’onde sous la surface.

#### L’onde de Rayleigh

C’est l’onde de surface la plus connue notamment en sismologie, elle a été découverte par Lord Rayleigh en 1885 (Figure 2.3 [56]). Elle se propage à la surface d’un milieu isotrope semi-infini dont l’interface est libre. Elle a la particularité de provoquer un déplacement de polarisation elliptique des particules et une ondulation de surface confinée à une profondeur de l’ordre de la longueur d’onde. Elle est non

dispersive et elle résulte d'une composition des composantes dans un plan vertical des ondes de volume longitudinales et transversales.

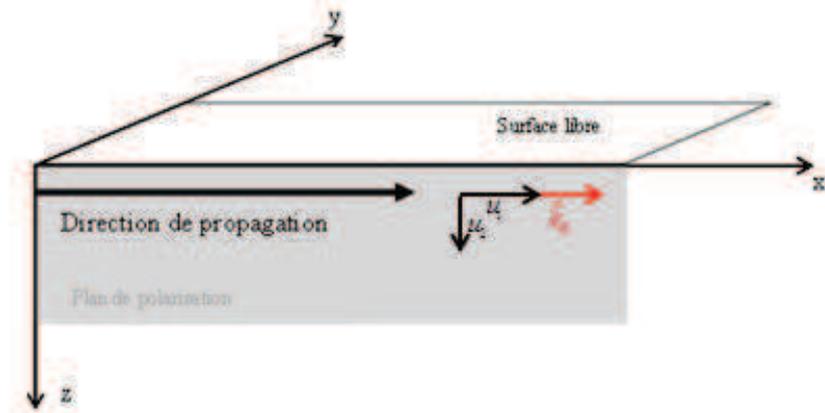


FIGURE 2.2 – Représentation schématique du plan de polarisation  $(u_1, u_2)$  dans l'espace  $x, y, z$  des ondes de Rayleigh en milieu semi-infini élastique homogène et isotrope.

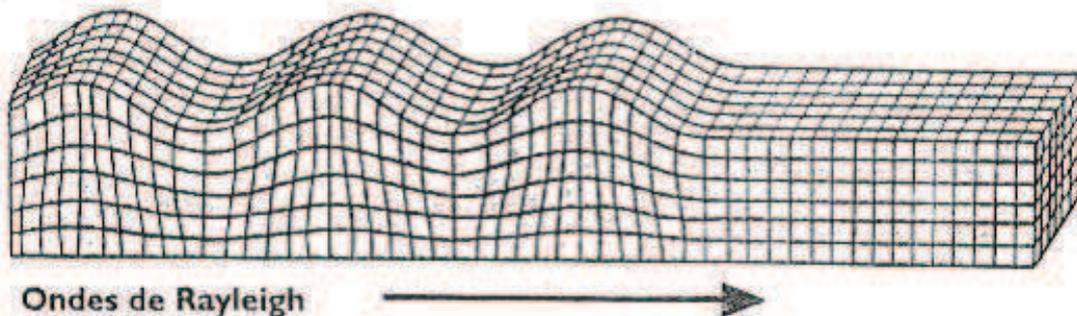


FIGURE 2.3 – Représentation de la propagation d'une onde de Rayleigh dans un solide semi-infini.

D'autres types d'onde font partie de la catégorie des ondes de surface, mais sous certaines conditions aux limites. On peut citer :

- L'onde de Stoneley : Dans ce cas l'onde se propage le long d'une surface de séparation entre deux milieux solides différents.
- L'onde de Scholte : Elle se propage entre un liquide et un solide et décroît exponentiellement loin de la surface à la fois dans le milieu solide et le milieu liquide.
- L'onde de Love : C'est une onde transversale polarisée horizontalement qui se propage seulement dans les solides non homogènes.

## Les ondes de plaque

L'appellation onde de plaque est utilisée lorsqu'on parle de la propagation d'une onde ultrasonore dans une plaque d'épaisseur comparable à la longueur d'onde et de dimensions latérales très grandes par rapport à l'épaisseur. La vibration des deux faces de la plaque est alors couplée. Généralement on parlera de mode de Lamb pur lorsque la plaque est constituée d'un matériau isotrope et qu'elle est entourée du vide. Lorsque la plaque est immergée dans un fluide on parle alors de mode de Lamb généralisé.

Les ondes de Lamb sont des combinaisons d'ondes longitudinales et d'ondes transversales. En milieu isotrope, deux familles de modes peuvent être obtenus (Figure 2.4) :

- Les modes symétriques : la surface supérieure de la plaque vibre symétriquement avec la surface inférieure de la plaque.
- Les modes antisymétriques : les surfaces supérieure et inférieure de la plaque vibrent parallèlement.

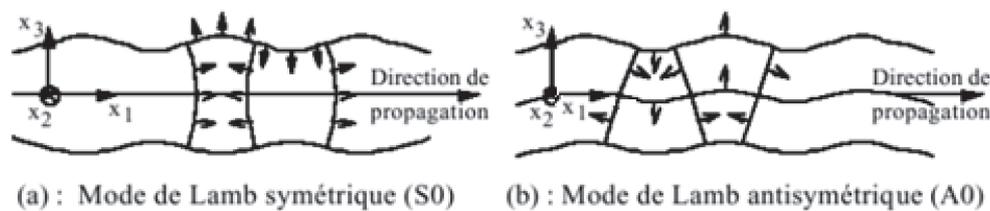


FIGURE 2.4 – Déplacements acoustiques pour une onde de Lamb.

Depuis 1945 d'autres types de modes de plaque sont identifiés, comme ceux dans une plaque immergée dans de l'eau avec les ondes d'Osborne et de Hart [57].

### 2.1.3 Choix de l'onde acoustique

Le choix de la nature de l'onde acoustique et sa fréquence sont fonction à la fois de la nature du milieu et de l'objectif visé. Chaque mode de contrôle ou de caractérisation impose des caractéristiques acoustiques/ultrasonores bien déterminées.

À titre d'exemple, le contrôle le plus fréquent est réalisé grâce à des ondes longitudinales se propageant suivant une direction perpendiculaire à la surface. Cette méthode permet la détection et la localisation des défauts par réflexion (mode A-SCAN) de l'onde acoustique sur des hétérogénéités. On utilise dans ce mode, le temps de retour de l'onde acoustique réfléchi pour localiser les éléments réflecteurs.

D'autre part, l'onde de surface permet le contrôle ou la caractérisation des surfaces ou des interfaces. Les ondes de plaque (Lamb) permettent de caractériser quant-à-elles des tôles de faibles épaisseurs (quelques longueurs d'ondes), ou des éléments offrant un rapport surface/épaisseur très grand ( $\frac{S}{e} \gg 1$ ).

Dans le cadre de notre application à la caractérisation ultrasonore des conditions d'interface avec un liquide, plusieurs contraintes ont été prises en compte :

- Caractériser l'interface sous une goutte d'environ  $10 \mu L$ , ce qui correspond à un diamètre de goutte de 2.6 mm dans le cas de l'eau. La nécessité d'avoir une mesure locale sous la goutte nous amène à proposer des diamètres de transducteurs d'au maximum  $500 \mu m$  (5 points de mesure sous la surface de la goutte) ou mieux  $250 \mu m$  (10 mesures sous un diamètre de goutte).
- D'autre part, l'objectif est également de faire en sorte que la partie réelle de l'impédance électrique des transducteurs soit de  $50 \Omega$  afin de minimiser les pertes de conversion ainsi que le T.O.S (taux d'onde stationnaire) entre le générateur et le transducteur. Cette condition nous impose d'utiliser des fréquences ultrasonores proches du GHz. La solution technologique appropriée reste le dépôt par pulvérisation magnétron de couche piézoélectrique en ZnO dont l'épaisseur se situe entre 1 et  $2 \mu m$ .
- Nature de l'onde générée : de tels transducteurs piézoélectriques génèrent une onde de compression. Nous utiliserons donc une onde de compression d'incidence normale à la surface texturée. L'utilisation d'une onde de cisaillement, plus difficile à générer dans le domaine hautes fréquences pourrait également être d'un grand intérêt.

#### 2.1.4 Génération d'ondes ultrasonores

Deux grands types de dispositifs sont possibles :

- Des méthodes par contact direct par le biais des transducteurs électromécaniques, générateurs de vibrations mécaniques, collés, déposés ou maintenus en contact par l'intermédiaire d'un gel ;
- Des méthodes sans contact pour lesquelles la génération des ultrasons se fait à la surface du milieu par tout moyen susceptible d'apporter une énergie électromagnétique, thermique, optique et d'activer les atomes du milieu (forces électromagnétiques, impact thermique à l'aide d'un faisceau laser pulsé, impact laser en régime d'ablation, ...).

Or la technologie des transducteurs électromécaniques s'est particulièrement développée depuis les années 1980 avec l'arrivée des "Micro-ElectroMechanical Systems" (MEMS). Le progrès dans le domaine des transducteurs est étroitement lié à la mise en place de nouveaux matériaux, de nouveaux champs d'applications des transducteurs et de nouvelles méthodes de fabrication.

Plusieurs matériaux présentent des propriétés piézoélectriques, les plus connus sont le quartz, le Niobate de Lithium, l'oxyde de Zinc (ZnO), le Nitrure d'Aluminium (AlN). Ils se présentent alors sous forme de monocristaux ou de couches minces cristallines.

D'autres matériaux tels que les céramiques ferroélectriques doivent être polarisés afin de présenter un effet piézoélectrique permanent. Ces matériaux ont donné naissance aux PZT (titanate zirconate de plomb) très utilisées dans les applications d'échographie médicale, essentiellement sous forme de barrettes. Ces matériaux sont également très employés dans la réalisation de filtres en technologie BAW (bulk acoustic wave), SAW (surface acoustic wave) et pour l'actionnement MEMS.

Suivant le domaine de fréquences concerné, les solutions techniques retenues pour la fabrication des capteurs ultrasonores peuvent différer notablement. En basse fréquence, l'utilisation de matériaux massifs est le plus souvent la règle alors que le domaine des applications haute fréquence fait appel à des technologies de dépôt de type couches minces pulvérisées. Une alternative technologique consiste à coller un monocristal piézoélectrique sur le substrat de propagation, puis à amincir ce matériau.

L'excitation de l'élément piézoélectrique peut ensuite se faire par une impulsion électrique très brève (de l'ordre de  $\frac{1}{f_r}$  où  $f_r$  est la fréquence de résonance du transducteur) ou par génération d'un signal sinusoïdal entretenu RF (radiofréquence).

## 2.2 Notions d'Elasticité

La loi de Hooke traduit le comportement élastique linéaire d'un matériau. Dans un solide élastique, deux formulations établissent la relation biunivoque entre les contraintes  $\sigma_{ij}$  et les déformations  $\varepsilon_{kl}$  :

$$\sigma_{ij} = c_{ijkl} \varepsilon_{kl} \quad (2.1)$$

Avec  $1 \leq i, j, k, l \leq 3$ .

Où  $c_{ijkl}$  représente le tenseur des rigidités élastiques.

$$c_{ijkl} = \begin{pmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & c_{14} & c_{15} & c_{16} \\ c_{21} & c_{22} & c_{23} & c_{24} & c_{25} & c_{26} \\ c_{31} & c_{32} & c_{33} & c_{34} & c_{35} & c_{36} \\ c_{41} & c_{42} & c_{43} & c_{44} & c_{45} & c_{46} \\ c_{51} & c_{52} & c_{53} & c_{54} & c_{55} & c_{56} \\ c_{61} & c_{62} & c_{63} & c_{64} & c_{65} & c_{66} \end{pmatrix} \quad (2.2)$$

En fait, 81 coefficients élastiques distincts reliant les composantes de composantes de caractérisent le comportement élastique linéaire d'un matériau. Cependant, des relations de symétrie de nature différente (géométrique, énergétique) permettent de réduire considérablement ce nombre de coefficients. Afin de simplifier l'utilisation de la loi de Hooke et en tenant compte de ces relations, une notation matricielle à deux indices est généralement adoptée (notation de Voigt).

Dans un milieu élastique, la propagation des ondes acoustiques dépend des constantes d'élasticité et des caractéristiques géométriques du milieu. Les équations de propagation, établies à partir de la mécanique des milieux continus, permettent de déterminer les différents modes propres susceptibles de se propager dans un milieu donné.

### 2.2.1 Équation de propagation des ondes planes dans un milieu anisotrope

[58]

Selon la loi de Hooke, l'équation de propagation des ondes est exprimée par l'équation différentielle suivante :

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} \quad (2.3)$$

Avec  $u_i$  la composante du déplacement particulaire selon les axes  $i = 1; 2$  ou  $3$ , respectivement axes  $x_1, x_2$  et  $x_3$ .  $\sigma_{ij}$  est le tenseur des contraintes mécaniques.

La loi de Hooke qui linéarise le comportement élastique du solide dans le cas de petites déformations s'écrit :

$$\sigma_{ij} = c_{ijkl} \varepsilon_{kl} \quad (2.4)$$

Où  $\varepsilon_{kl} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_k}{\partial x_l} + \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \right)$  est le tenseur des déformations.

Le tenseur des déformations étant symétrique ( $\varepsilon_{kl} = \varepsilon_{lk}$ ), on peut écrire :

$$c_{ijkl} = c_{ijlk} = c_{jikl} = c_{jilk} \quad (2.5)$$

En tenant compte des Équation 2.4 et Équation 2.5, on peut exprimer l'équation de Hooke de la manière suivante :

$$\sigma_{ij} = c_{ijkl} \frac{\partial u_k}{\partial x_l} \quad (2.6)$$

En remplaçant l'Équation 2.6 dans l'Équation 2.3, elle devient :

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_l}{\partial x_j \partial x_k} \quad (2.7)$$

Dont la solution est exprimée sous la forme :

$$u_i = {}^o u_i \exp(i.(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{x})) = {}^o u_i \exp(i.(\omega t - k.l_j x_j)) \quad (2.8)$$

Où :  ${}^o u_i$  sont les composantes du vecteur déplacement,  $\vec{k}$  le vecteur d'onde et  $k$  son module, est le vecteur unitaire dans la direction du vecteur d'onde.

### 2.2.2 Équation de propagation des ondes planes dans un fluide

[58]

Lorsque le fluide est au repos (en l'absence d'onde acoustique), on note respectivement  $P_0$ ,  $\rho_0$  et  $T_0$  sa pression, sa masse volumique et sa température, grandeurs supposées uniformes dans l'espace et constantes dans le temps.

L'onde acoustique se traduit comme une perturbation de l'état de repos du fluide et est décrite par les champs eulériens de vitesse, de pression et de masse volumique :

$$\begin{aligned}\vec{v}(\vec{r}, t) &= \vec{v}_1(\vec{r}, t) \\ p(\vec{r}, t) &= p_0 + p_1(\vec{r}, t) \\ \rho(\vec{r}, t) &= \rho_0 + \rho_1(\vec{r}, t)\end{aligned}\quad (2.9)$$

Où  $p_1$  désigne la surpression (ou la pression acoustique),  $\rho_1$  désigne l'écart de masse volumique. Si on note  $u(x, t)$  le déplacement à l'instant  $t$  de la partie du fluide située au repos à l'abscisse  $x$ , l'approximation acoustique consiste à considérer les déformations des différents éléments du fluide de faible amplitude et à écrire :  $|\frac{\partial u}{\partial r}| \ll 1$ .

L'équation des ondes acoustiques est établie à partir des équations décrivant l'évolution du fluide :

- L'équation d'Euler s'écrit, en négligeant la pesanteur :

$$\rho_0 \frac{\partial \vec{v}_1}{\partial t} = -\vec{grad}(p_1) \quad (2.10)$$

- L'équation de conservation de la masse :

$$\rho_0 \text{div}(\vec{v}_1) + \frac{\partial \rho_1}{\partial t} = 0 \quad (2.11)$$

- L'évolution thermodynamique :

$$\frac{\partial \rho_1}{\partial t} = \rho_0 \chi_S \frac{\partial p_1}{\partial t} \quad (2.12)$$

Avec  $\chi_S = \frac{1}{\rho} \left( \frac{\partial \rho}{\partial p} \right)_S$  la compressibilité isentropique.

A partir de ces trois équations, l'équation d'évolution de la surpression est exprimée sous la forme :

$$\Delta p_1 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 p_1}{\partial t^2} = 0 \quad (2.13)$$

Avec  $c = \frac{1}{\sqrt{\rho_0 \chi_S}}$

## 2.3 Grandeurs caractéristiques

### 2.3.1 Impédance ultrasonore

D'une manière générale, l'impédance est exprimée sous la forme :

$$Z(\omega) = \frac{F(\omega)}{v} \quad (2.14)$$

F étant la force et v la vitesse particulière résultante.

Dans un fluide, l'équation devient :

$$Z(\omega) = \frac{p}{v} \quad (2.15)$$

Où p est la pression acoustique.

Pour une onde plane se propageant dans un milieu, le produit de la vitesse de l'onde par la densité du milieu de propagation définit une grandeur ultrasonore caractéristique : l'impédance acoustique Z :

$$Z_C = \rho_0 \times c \quad (2.16)$$

Cette grandeur est une caractéristique intrinsèque d'un milieu utilisée pour :

- la détermination de la transmission et la réflexion acoustique à l'interface de deux matériaux ayant des impédances acoustiques différentes ;
- la conception de transducteurs ultrasonores et de leurs adaptations électriques ;
- l'interprétation des contrastes en imagerie ultrasonore.

### 2.3.2 Coefficients de Réflexion et de transmission

[58]

En pratique, les milieux où se propagent des ondes sont limités par des frontières qui correspondent souvent à une discontinuité d'une grandeur liée au milieu. Nous nous placerons dans l'hypothèse d'une onde plane harmonique incidente.

La nature des ondes transmises et réfléchies aux frontières, dépend de la nature de l'onde incidente (longitudinale, transversale, quasi-longitudinale QL quasi-transversale QT) et de la nature des milieux (fluide, solide isotrope ou anisotrope).

En effet, il existe dans le cas général trois ondes susceptibles de se propager dans une même direction avec des célérités différentes, les polarisations étant orthogonales. Dans un milieu anisotrope, excepté dans des directions particulières, il n'existe pas de mode pur (longitudinale ou transversal). L'onde dont le vecteur polarisation est le plus proche du vecteur d'onde  $\vec{k}$  est appelée quasi-longitudinale (QL), les deux autres sont appelées quasi-transversales (QT1 et QT2).

Pour résoudre le problème général de la réflexion et de la transmission à l'interface de deux milieux, la méthodologie de mise en équation consiste à partir de la connaissance de la direction de propagation, la polarisation, l'amplitude de l'onde incidente et des propriétés des deux milieux, de déterminer les directions de propagation, les polarisations et les amplitudes des ondes réfléchies et transmises. La réponse s'obtient, théoriquement, en développant les équations de propagation pour chaque milieu et en explicitant les équations de continuité à l'interface.

Nous présenterons dans ce chapitre les résultats de ces équations dans quelques cas particuliers.

### Polarisation et direction des ondes réfléchies et transmises

Lorsque deux solides sont en contact, nous supposons qu'ils sont rigidement liés, c'est-à-dire continuité des déplacements et des contraintes. Dans le repère  $\vec{x}(x_1, x_2, x_3)$  dont l'origine est située à l'interface des solides, l'équation du plan de contact de normale unitaire  $\vec{l}(l_1, l_2, l_3)$  est :

$$\vec{l} \cdot \vec{x} = 0 \quad (2.17)$$

D'autre part, les ondes planes incidentes seront décrites par un terme de phase :

$$e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{x})} = e^{i(\omega t - k_1 x_1 - k_2 x_2 - k_3 x_3)}$$

La continuité des déplacements ( $u_i$ ) et des tensions ( $T_i$ ) mécaniques à l'interface s'exprime par :

$$\begin{aligned} u_i^I + \sum_R u_i^R &= \sum_T u_i^T \\ T_i^I + \sum_R T_i^R &= \sum_T T_i^T \end{aligned} \quad (2.18)$$

Les exposants I, R et T présentent respectivement les ondes incidente, réfléchies et transmises.

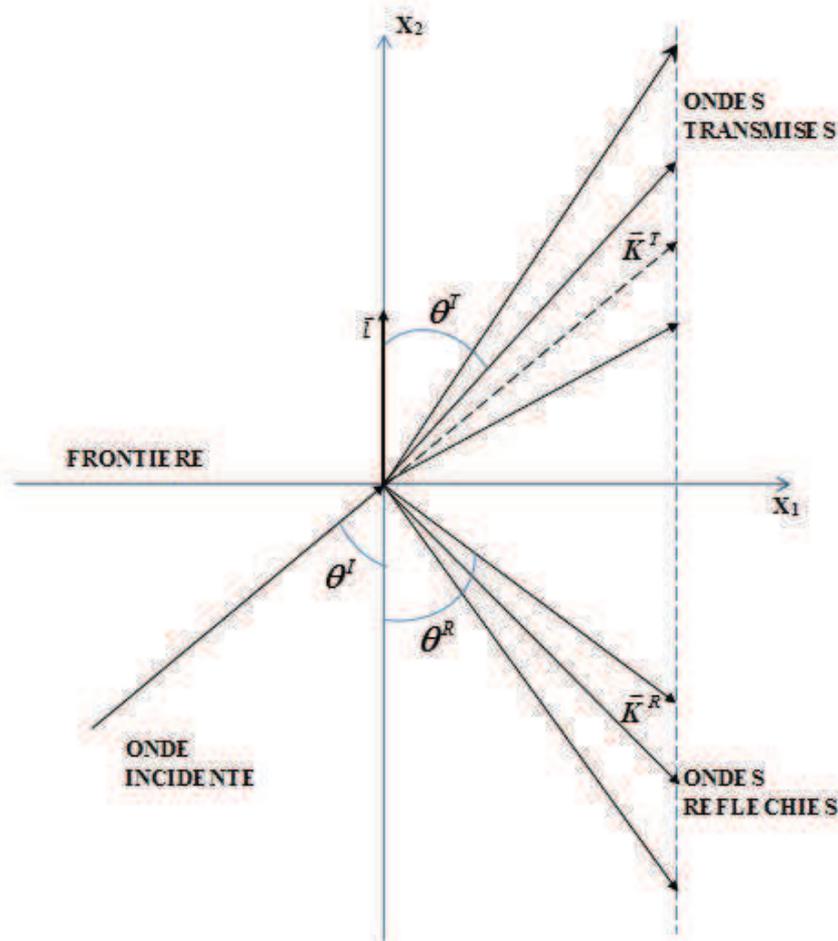


FIGURE 2.5 – Loi de Snell-Descartes. Les projections, sur le plan de séparation des deux milieux, des vecteurs des ondes réfléchies et transmises et sont égales à celle du vecteur de l'onde incidente.

Pour que ces conditions soient satisfaites, il faut, notamment que, dans l'hypothèse de linéarité ;

- A chaque instant, les pulsations de l'onde réfléchi et de l'onde transmise soient les mêmes que la pulsation de l'onde incidente :  $\omega_R = \omega_T = \omega_I$
- chaque point du plan  $\vec{l} \cdot \vec{x} = 0$  :  $\vec{k}_R \cdot \vec{x} = \vec{k}_T \cdot \vec{x} = \vec{k}_I \cdot \vec{x}$   
Les vecteurs  $\vec{k}_R - \vec{k}_I$  et  $\vec{k}_T - \vec{k}_I$  sont, comme  $\vec{l}$ , perpendiculaires au plan de séparation des deux milieux.

Cette condition exprime la loi de Snell-Descartes :

$$k_R \sin\theta_R = k_T \sin\theta_T = k_I \sin\theta_I \quad (2.19)$$

Où  $\theta_I, \theta_R, \theta_T$  sont les angles d'incidence, de réflexion et de transmission.

Les directions de propagation des ondes se déterminent soit graphiquement soit numériquement. Une façon commode de les représenter est d'utiliser les surfaces des lenteurs.

En effet, la surface des lenteurs correspondant à un milieu donné, fournit, pour toutes les directions de l'espace, les solutions de l'équation de propagation. Elle définit le lieu des  $|\vec{k}(\theta)|$  pour les différentes ondes qui sont solutions de l'équation de propagation. Par conséquent, une fois le vecteur de l'onde incidente connu, il suffit d'intercaler la loi de Snell-Descartes aux surfaces des lenteurs des deux milieux pour obtenir les vecteurs des ondes susceptibles de s'y propager, leur polarisation et les directions de l'énergie acoustiques (vecteur de Poynting) perpendiculaire à la tangente aux courbes  $|\vec{k}(\theta)|$ .

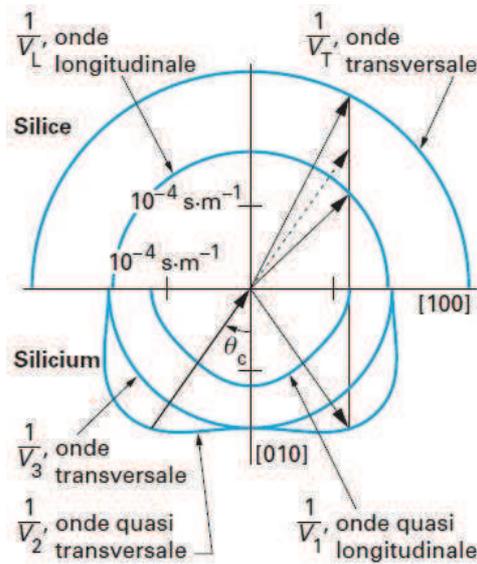


FIGURE 2.6 – Une jonction silicium-silice. Une onde incidente quasi-transversale dans le cristal engendre, par réfraction, une onde transversale et une onde longitudinale dans la silice et, par réflexion, une onde quasi transversale et une onde quasi-longitudinale dans le silicium.

### Amplitude. Equations de continuité

Les constructions précédentes ne fournissent ni les amplitudes des ondes réfléchies ni celles des ondes transmises. Celles-ci se déterminent à partir des équations de continuité. Comme les termes de propagation sont les mêmes en tout point du plan de séparation, la continuité des déplacements s'écrit :

$${}^o u_i^I + \sum_R {}^o u_i^R = \sum_T {}^o u_i^T \quad (2.20)$$

Avec  ${}^o u_i$  la polarisation de l'onde telle que  $u_i = {}^o u_i F(t - \frac{l_j x_j}{v})$  ( $v$  étant la vitesse de phase de l'onde). Compte tenu de l'expression des contraintes mécaniques en fonction des contraintes  $\sigma_{ij}$  :

$$\sigma_i = \sigma_{ij} l_j \quad (2.21)$$

et de la loi de Hooke :

$$\sigma_{ij} = c_{ijkl} \frac{\partial u_k}{\partial x_l} = -i c_{ijkl} k_l u_k e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{x})} \quad (2.22)$$

la continuité des tensions s'exprime comme suit :

$$c_{ijkl} l_j (k_l^I u_K^I + \sum_R k_l^R u_k^R) = c'_{ijkl} l_j \sum_T k_l^T u_k^T \quad (2.23)$$

$c_{ijkl}$  et  $c'_{ijkl}$  désignent les constantes d'élasticité du premier et du second milieu.

### Réflexion et transmission en Incidence normale

La situation la plus simple des phénomènes de réflexion et de transmission se produit lorsque les ondes sont d'incidence normale à la surface.

#### Interface solide/solide

Considérons deux milieux solides caractérisés par les impédances respectives  $Z_1$  et  $Z_2$ . Une onde plane longitudinale ou transversale génère une onde réfléchie sur la surface et une onde transmise au travers de celui-ci.

La Figure 2.7 présente une interface solide/solide ainsi que l'onde incidente de vitesse particulière  $v^I$ , l'onde réfléchie de vitesse particulière  $v^R$  et l'onde transmise de vitesse particulière  $v^T$ .

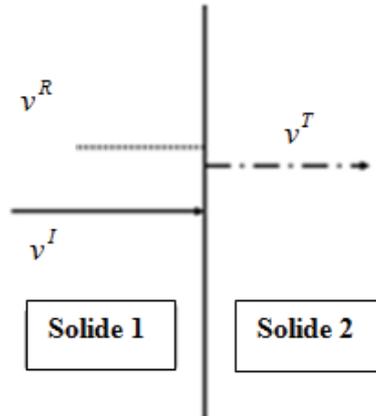


FIGURE 2.7 – Interface solide/solide en incidence normale.

Introduisons la notion d'impédance acoustique  $Z$ . Il s'agit de :

$$Z = -\frac{\sigma}{v} \quad (2.24)$$

Avec  $v$  la vitesse particulière et  $\sigma$  les contraintes mécaniques du solide.

Les vitesses de déplacements de l'onde et les contraintes mécaniques dans les solides 1 et 2 sont définies par les relations suivantes en sous entendant le terme  $\exp(i.\omega.t)$  :

Pour l'onde incidente :

$$\begin{aligned} v^I &= A_I \cdot \exp(-i \cdot k^I \cdot x) \\ \sigma^I &= -Z_1 \cdot v^I \end{aligned} \quad (2.25)$$

Pour l'onde réfléchie :

$$\begin{aligned} v^R &= A_R \cdot \exp(-i \cdot k^I \cdot x) \\ \sigma^R &= -Z_1 \cdot v^R \end{aligned} \quad (2.26)$$

Et pour l'onde transmise :

$$\begin{aligned} v^T &= A_T \cdot \exp(-i \cdot k^T \cdot x) \\ \sigma^T &= -Z_2 \cdot v^T \end{aligned} \quad (2.27)$$

Avec  $A_I$ ,  $A_R$  et  $A_T$  les amplitudes des vitesses de déplacement respectives des ondes incidentes, réfléchies et transmises.

Les conditions de continuité des vitesses particulières  $v$  et des contraintes mécaniques  $\sigma$  à l'interface s'écrivent :

$$(v^I + v^R) = v^T \quad (2.28)$$

et

$$(\sigma^I + \sigma^R) = \sigma^T \quad (2.29)$$

Les coefficients de réflexion et de transmission en vitesse particulière entre les deux solides 1 et 2 sont définis par :

$$\begin{aligned} r_{12} &= \frac{v^R}{v^I} \\ t_{12} &= \frac{v^T}{v^I} \end{aligned} \quad (2.30)$$

En utilisant les équations (2.25) (2.26) (2.27) dans les équations de continuité (2.28) (2.29), ces coefficients deviennent :

$$\begin{aligned} r_{12} &= \left( \frac{Z_2 - Z_1}{Z_2 + Z_1} \right) \\ t_{12} &= \left( \frac{2 Z_2}{Z_2 + Z_1} \right) \end{aligned} \quad (2.31)$$

A noter que les impédances à prendre en compte sont les impédances relatives aux ondes longitudinales si l'onde incidente est longitudinale, ou transversales si l'onde incidente est transversale.

### Interface solide/fluide

La Figure 2.8 illustre l'interface solide/fluide ainsi que les ondes incidentes, réfléchies et transmises. Les déplacements transversaux étant nuls dans le fluide, supposé parfait, une onde incidente transversale est totalement réfléchie.

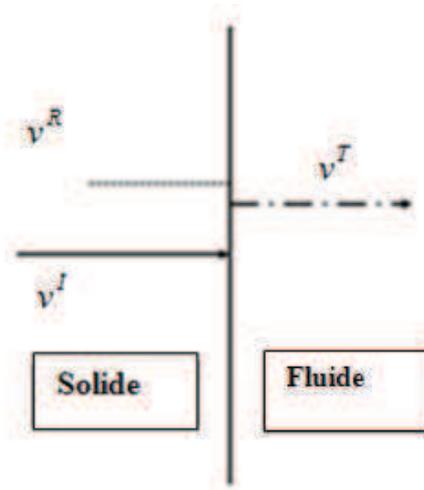


FIGURE 2.8 – Interface solide/fluide en incidence normale.

Les conditions de continuité à l'interface sont définies comme pour une interface solide/solide par la continuité des vitesses particulières  $v$  et des contraintes mécaniques  $\sigma$  de l'onde longitudinale uniquement, tel que :

$$(v^I + v^R) = v^T \quad (2.32)$$

et

$$(\sigma^I + \sigma^R) = \sigma^T \quad (2.33)$$

Dans les conditions de continuité, et puisqu'il n'y a pas de déplacement transversal dans le fluide, seules les ondes longitudinales transmises dans le liquide sont à prendre en compte.

Les expressions des coefficients de réflexions et de transmissions sont les mêmes que ceux obtenus dans le cas précédent (2.31), il suffit de considérer  $Z_2$  comme étant l'impédance du fluide.

### Réflexion et transmission en incidence oblique

#### Cas des milieux fluides et solides isotropes

Une onde Transversale Horizontale (TH) est une onde transversale de polarisation contenue dans le plan de l'interface, c'est-à-dire la direction de la vibration des particules est parallèle au plan de la surface. Une onde Transversale Verticale (TV) est une onde transversale de polarisation contenue dans le plan perpendiculaire au plan de l'interface (dans le plan d'incidence), c'est-à-dire les particules vibrent parallèlement à ce plan au passage de l'onde. Quant à l'onde longitudinale (L), c'est une onde

toujours polarisée dans le plan perpendiculaire au plan de l'interface, c'est-à-dire parallèlement au plan d'incidence.

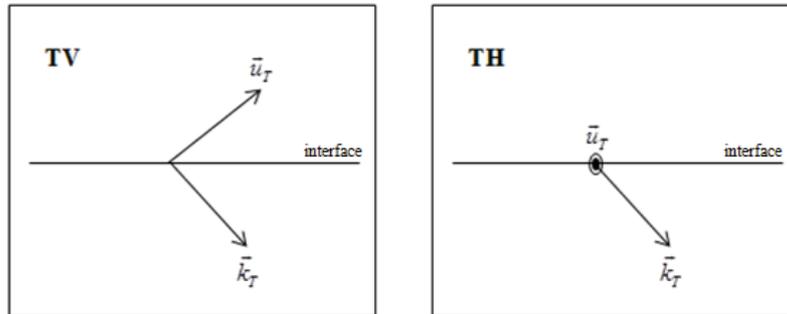


FIGURE 2.9 – Directions de propagation et Polarisation d'une onde TV (à gauche) et d'une onde (TH).

Le déplacement imposé par l'onde incidente dans le plan d'incidence impose la nature des ondes réfléchies et transmises. Ainsi, une onde incidente (L) faisant vibrer les particules uniquement dans le plan d'incidence, par raison de continuité, ne pourra générer que des ondes faisant vibrer les particules dans le même plan, c'est-à-dire des ondes longitudinale (L) et transversale verticale (TV) (Figure 2.10-a). De même, une onde incidente transversale verticale (TV) ne pourra générer que des ondes transversale verticale (TV) et longitudinale (L). Si grâce à l'interaction avec l'interface, une onde de nature différente (TV par exemple) de celle de l'onde incidente (L par exemple) est générée, on dit qu'il y a conversion de mode. Cette conversion peut se produire aussi bien par réflexion (onde dans le milieu d'incidence) que par transmission (onde dans le deuxième milieu). Le même raisonnement démontre qu'une onde incidente transversale horizontale (TH), polarisée perpendiculairement au plan d'incidence, ne pourra générer que des ondes faisant vibrer les particules perpendiculairement à ce plan, c'est-à-dire des ondes transversales horizontales TH (Figure 2.10-b).

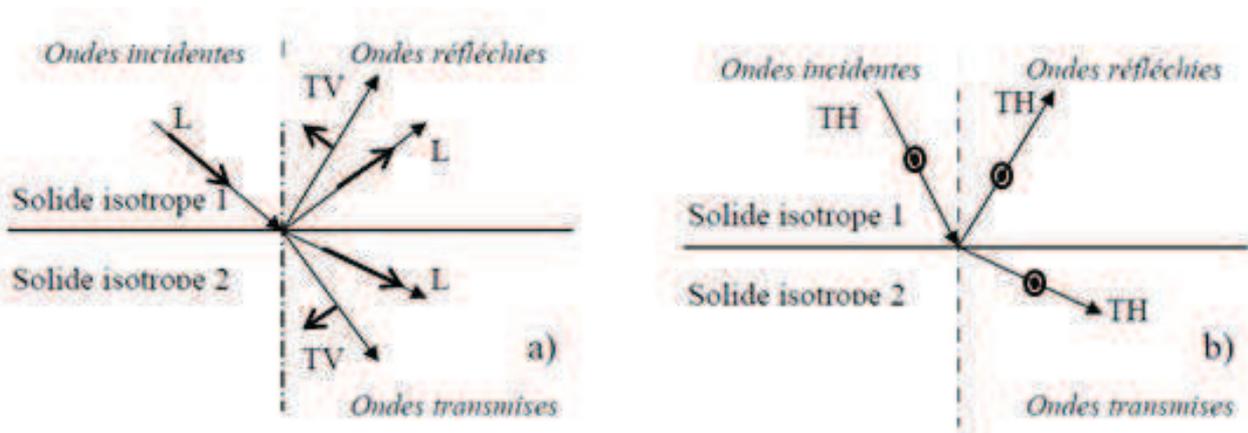


FIGURE 2.10 – Interaction d'une onde incidente avec une interface séparant deux milieux isotropes. a) onde incidente L ou TV, b) onde incidente TH (Les polarisations sont indiquées en gras).

Pour prendre en compte notre situation expérimentale finale, nous allons considérer deux cas particuliers :

- Interface solide/air ;
- Interface solide/liquide.

En effet, comme nous l'avons vu au chapitre 1, une goutte déposée sur une surface superhydrophobe va donner lieu à deux situations :

- Dans l'état Wenzel, le liquide est en contact partout avec le solide ;
- Dans l'état Cassie, le haut des piliers de texturation sera en contact avec le liquide alors que le bas sera en contact avec de l'air.

### Interface solide/air

Dans le cas d'une onde longitudinale en incidence oblique sur une interface solide/air (Figure 2.11).

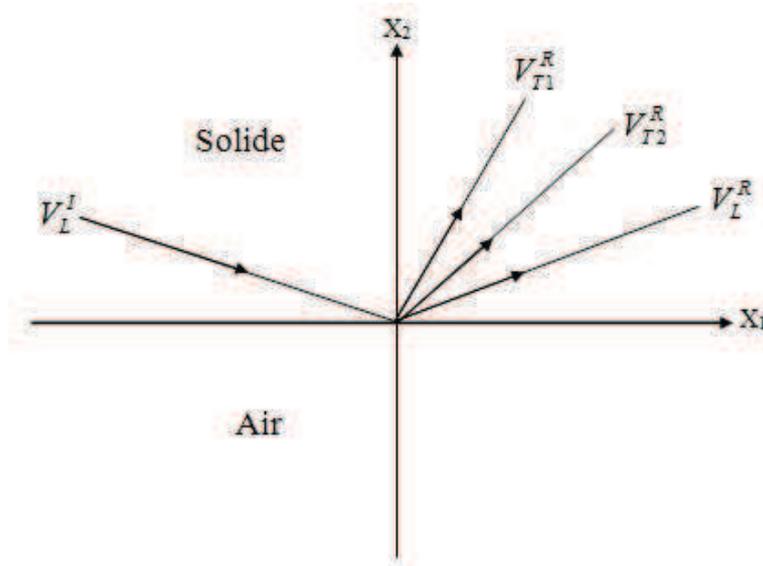


FIGURE 2.11 – Réflexion d'une onde longitudinale incidente à l'interface solide/air en incidence oblique.

Notons que dans le cas d'une réflexion sur une surface libre, les conditions de continuité à l'interface consistent à annuler la contrainte mécanique (c'est-à-dire :  $\sigma_i = \sigma_{ij} \cdot n_j = 0$ ) en tout point de la surface libre. Ainsi aucune onde n'est transmise à l'interface solide/air.

La continuité des vitesses et des contraintes mécaniques sont données par :

$$(v^I + \sum_R v^R) = 0 \quad (2.34)$$

et

$$(\sigma^I + \sum_R \sigma^R) = 0 \quad (2.35)$$

Comme nous l'avons déjà signalé, pour un solide isotrope, les directions des vecteurs d'ondes acoustiques pour les ondes longitudinales et transversales peuvent être obtenues en utilisant la loi de Snell-Descartes qui, en fonction des vitesses particulières, s'écrit :

$$\frac{\sin\theta_I}{v_L^I} = \frac{\sin\theta_T}{v_T^R} = \frac{\sin\theta_L}{v_L^R} \quad (2.36)$$

Dans ce cas, les coefficients de réflexion de l'onde longitudinale  $r_{LL}$  et de l'onde transversale  $r_{LT}$  sont respectivement donnés par les expressions  $r_{LL} = \frac{v_L^R}{v_L^I}$  et  $r_{LT} = \frac{v_T^R}{v_L^I}$ . D'où :

$$\begin{aligned} r_{LL} &= \frac{\eta^2 \sin 2\theta_I \sin 2\theta_T - \cos^2 2\theta_T}{\eta^2 \sin 2\theta_I \sin 2\theta_T + \cos^2 2\theta_T} \\ r_{LT} &= \frac{2\eta \sin 2\theta_I \cos^2 2\theta_T}{\eta^2 \sin 2\theta_I \sin 2\theta_T + \cos^2 2\theta_T} \end{aligned} \quad (2.37)$$

### Interface solide/liquide

Dans le cas d'une onde longitudinale en incidence oblique sur une interface solide/liquide (Figure 2.12).

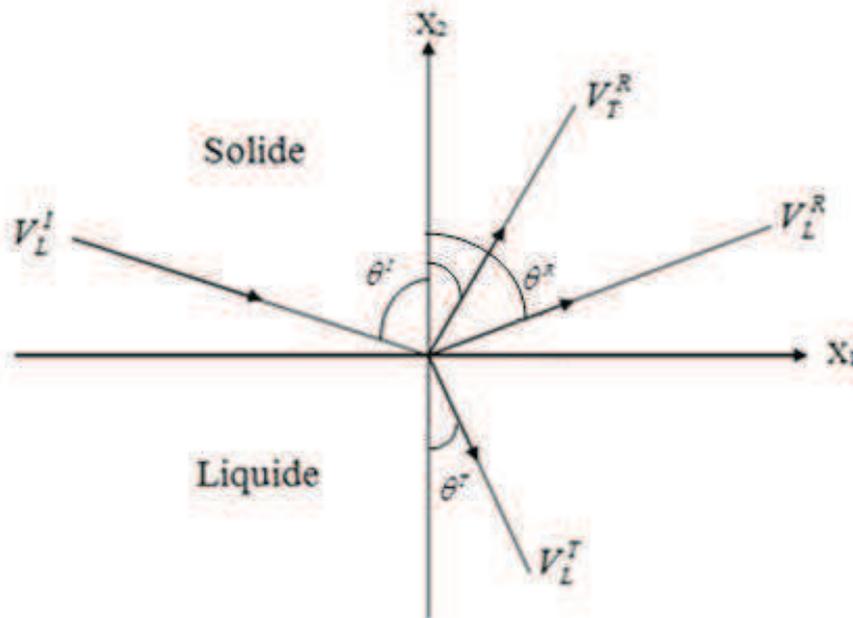


FIGURE 2.12 – Réflexion d'une onde longitudinale incidente à l'interface solide/liquide en incidence oblique.

Par rapport au cas précédent, il existe une onde transmise longitudinale.

Les directions des vecteurs d'ondes acoustiques sont données par la loi de Snell-Descartes.

Notons que dans ce cas, la contrainte normale est non nulle, cependant, la viscosité du fluide étant nulle, les contraintes tangentielles sont nulles. La composante normale du déplacement est ainsi continue.

Dans ce cas, les coefficients de réflexion de l'onde longitudinale  $r_{LL}$  et le coefficient de conversion en onde transversale dans le solide  $r_{LT}$  sont respectivement donnés par les expressions :

$$r_{LL} = \frac{\eta^2 \sin 2\theta_I \sin 2\theta_T - \cos^2 2\theta_T + \frac{Z \cos \theta_I}{Z_L \cos \theta_R}}{\eta^2 \sin 2\theta_I \sin 2\theta_T + \cos^2 2\theta_T + \frac{Z \cos \theta_I}{Z_L \cos \theta_R}} \quad (2.38)$$

$$r_{LT} = \frac{2\eta \sin 2\theta_I \cos^2 2\theta_T}{\eta^2 \sin 2\theta_I \sin 2\theta_T + \cos^2 2\theta_T + \frac{Z \cos \theta_I}{Z_L \cos \theta_R}}$$

Avec  $\eta = \frac{v_T^R}{v_L^R}$ .

### Cas des milieux anisotropes

Les ondes n'étant plus purement longitudinales ou transversales, l'interaction d'une onde incidente avec une interface séparant deux milieux anisotropes donne naissance à trois ondes dans chaque milieu (Figure 2.13 -a).

Dans le cas pratique d'un contrôle dans l'eau, l'onde incidente est toujours longitudinale et génère trois ondes dans la pièce à contrôler : une onde quasi-longitudinale (QL) et deux ondes quasi-transversales (QT1 et QT2) (Figure 2.13 -b).

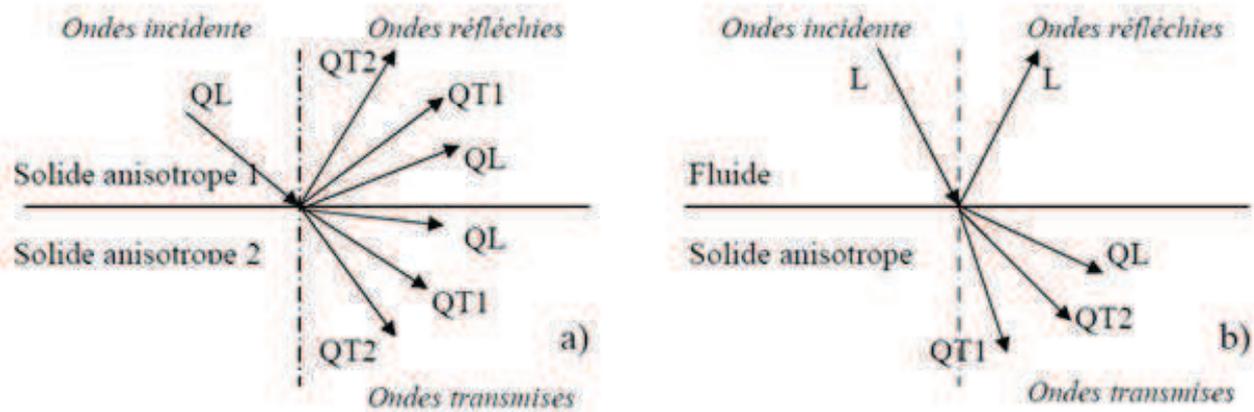


FIGURE 2.13 – Interaction d'une onde incidente avec une interface séparant deux milieux dont l'un au moins est anisotrope. a) milieu incident anisotrope, b) milieu incident fluide.

Dans ce cas, le calcul des coefficients de réflexion en ondes longitudinales et transversales n'est pas très aisé et ne peut être résolu que numériquement.

Le coefficient de réflexion peut être utilisé comme critère pour la caractérisation et l'analyse des interfaces [59]. En effet, les mesures de réflexion des ondes ultrasonores sont couramment utilisées pour détecter et mesurer la qualité d'une interface ([60], [61], [62] ).

Notre équipe a mis au point un nouveau principe basé sur la mesure des paramètres S via un analyseur de réseaux en réflexion. La méthode développée a déjà montré son efficacité dans le cadre de la caractérisation des propriétés acoustiques de couches (détermination de la vitesse de propagation). Dans le quatrième chapitre, nous présenterons plus en détail notre approche.

## 2.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté un aperçu sur les notions de bases des ondes acoustiques et leur propagation dans les différents milieux. Les équations de propagation des ondes dans les milieux solide et fluide ont été présentées et différentes grandeurs physiques liées à ce phénomène sont présentées.

Le choix d'une onde adéquate et d'un paramètre physique caractéristique susceptibles de décrire les interactions à l'interface (particulièrement la mouillabilité) conditionne l'aptitude d'une méthode ultrasonore à mesurer les conditions d'interface entre un liquide et un substrat de silicium texturé.

Le troisième chapitre sera consacré à l'utilisation de modèles numériques en vue de modéliser précisément la réflexion sur une interface texturée.

# Chapitre 3

## Approches Numériques

Dans ce chapitre nous allons présenter les différents modèles de propagation des ondes acoustiques dans notre structure ainsi que leur interaction avec l'interface texturée.

La première partie de ce chapitre sera consacrée à l'analyse de l'interaction d'une onde acoustique avec un pilier cylindrique avant d'aborder dans la seconde partie le modèle de propagation dans l'ensemble de la structure en silicium afin d'être en mesure de justifier du diagramme d'échos obtenu expérimentalement.

### 3.1 Propagation dans un cylindre

La structuration de la surface étant composée de piliers cylindriques dont les diamètres sont, à la fréquence considérée, de quelques longueurs d'ondes, nous nous sommes intéressés à la propagation d'une onde élastique dans un cylindre. Dans ce cadre, nous nous sommes limités à la recherche des modes propagatifs. Cela nous permettra de valider quelques résultats expérimentaux.

Un grand nombre de travaux existent et la théorie a été traitée dès le XIXème notamment par Rayleigh, Pochhammer (1876) et Chree (1889)[63] qui établissent l'équation de dispersion régissant la propagation d'ondes dans un cylindre infini pour lequel la contrainte est nulle en surface. Davies présente un important travail de calculs analytiques et d'expériences dans les années 1950. Il a cependant été nécessaire d'attendre que les moyens de calculs soient assez performants pour résoudre cette équation de dispersion, puis comprendre réellement le sens des solutions. Une étude remarquable a été réalisée dans ce domaine par Zemanek [64] dans les années 1970. Aujourd'hui la théorie est suffisamment bien comprise pour pouvoir simuler la propagation d'ondes guidées dans un cylindre de longueur fini, comme le montre les travaux de Puckett (2004) [65].

#### 3.1.1 Théorie

Nous faisons l'hypothèse dans ce qui suit que le milieu est isotrope et recherchons les solutions de l'équation de propagation dans un cylindre de rayon "a", illimité suivant l'axe "z" et placé dans le vide. Nous faisons également l'hypothèse que l'excitation possède la symétrie de révolution autour de l'axe du cylindre. Avec ces hypothèses seules les solutions axisymétriques sont retenues.

Il est nécessaire, de façon à pouvoir appliquer les conditions aux limites (en  $r = a$ ) de travailler en coordonnées cylindriques  $(r, \theta, z)$ . Les champs vectoriels sont décrits par la décomposition de Helmholtz. Il est commode d'utiliser un formalisme basé sur les potentiels scalaires et vecteurs :

$$\vec{U} = \overrightarrow{grad}\phi + r\overrightarrow{\partial t}\vec{\psi} \quad (3.1)$$

### Equation de propagation

Les équations de propagation des ondes longitudinales et transversales s'expriment par :

$$\Delta\phi - \frac{1}{c_L^2} \frac{\partial^2 \phi}{\partial t^2} = 0 \quad (3.2)$$

avec  $c_L = \sqrt{\frac{c_{11}}{\rho}}$  la vitesse de phase de l'onde longitudinale.

$$\Delta\psi - \frac{1}{c_T^2} \frac{\partial^2 \psi}{\partial t^2} = 0 \quad (3.3)$$

avec  $c_T = \sqrt{\frac{c_{11} - c_{12}}{2\rho}}$  la vitesse de phase de l'onde transversale.

Dans lesquelles le Laplacien est exprimé en coordonnées cylindriques :

$$\Delta. = \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \quad (3.4)$$

La séparation des variables est effectuée en posant  $\phi(r, \theta, z, t) = R(r)\Theta(\theta)Z(z)T(t)$  de façon à obtenir les quatre équations différentielles que doivent vérifier les fonctions  $R(r)$ ,  $\Theta(\theta)$ ,  $Z(z)$  et  $T(t)$ . On obtient ainsi, en choisissant les solutions axisymétriques pour lesquelles  $\Theta(\theta) = 1$

$$\phi = A J_0(pr) \exp[i(kz - \omega t)] \quad (3.5)$$

et

$$\vec{\psi} = C J_1(qr) \exp[i(kz - \omega t)] \vec{e}_\theta \quad (3.6)$$

Avec  $p^2 = \frac{\omega^2}{c_L^2} - k^2$  et  $q^2 = \frac{\omega^2}{c_T^2} - k^2$

$p$  et  $q$  sont les normes des vecteurs d'ondes radiaux pour les ondes de polarisations longitudinale et transversale,  $k$  la norme du vecteur d'onde axial.

$J_0$  et  $J_1$  les fonctions de Bessel d'ordre 0 et 1.

$A$  et  $C$  sont des constantes.

**Expressions des contraintes et déplacements :** Les contraintes sont obtenues à partir de la loi de Hooke également exprimée en coordonnées cylindriques. Ainsi, les composantes du vecteur déplacement et des contraintes s'expriment par :

$$u_r = \frac{\partial \phi}{\partial r} - \frac{\partial \psi}{\partial z} \quad (3.7)$$

$$u_z = \frac{\partial \phi}{\partial z} + \frac{\psi}{r} + \frac{\partial \phi}{\partial r} \quad (3.8)$$

$$\sigma_{zz} = c_{12} \left( \frac{\partial u_r}{\partial r} + \frac{u_r}{r} + \frac{\partial u_z}{\partial z} \right) + (c_{11} - c_{12}) \frac{\partial u_z}{\partial z} = c_{11} \frac{\partial u_z}{\partial z} + c_{12} \left( \frac{\partial u_r}{\partial r} + \frac{u_r}{r} \right) \quad (3.9)$$

$$\sigma_{rr} = c_{12} \left( \frac{\partial u_r}{\partial r} + \frac{u_r}{r} + \frac{\partial u_z}{\partial z} \right) + (c_{11} - c_{12}) \frac{\partial u_r}{\partial r} = c_{11} \frac{\partial u_r}{\partial r} + c_{12} \left( \frac{\partial u_z}{\partial z} + \frac{u_r}{r} \right) \quad (3.10)$$

$$\sigma_{rz} = c_{44} \left( \frac{\partial u_r}{\partial z} + \frac{\partial u_z}{\partial r} \right) = \frac{c_{11} - c_{12}}{2} \left( \frac{\partial u_r}{\partial z} + \frac{\partial u_z}{\partial r} \right) \quad (3.11)$$

**Equation de Pochhammer-Chree et équation de dispersion** L'équation de Pochhammer-Chree est obtenue imposant la contrainte  $\sigma$  nulle en  $r = a$ . Les expressions 3.5 et 3.6 sont alors injectées dans les équations 3.7 et 3.8, afin d'obtenir les déplacements  $u_r$  et  $u_z$ , qui sont à leur tour injectés dans les équations 3.9, 3.10 et 3.11. On obtient pour les modes axisymétriques tous calculs faits :

$$\frac{2p}{a} (q^2 + k^2) J_1(pa) J_1(qa) - (q^2 - k^2)^2 J_0(pa) J_1(qa) - 4k^2 pq J_1(pa) J_0(qa) = 0 \quad (3.12)$$

Les solutions  $k$  de cette équation permettent d'établir la relation de dispersion.

La méthode généralement utilisée consiste dans un premier temps à calculer les fréquences de coupures pour lesquelles  $k$  tend vers 0 (la vitesse de phase tendant vers l'infini). On obtient alors :

$$q^2 J_1(qa) \left[ \frac{2p}{a} J_1(pa) - q^2 J_0(pa) \right] = 0 \quad (3.13)$$

où maintenant  $p^2 = \frac{\omega^2}{c_L^2}$  et  $q^2 = \frac{\omega^2}{c_T^2}$ . On voit apparaître deux types de solutions :

- celles pour lesquelles  $J_1\left(\frac{\omega a}{c_T}\right) = 0$  représentant des ondes axi-transversales ;
- celles pour lesquelles  $\frac{2c_T}{c_L} J_1\left(\frac{\omega a}{c_L}\right) - \frac{\omega a}{c_T} J_0\left(\frac{\omega a}{c_L}\right) = 0$  représentant les ondes axi-longitudinales.

Contrairement aux ondes de plaques, nous voyons ici apparaître le rapport  $c_T/c_L$ , les courbes de dispersion dans un cylindre sont donc dépendantes du coefficient de Poisson du matériau.

Il est ensuite possible de rechercher les solutions pour  $k$  non nul pour chaque mode. La méthode consiste, à partir de chaque fréquence de coupure, à s'éloigner de  $k$  nul avec un pas suffisamment fin et de rechercher les coïncidences des changements de signes des parties réelle et imaginaire de l'équation 3.12. Ceci peut être fait pour les modes purement propagatifs ( $k$  réel), pour les modes évanescent (k imaginaire) et pour les modes propagatifs atténués ( $k$  complexe).

Une fois les couples  $(k, f)$  obtenus pour chaque mode  $(n)$ , il est possible de calculer les amplitudes de déplacements. En effet, en reportant les expressions 3.5 et 3.6 dans 3.7 et 3.8, nous obtenons pour le mode  $(n)$ , les expressions des déplacements :

$$u_r^{(n)} = A_r^{(n)} p^{(n)} J_0(p^{(n)} r) + \frac{2k^{(n)} p^{(n)} J_1(p^{(n)} a)}{(q^{(n)2} - k^{(n)2}) J_1(q^{(n)} a)} J_1(q^{(n)} r) \quad (3.14)$$

$$u_z^{(n)} = A_z^{(n)} i k^{(n)} J_0(p^{(n)} r) - i \frac{2k^{(n)} p^{(n)} J_1(p^{(n)} a)}{(q^{(n)2} - k^{(n)2}) J_1(q^{(n)} a)} q^{(n)} J_1(q^{(n)} r) \quad (3.15)$$

Les constantes de proportionnalité  $A_r^n$  et  $A_z^n$  doivent être calculées en faisant intervenir les conditions aux limites.

Le silicium, anisotrope, a été approximé par un milieu isotrope pour lequel les vitesses de phases longitudinale et transversale sont celles du silicium dans la direction de propagation  $[1,0,0]$ .

Nous représentons les courbes de dispersion des modes propagatifs pouvant exister dans la bande de mesure sur la figure 3.1. Nous avons adopté le type de représentation de Zemanek,  $(\omega a/c_s$  fonction de  $k^{(n)} a$ ).

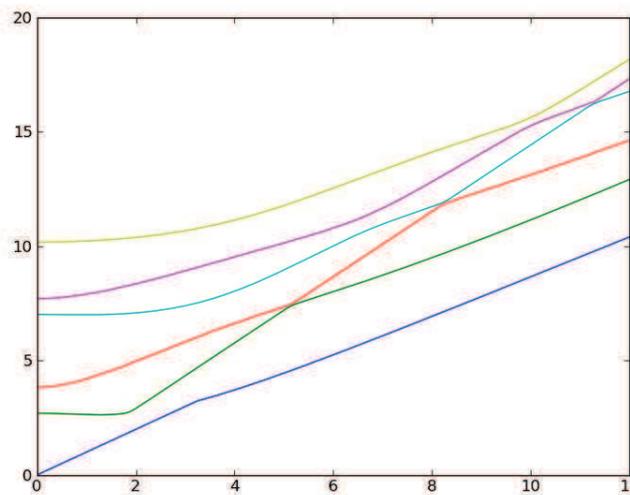


FIGURE 3.1 – Courbes de dispersion :  $\omega a/c_s$  fonction de  $k^{(n)} a$ . Mode 1 : bleu ; mode 2 : vert ; mode 3 : rouge ; mode 4 : cyan ; mode 5 : magenta ; mode 6 : jaune.

Les vitesses de groupes  $d\omega/dk$  ont été obtenues par différentiation numérique. Elles sont représentées sur la figure 3.2. La réponse du transducteur est maximale à 800 MHz. Il existe donc trois modes prépondérants dans la bande de mesure, le premier et le troisième ont des vitesses de propagation faible, de l'ordre de la célérité transversale alors que le second mode se propage à une vitesse proche de la célérité longitudinale.

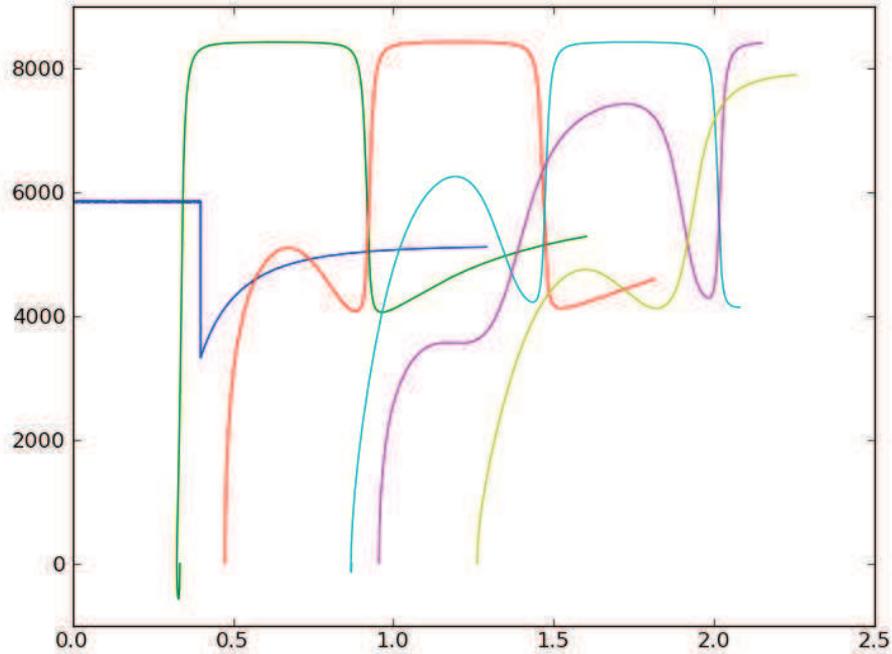


FIGURE 3.2 – Vitesses de groupes  $v_g^{(n)}$  (m/s) fonction de la fréquence [GHz]. Mode 1 :bleu ; mode 2 : vert ; mode 3 : rouge ; mode 4 : cyan ; mode 5 : magenta ; mode 6 : jaune.

Afin d'obtenir une information plus globale, il est possible d'effectuer, pour chaque mode, la moyenne de la vitesse de groupe pondérée par la puissance émise. Cette puissance est proportionnelle au carré de la résistance de rayonnement du transducteur, qui n'est autre que la partie réelle de son impédance électrique (4.15) quand les pertes du transducteurs sont négligeables, ce qui est notre cas.

$$\langle v_g \rangle = \frac{\int v_g(f) R(f)^2 df}{\int R(f)^2 df} \quad (3.16)$$

Nous obtenons ainsi pour les trois premiers modes des vitesses moyennes de 4950 m/s, 6790 m/s et 5950 m/s. Si les trois modes sont excités une perturbation mécanique du milieu se propagera à environ 6000 m/s.

Nous représentons sur la figure 3.3 les déplacements suivant  $r$  et  $z$ , normalisés à l'unité, pour les trois modes prépondérants dans la bande de mesure.

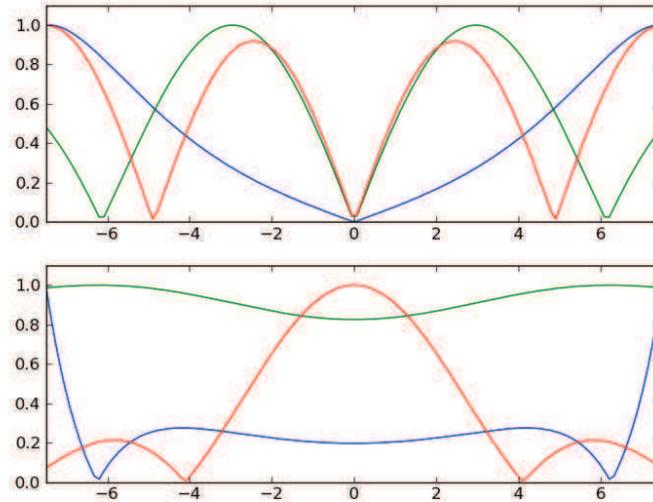


FIGURE 3.3 – Déplacement  $u_r^{(n)}$  et  $u_z^{(n)}$  en unité arbitraire fonction du rayon ( $\mu m$ ) pour les 3 premiers modes et à la fréquence de 800 MHz. Mode 1 :bleu ; mode 2 : vert ; mode 3 : rouge.

Nous pouvons observer que la distribution d'amplitude du premier mode est essentiellement située en surface du cylindre. Ceci a déjà été observé, notamment par Bancroft [66] qui remarque la similitude entre la vitesse de propagation de ce mode et celle des ondes de surface.

Nous n'avons pas poussé ce modèle plus loin pour pour deux raisons essentielles :

1. il semble difficile de représenter un ensemble de piliers avec ce modèle, il faudrait utiliser le théorème d'addition afin de ré-exprimer tous les déplacements dans une base commune, l'axe z de révolution du transducteur. Ce qui complique beaucoup le modèle.
2. le modèle décrit la propagation de modes guidés dans un milieu isotrope, le silicium ne l'est pas :
  - On peut s'attendre à un couplage entre modes axisymétriques et non-axisymétriques, qui n'est pas prévu dans le modèle.
  - les ondes guidées dans un cylindre dépendent du rapport des célérités longitudinal et transversale, on peut s'attendre à des différences importantes entre les résultats obtenus pour des rapports de célérité différents. A titre d'exemple nous avons reconstitué les vecteurs d'ondes à partir de la connaissance de leurs projections sur l'axe z ( $k$ ) et de leurs projections sur l'axe r (p ou q pour les composantes longitudinales ou transversales du déplacement). La figure suivante représente les trajectoires que font leurs extrémités en fonction de la fréquence pour les trois premiers modes. Il est évident que la propagation ne reste pas confinée dans la direction  $[0,0,1]$ .

Nous avons donc traité le problème pour une propagation dans la direction  $[0,1,1]$ . Les courbes de dispersion sont présentées sur la figure 3.5. De fortes différences apparaissent par rapport

aux résultats obtenus dans la direction  $[0,0,1]$ . Ils remettent en cause la fiabilité de l'application du modèle établi pour un matériau isotrope à un milieu anisotrope.

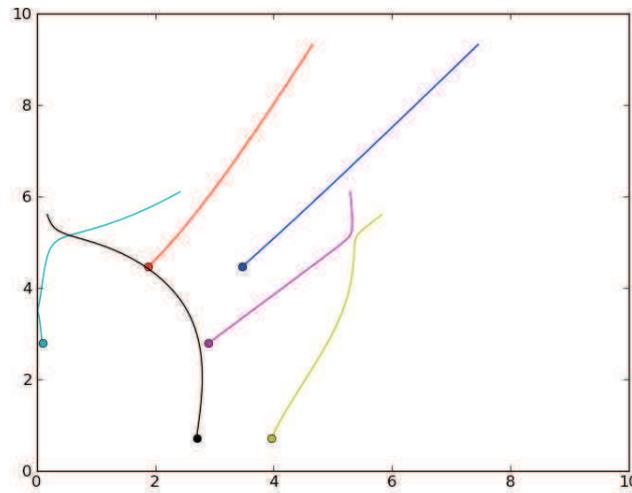


FIGURE 3.4 – Trajectoires de l'extrémité des vecteurs d'ondes multipliés par le rayon du cylindre de 500MHz (points) à 1.5 GHz. Bleu et rouge : 1er mode longitudinal et transversal ; cyan et magenta : 2ème mode longitudinal et transversal ; noir et jaune 3ème mode longitudinal et transversal.

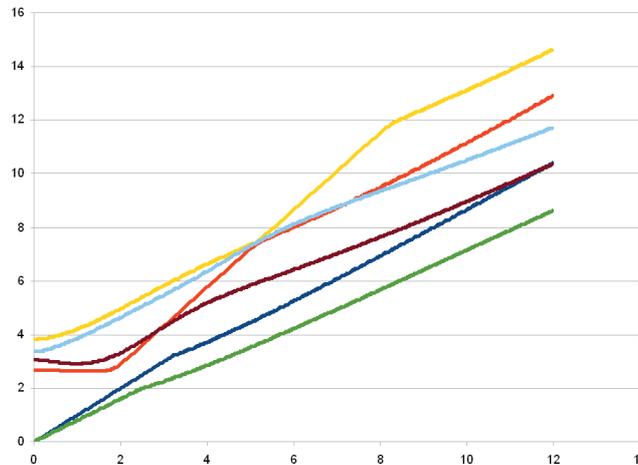


FIGURE 3.5 – Courbes de dispersion :  $\omega a/c_s$  fonction de  $k^{(n)} a$ . Mode 1 :bleu et vert ; mode 2 : rouge et marron ; mode 3 : cyan et jaune.

Nous avons abordé l'étude analytique des ondes guidées dans un cylindre. Nous avons obtenu les courbes de dispersion, les vitesses de groupe et les amplitudes de déplacement pour les premiers modes propagatifs. La théorie s'appliquant à un milieu isotrope nous avons dû approximer le silicium par un milieu isotrope. Cette approximation est incertaine, les résultats dépendent des orientations cristallines choisies. Nous avons tout de même obtenu un résultat qui pourra être réutilisé. Nous pouvons nous attendre à une vitesse de groupe de l'ordre de 6000 m/s et à un déplacement particulaire majoritairement distribué sur la surface du cylindre. Les difficultés de modéliser la propagation d'ondes élastiques dans un cylindre et dans un réseau par une méthode analytique nous ont poussés à étudier des méthodes numériques. Elles feront l'objet de la partie suivante.

## 3.2 Introduction aux approches numériques

La complexité des systèmes d'équations aux dérivées partielles qui régissent la plupart des phénomènes physiques, en particulier la propagation acoustique, ne permet pas d'obtenir des solutions analytiques dans tous les cas pratiques. Il est donc devenu nécessaire de les "prédire" ou de les appréhender en développant des modèles rigoureux les plus réalistes possibles. Comme nous l'avons remarqué l'étude analytique de la propagation dans un pilier composé d'un milieu anisotrope n'est pas satisfaisante. Plusieurs méthodes et techniques numériques ont été développées afin de résoudre ce problème. Cependant, ces méthodes avaient montré leurs limites faute de moyens de calcul, laissant ainsi la place aux études analytiques qui transforment le problème continu en un problème discret.

La plupart de ces méthodes, si l'on respecte la discrétisation du problème, procurent une approximation de la solution exacte.

L'avantage principal de ces méthodes réside dans leur capacité à déterminer des quantités inconnues (ex. champ de déplacement), en tout point de la structure et ce, même pour des structures ayant des géométries complexes.

Dans le cadre de cette thèse, deux méthodes ont été utilisées afin de modéliser l'interaction d'une onde ultrasonore avec une interface microtexturée silicium-eau, ceci afin d'estimer la sensibilité d'une onde ultrasonore à la mesure des propriétés de mouillabilité d'une interface.

Chronologiquement, nous avons tout d'abord utilisé le logiciel basé sur la méthode des éléments finis, dont nous disposons au laboratoire dans la version commerciale COMSOL Multiphysics.

Les modèles développés se sont révélés très consommateurs de temps de calcul, y compris dans une version d'un modèle 2D et très consommateur d'espace mémoire.

Les résultats de ce travail sont présentés en annexe car ils n'ont pas permis d'augmenter suffisamment la résolution temporelle et spatiale de façon à éliminer les artefacts de calcul dans les signaux recueillis au niveau du transducteur.

C'est la raison pour laquelle nous avons utilisé un modèle de calcul fondé sur la méthode des différences finies afin de décrire les signaux dans le cas de géométries de texturation différentes sur le silicium.

Contrairement à la méthode des différences finies qui cherche à résoudre exactement une équation approchée, la méthode des éléments finis cherche une solution approchée à une équation exacte (Figure 3.6).

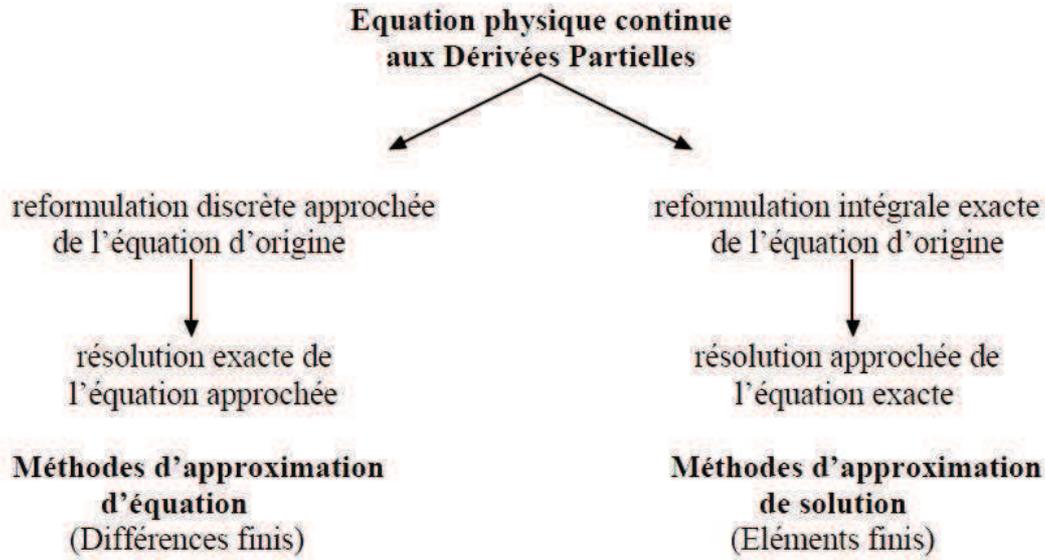


FIGURE 3.6 – Comparaison entre la méthode des différences finies et la méthode des éléments finis en termes de démarches.

Les résultats de simulations à l'aide du logiciel COMSOL ont été rassemblés en annexe A. Ils mettent en évidence les problèmes rencontrés.

Dans ce qui suit, une première partie sera consacrée à un bref rappel de la théorie de la propagation d'ondes élastiques en termes de discrétisation. La deuxième partie présentera en détail la méthode des différences finies et le modèle que nous avons développé et utilisé afin d'étudier la propagation ultrasonore aux interfaces silicium microtexturé/ fluide.

### 3.3 Equations de propagation des ondes élastiques

La propagation des ondes élastiques/acoustiques dans les solides anisotropes est décrite au chapitre 2. Il est montré qu'en négligeant l'effet de la gravitation et en tenant compte de la loi de Hooke, l'équation de propagation pour un solide anisotrope de densité  $\rho$  et de tenseur d'élasticité  $c_{ijkl}$ , s'écrit :

$$c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_l}{\partial x_j \partial x_k} = \rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2}; \quad i, j, k, l = 1, 2, 3 \quad (3.17)$$

Où  $u_i$  est la composante du déplacement particulière.

Or les composantes du tenseur des contraintes  $\sigma_{ij}$  en coordonnées cartésiennes sont :

$$\sigma_{ij} = c_{ijkl} \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \quad (3.18)$$

Alors la  $i$ ème composante du vecteur déplacement sera exprimée par la relation :

$$\frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \frac{1}{\rho} \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} \quad (3.19)$$

Dans un fluide parfait, le tenseur des contraintes est isotrope et les contraintes tangentielles sont nulles. La contrainte normale est l'opposée de la pression :

$$p = -\sigma_{ij} \quad (3.20)$$

(la contribution de la pression est négative parce que le fluide est en compression.)

Par ailleurs, il a été montré au chapitre 2 que :

$$\nabla^2 p - \frac{\rho}{\lambda} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} = 0 \quad (3.21)$$

En analyse numérique, la résolution de ces équations permet de simuler le comportement élastique d'un milieu quelconque, et donc sa réponse aux différentes sollicitations extérieures qu'il subit, notamment les excitations générant des ondes acoustiques.

## 3.4 Approche par différences finies

La méthode des différences finies (MDF) a été historiquement, la première méthode utilisée pour calculer par ordinateur, la solution des équations différentielles. Elle permet l'étude des champs variables dans le temps et dans l'espace. Les régimes transitoires, les systèmes non linéaires sont étudiés grâce au traitement de ces équations dans le domaine temporel. Plusieurs phénomènes physiques ont été décrits par des équations différentielles de premier ordre couplées où la dérivée temporelle d'un champ est liée à la dérivée spatiale d'un autre champ, comme par exemple la propagation des ondes acoustiques, élastiques ou électromagnétiques.

### 3.4.1 Principe de la méthode

A partir des équations de mouvement régissant la propagation des ondes élastiques dans un milieu quelconque, la FDTD permet de rapprocher les solutions du champ de déplacement et des contraintes en se fondant sur un développement en différences finies des dérivées partielles qui interviennent dans les équations en question.

Avant de développer ces équations, la première étape consiste d'abord à construire deux discrétisations [67], l'une dans l'espace (pour les dérivées spatiales) et l'autre temporelle (relative aux dérivées temporelles), avec des espacements  $\Delta x$ ,  $\Delta y$  et  $\Delta z$  dans les trois directions de l'espace, et un intervalle  $\Delta t$

pour la discrétisation temporelle. En général, la condition  $\Delta x = \Delta y = \Delta z$  est choisie afin d'avoir une grille FDTD cubique.

Les dérivées partielles sont ensuite exprimées par des différences finies selon la décomposition de Taylor, ce qui consiste à remplacer analytiquement une dérivée par une expression algébrique approchée.

Pour une fonction champ de déplacement  $u(x, y, z)$ , le développement de Taylor entre les deux points  $u(x, y, z)$  et  $u(x + \Delta x, y, z)$  à un instant  $t$ , donne :

$$u(x + \Delta x) = u(x) + \Delta x \frac{\partial u(x)}{\partial x} + \frac{\Delta x^2}{2!} \frac{\partial^2 u(x)}{\partial x^2} + \frac{\Delta x^3}{3!} \frac{\partial^3 u(x)}{\partial x^3} + \frac{\Delta x^4}{4!} \frac{\partial^4 u(x)}{\partial x^4} + \dots \quad (3.22)$$

$$u(x - \Delta x) = u(x) - \Delta x \frac{\partial u(x)}{\partial x} + \frac{\Delta x^2}{2!} \frac{\partial^2 u(x)}{\partial x^2} - \frac{\Delta x^3}{3!} \frac{\partial^3 u(x)}{\partial x^3} + \frac{\Delta x^4}{4!} \frac{\partial^4 u(x)}{\partial x^4} + \dots$$

En écrivant ces développements à l'ordre 1 :

$$u(x + \Delta x) = u(x) + \Delta x \frac{\partial u(x)}{\partial x} + O(\Delta x^2) \quad (3.23)$$

Soit

$$\frac{\partial u(x)}{\partial x} = \frac{u(x + \Delta x) - u(x)}{\Delta x} + O(\Delta x) \quad (3.24)$$

qui est le schéma de discrétisation avant.

Ou encore :

$$u(x - \Delta x) = u(x) - \Delta x \frac{\partial u(x)}{\partial x} + O(\Delta x^2) \quad (3.25)$$

Soit

$$\frac{\partial u(x)}{\partial x} = \frac{u(x) - u(x - \Delta x)}{\Delta x} + O(\Delta x) \quad (3.26)$$

qui correspond au schéma de discrétisation arrière.

Pour le schéma centré :

En faisant la différence des deux expressions (Équation 3.23) et (Équation 3.25) :

$$u(x + \Delta x) - u(x - \Delta x) = 2\Delta x \frac{\partial u(x)}{\partial x} + O(\Delta x^2) \quad (3.27)$$

Soit

$$\frac{\partial u(x)}{\partial x} = \frac{u(x + \Delta x) - u(x - \Delta x)}{2\Delta x} + O(\Delta x) \quad (3.28)$$

On choisit souvent un maillage suffisamment fin pour pouvoir négliger  $O(\Delta x)$  d'où :

$$\frac{\partial u(x)}{\partial x} = \frac{u(x + \Delta x) - u(x - \Delta x)}{2\Delta x} \quad (3.29)$$

Le calcul utilisé dans cette méthode est un calcul itératif en fonction des données antérieures. Une étude fine réclame un grand nombre de points de discrétisation, ce qui implique un nombre important de places en mémoire et un temps de calcul relativement long. Ces besoins informatiques importants ont, par le passé, considérablement freiné l'adaptation de la méthode. Néanmoins, les moyens informatiques se sont développés rapidement, avec une disponibilité croissante de processeurs massivement parallèles autant que de logiciels performants qui sont maintenant disponibles. De nombreux utilisateurs ont acquis une bonne expérience dans l'utilisation de la méthode FDTD pour résoudre les problèmes les plus variés. Il s'agit alors d'une méthode qui présente de grandes potentialités pour analyser les champs dans de nombreuses structures utilisées pour autant que l'on dispose de moyens informatiques appropriés.

### 3.4.2 Définition de la structure étudiée

La figure 3.8 illustre une coupe en 2D de la structure des différents modèles développés dans ce travail (Figure 3.7). Notre étude est fondée sur un modèle à deux dimensions et donc nous supposons que la structure est infinie dans la direction Z et finie dans les directions X et Y des coordonnées cartésiennes (OXYZ).

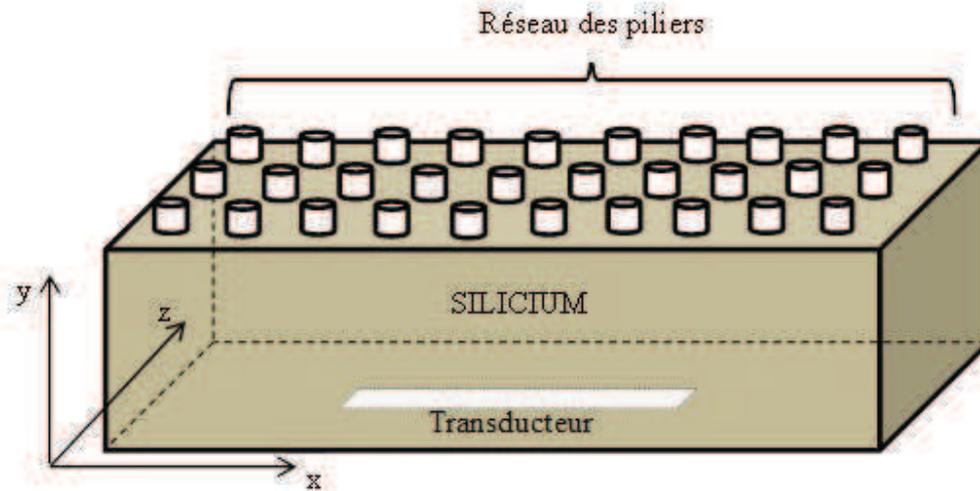


FIGURE 3.7 – Structure 3D du modèle.

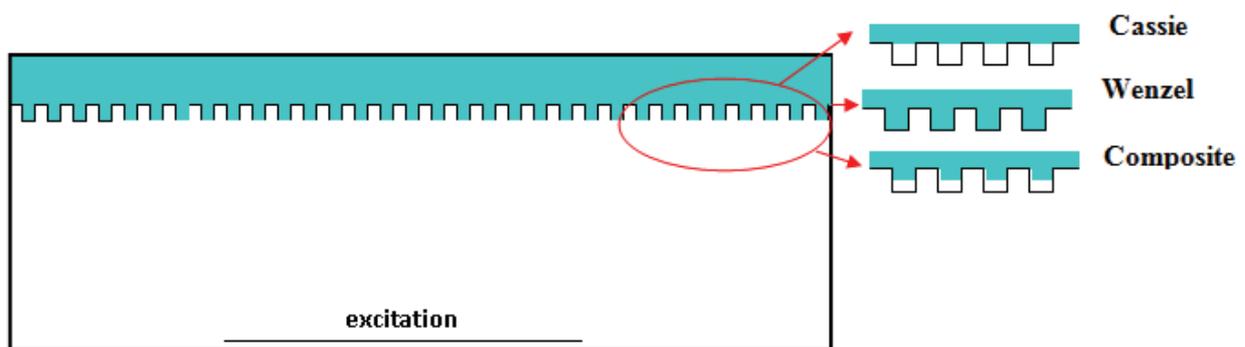


FIGURE 3.8 – Structure 2D du modèle en FDTD.

Chaque structure est composée de trois régions distinctes :

1. monocristal de silicium anisotrope microtexturé avec différents motifs. Les caractéristiques physiques de ce monocristal sont [58] :  $\rho$  : masse volumique telle que  $\rho = 2330 \text{ kg.m}^{-3}$  et les constantes élastiques du silicium telles que  $c_{11} = 16,56.10^{10} \text{ N.m}^{-2}$ ,  $c_{12} = 6,39.10^{10} \text{ N.m}^{-2}$  et  $c_{44} = 7,95.10^{10} \text{ N.m}^{-2}$ . Nous supposons que les piliers de la microtexturation sont de largeur "a", d'espacement "b" et de hauteur "h" et qu'ils sont parallèles à l'axe Y, la direction de propagation de l'onde.
2. zone d'eau de masse volumique  $1000 \text{ kg.m}^{-3}$  ; avec une vitesse longitudinale de l'onde telle que  $C_l = 1490 \text{ ms}^{-1}$  ( $C_t = 0 \text{ ms}^{-1}$ ).

3. région homogène de fluide (air) de masse volumique  $\rho = 1,3 \text{ kg.m}^{-3}$  et de vitesse longitudinale  $C_l = 340 \text{ ms}^{-1}$ .

### 3.4.3 Equations et discrétisation

En exploitant les études de Sigalas et al. [68] en milieux composites; Merheb et al. [69], [70] ont développé une méthode FDTD pour des structures composites viscoélastiques à 2D et ont calculé les spectres de transmission à travers des cristaux phononiques. Leur application FDTD en deux dimensions est fondée sur une exploitation des équations des déplacements et de celles des contraintes. Fondé sur cette dernière méthode, nous avons conçu un modèle numérique en discrétisant les équations des ondes élastiques dans les deux domaines spatial et temporel et nous avons décrit l'évolution du champ de déplacement élastique  $u(x, y, z, t)$  dans les deux domaines spatial et temporel.

Pour la géométrie choisie (Figure 3.8) présentant une symétrie de translation le long de la direction  $z$ , et comme la symétrie du matériau est cubique, la composante suivant  $z$  est découplée des composantes suivant  $x$  et  $y$ . D'où pour les composantes suivant  $x$  et  $y$  de l'équation d'ondes (Équation 3.19) s'expriment :

$$\begin{aligned}\frac{\partial^2 u_x}{\partial t^2} &= \frac{1}{\rho} \left( \frac{\partial \sigma_{xx}}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_{xy}}{\partial y} \right) \\ \frac{\partial^2 u_y}{\partial t^2} &= \frac{1}{\rho} \left( \frac{\partial \sigma_{xy}}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_{yy}}{\partial y} \right)\end{aligned}\tag{3.30}$$

En raison des grandes difficultés rencontrées dans la résolution des équations du second ordre (en  $u$ ), il est indispensable de passer à la résolution des équations du premier ordre (en  $v$ ).

Etant donné que  $v = \frac{\partial u}{\partial t}$  alors , les équations précédentes (Équation 3.30) deviennent :

$$\begin{aligned}\frac{\partial v_x}{\partial t} &= \frac{1}{\rho} \left( \frac{\partial \sigma_{xx}}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_{xy}}{\partial y} \right) \\ \frac{\partial v_y}{\partial t} &= \frac{1}{\rho} \left( \frac{\partial \sigma_{xy}}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_{yy}}{\partial y} \right)\end{aligned}\tag{3.31}$$

D'autre part, le tenseur de contrainte (Équation 3.18) sera :

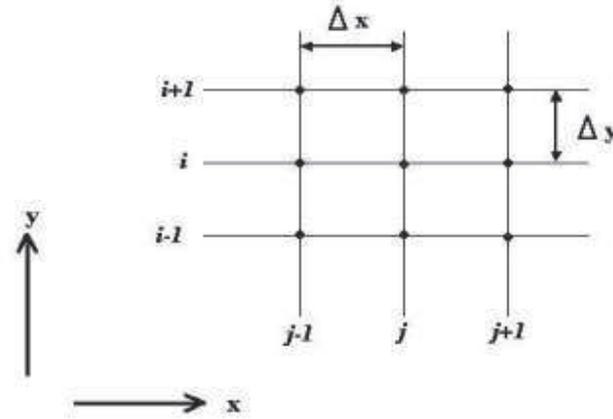
$$\begin{aligned}
\sigma_{xx}(t) &= c_{11} \frac{\partial u_x}{\partial x}(t) + c_{12} \frac{\partial u_y}{\partial y}(t) \\
\sigma_{yy}(t) &= c_{11} \frac{\partial u_y}{\partial y}(t) + c_{12} \frac{\partial u_x}{\partial x}(t) \\
\sigma_{xy}(t) &= c_{44} \left( \frac{\partial u_x}{\partial y}(t) + \frac{\partial u_y}{\partial x}(t) \right)
\end{aligned} \tag{3.32}$$

Pour faire apparaître la vitesse dans les équations de Hooke, dérivons le tenseur de contraintes. Nous obtenons alors :

$$\begin{aligned}
\frac{\partial \sigma_{xx}}{\partial t}(t) &= c_{11} \frac{\partial v_x}{\partial x}(t) + c_{12} \frac{\partial v_y}{\partial y}(t) \\
\frac{\partial \sigma_{yy}}{\partial t}(t) &= c_{11} \frac{\partial v_y}{\partial y}(t) + c_{12} \frac{\partial v_x}{\partial x}(t) \\
\frac{\partial \sigma_{xy}}{\partial t}(t) &= c_{44} \left( \frac{\partial v_x}{\partial y}(t) + \frac{\partial v_y}{\partial x}(t) \right)
\end{aligned} \tag{3.33}$$

Pour la mise en œuvre, le domaine de calcul est divisé en sous-domaines  $i_{max} \times j_{max}$  (grilles) (Figure 3.9), avec des dimensions  $\Delta x$ ,  $\Delta y$ , et des composantes du vecteur déplacement discrétisées conformément à :

$$\begin{aligned}
u_l(x, y, t) &= u_l(i \Delta x, j \Delta y, k \Delta t), \quad l = x, y \\
\text{avec } 1 &\leq i \leq i_{max}, \quad 1 \leq j \leq j_{max} \text{ et } k \geq 0
\end{aligned} \tag{3.34}$$

FIGURE 3.9 – Grille  $i_{\max} \times j_{\max}$ .

Dans les équations des déplacements et des contraintes (3.31) et (3.33), les dérivées sont approximées dans l'espace avec des différences finies "centrées" et dans le temps avec des différences finies "en avant". Selon Sigalas [68] la discrétisation de l'équation 3.32 nous permet de calculer le tenseur des contraintes  $(\sigma_{xx}, \sigma_{yy}, \sigma_{xy})$  au point  $(i,j)$  à  $t_n$ .

Si nous connaissons les valeurs de déplacement en  $(i,j)$ ,  $(i+1,j)$ ,  $(i,j-1)$ ,  $(i,j+1)$  et  $(i-1,j)$  à l'instant précédent  $t(n)$ , le tenseur des contraintes s'écrit selon Sigalas :

$$\begin{aligned} \sigma_{xx}^n(i, j) &= c_{11}(i + 1/2, j) \frac{u_x^n(i + 1, j) - u_x^n(i, j)}{dx} + c_{12}(i + 1/2, j) \frac{u_y^n(i, j) - u_y^n(i, j - 1)}{dy} \\ \sigma_{yy}^n(i, j) &= c_{11}(i + 1/2, j) \frac{u_y^n(i, j) - u_y^n(i, j - 1)}{dx} + c_{12}(i + 1/2, j) \frac{u_x^n(i + 1, j) - u_x^n(i, j)}{dx} \\ \sigma_{xy}^n(i, j) &= c_{44}(i, j + 1/2) \left[ \frac{u_x^n(i, j + 1) - u_x^n(i, j)}{dy} + \frac{u_y^n(i, j) - u_y^n(i - 1, j)}{dx} \right] \end{aligned} \quad (3.35)$$

Avec

$$\begin{aligned}
c_{11}(i + 1/2, j) &= \sqrt{c_{11}(i + 1, j) \times c_{11}(i, j)} \\
c_{12}(i + 1/2, j) &= \sqrt{c_{12}(i + 1, j) \times c_{12}(i, j)} \\
c_{44}(i, j + 1/2) &= \sqrt{c_{44}(i + 1, j) \times c_{44}(i, j)}
\end{aligned} \tag{3.36}$$

Les équations d'ondes discrétisées (Équation 3.31) sont alors :

$$\begin{aligned}
v_x^{n+1}(i, j) &= v_x^n(i, j) + \frac{1}{\rho(i, j)} \left[ \frac{dt}{dx} (\sigma_{xx}^n(i, j) - \sigma_{xx}^n(i - 1, j)) + \frac{dt}{dx} (\sigma_{xy}^n(i, j) - \sigma_{xy}^n(i, j - 1)) \right] \\
v_y^{n+1}(i, j) &= v_y^n(i, j) + \frac{1}{\rho(i + 1/2, j + 1/2)} \left[ \frac{dt}{dx} (\sigma_{xy}^n(i + 1, j) - \sigma_{xy}^n(i, j)) + \frac{dt}{dx} (\sigma_{yy}^n(i, j + 1) - \sigma_{yy}^n(i, j)) \right]
\end{aligned} \tag{3.37}$$

Avec

$$\rho(i + 1/2, j + 1/2) = \sqrt[4]{\rho(i, j)\rho(i + 1, j)\rho(i, j + 1)\rho(i + 1, j + 1)} \tag{3.38}$$

Pour remonter aux valeurs de déplacements :

$$\begin{aligned}
u_x^{n+1} &= u_x^n + dt v_x^{n+1} \\
u_y^{n+1} &= u_y^n + dt v_y^{n+1}
\end{aligned} \tag{3.39}$$

### 3.4.4 Conditions d'application

#### Stabilité

La discrétisation du domaine de calcul a pour effet une dispersion des signaux se propageant sur la grille. Cette dispersion dépend essentiellement du pas de discrétisation spatiale. Il est important de diminuer cet effet de dispersion à des valeurs adéquates de précision sur le calcul réalisé ; il faut, en particulier, que la longueur d'onde des signaux soit échantillonnée sur un nombre suffisant de points. Afin de choisir les pas de discrétisation spatial et temporel convenables, un critère de stabilité Courant-Friedrich-Levy (CFL) doit être respecté [67]. Soit :

$$\Delta t \leq \frac{1}{c \sqrt{\frac{1}{\Delta x^2} + \frac{1}{\Delta y^2} + \frac{1}{\Delta z^2}}} \quad (3.40)$$

Où  $c$  est la vitesse de phase maximale entre les différents matériaux utilisés dans la structure. Dans notre travail (en 2D) nous avons considéré la condition suivante :

$$\Delta t \leq \frac{1}{c \sqrt{\frac{1}{\Delta x^2} + \frac{1}{\Delta y^2}}}$$

### Convergence

Un schéma convergent est un schéma stable et consistant.

Les travaux effectués révèlent que le modèle converge bien et que la consistance est justifiée par la cohérence pour différentes valeurs de  $\Delta t$ .

### 3.4.5 Les conditions initiales

Le milieu est supposé être en équilibre au temps  $t = 0$ . En d'autres termes, la contrainte et la vitesse sont mises à zéro partout dans le milieu.

$$\begin{aligned} \text{à } t = 0 : \\ u_x &= u_y \\ v_x &= v_y \\ \sigma_{xx} &= 0 \\ \sigma_{yy} &= 0 \\ \sigma_{xy} &= 0 \end{aligned} \quad (3.41)$$

### 3.4.6 Source d'excitation

L'excitation initiale est imposée en fixant des valeurs de contraintes considérées aux positions et temps voulus. Dans notre cas, nous imposons les valeurs des champs de déplacement et de vitesse aux points de la structure où le transducteur est supposé placé. Les fonctions utilisées pour générer le champ de déplacement en fonction du temps sont :

$$u_x = 0 ; u_y(i\Delta x, j\Delta y, k\Delta t) = A \sin(\omega k\Delta t) \quad v_x = 0 , \quad v_y(i\Delta x, j\Delta y, k\Delta t) = A \omega \cos(\omega k\Delta t) \quad (3.42)$$

et

$$u_x = 0 ; u_y(i\Delta x, j\Delta y, k\Delta t) = A \cos(\omega k\Delta t) \quad v_x = 0 , \quad v_y(i\Delta x, j\Delta y, k\Delta t) = -A \omega \sin(\omega k\Delta t) \quad (3.43)$$

Avec  $i=0$ ;  $0 < j < n$

$0 < t < T$  et  $A = 5.10^{-12}m$  choisi arbitrairement.

### 3.4.7 Algorithme de récurrence

Nous utilisons un algorithme de récurrence permettant de déterminer les valeurs de la vitesse et la déformation à l'instant suivant, connaissant l'état initial à  $t = 0$ . Ainsi, chaque pas temporel devient la condition initiale de l'incrément suivante. La récurrence s'appuie sur la connaissance des composantes  $u_x$  et  $u_y$  du champ de déplacement en tout point de la structure à l'instant  $t_n$ . L'équation 3.35 permet de calculer les contraintes correspondantes, en tout point M, à ce même instant  $t_n$ . Puis à l'aide de l'équation 3.37, nous déterminons la vitesse à l'instant  $t_{n+1}$ . Enfin par une intégrale dans le temps nous extrayons le déplacement à l'instant  $n+1$ . Nous incrémentons alors la boucle de récurrence comme représentée sur la Figure 3.10

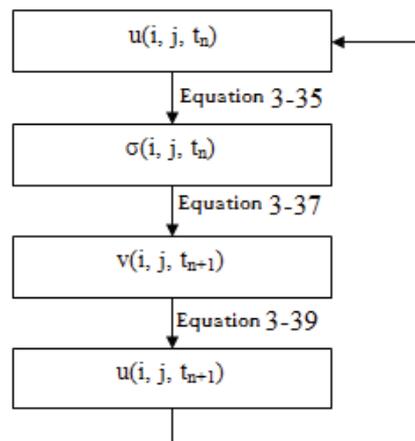


FIGURE 3.10 – Organigramme de récurrence pour le calcul des champs de déplacements à l'instant  $t_{n+1}$  à partir de l'instant  $t_n$ .

### 3.4.8 Les conditions aux limites

Les hypothèses de non-glissement à l'interface liquide-solide et de contrainte nulle à l'interface fluide-liquide sont utilisées. Ces dernières nous permettent de considérer, d'une part, les conditions aux limites internes de continuité de déplacements et de vecteur de contrainte aux interfaces entre le silicium et l'eau, et d'autre part, les conditions de surface libre entre le silicium et l'air.

### 3.4.9 Résultats

Dans tous les calculs effectués ci-dessous, les pas spatiaux-temporels sont  $\Delta x = \Delta y = 5 \cdot 10^{-7}$  m et  $\Delta t = 1.048 \cdot 10^{-11}$  s. La viscosité de l'eau sera considérée comme négligeable et les conditions de continuité à l'interface solide / liquide sont assumées (§3.2.7).

#### Surfaces sans pilier

Une surface lisse a été choisie en premier temps dans le but de valider la méthode d'analyse et quantifier plus tard les mesures sur des surfaces microtexturées.

Conformément au traitement du signal que nous utiliserons dans la suite des expériences (§4.2.1), nous avons effectué les calculs en deux temps. La première simulation effectuée sur une interface Si/air est utilisée comme référence; la deuxième simulation effectuée sur une interface Si/eau nous permet de retrouver le coefficient de réflexion à cette interface.

Afin de simuler le signal électrique fourni par le récepteur ultrasonore, nous calculons la moyenne de  $u_y$  sur sa surface. Nous afficherons dans la suite le module du signal analytique correspondant.

La courbe de la figure 3.11 montre les signaux incident et réfléchi sur une interface silicium/air; ce dernier est en retard de  $94,3 \text{ ns}$ , ce qui correspond au temps mis par la propagation de l'onde dans le milieu. En effet, compte tenu de la distance de propagation  $d = 2e = 792 \text{ } \mu\text{m}$  conduit à  $t = 94,3 \text{ ns}$  ( $e$  étant l'épaisseur du substrat).

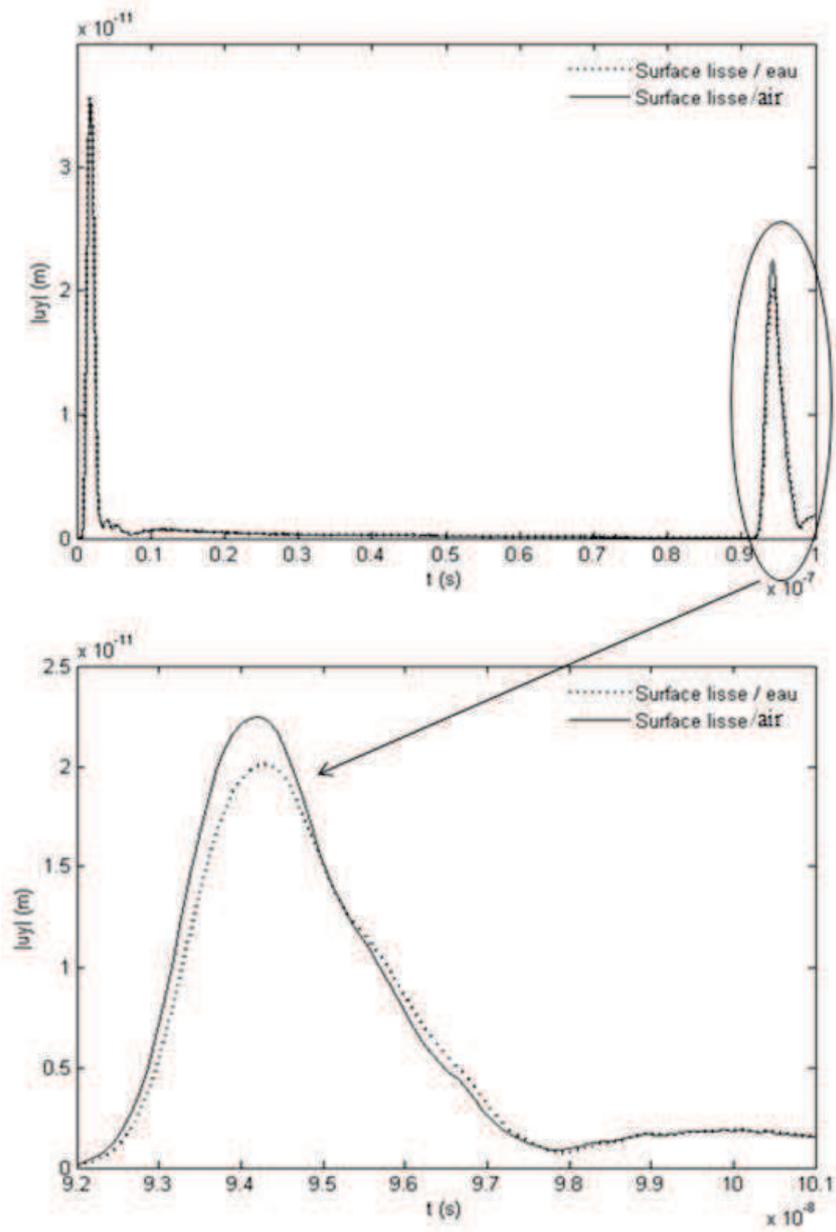


FIGURE 3.11 – Signal réfléchi sur une surface lisse avec et sans présence d'eau.

En présence d'eau sur la surface du "substrat", l'amplitude du signal réfléchi diminue du fait qu'une partie de son énergie est transmise dans l'eau. Le coefficient de réflexion, dans ce cas, peut être déduit du rapport entre ce signal et celui obtenu dans le cas de l'air (pris comme référence). La valeur moyenne 0,87 retrouvée est conforme à la valeur théorique correspondant à une interface Silicium/eau (0,86).

## Surfaces microtexturées

### Surface libre

Nous avons remarqué que le diagramme d'échos des interfaces microtexturées se différencie de celui des surfaces lisses par la présence de plusieurs échos.

C'est la raison pour laquelle nous avons choisi d'utiliser une onde haute fréquence de façon à disposer d'une résolution temporelle compatible avec la hauteur des piliers utilisés dans la microtexturation de la surface.

Plusieurs cas ont été étudiés.

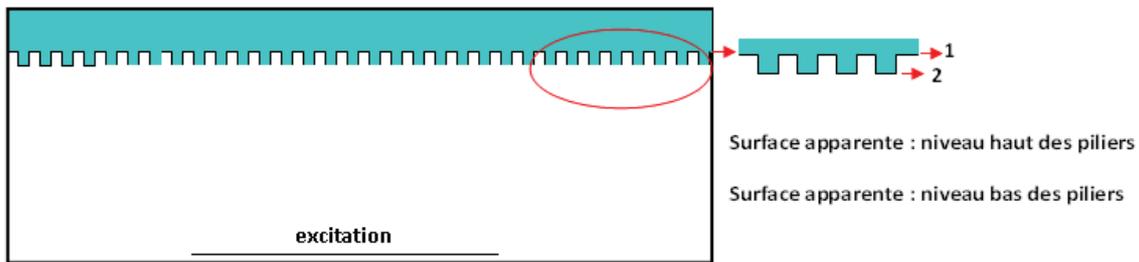


FIGURE 3.12 – Représentation schématique de la structure de piliers 2D.

**Cas 1 :** Le premier modèle est celui d'une surface texturée ( $a$ ,  $b$ ,  $h$ ) ayant les paramètres suivants : largeur des piliers  $a = 15 \mu m$ , hauteur des piliers  $h = 20 \mu m$  et espacement entre piliers  $b = 30 \mu m$ . Compte tenu de cette géométrie, la figure 3.13 montre que le premier écho se produit  $94,3 ns$  après l'émission, ce qui correspond au temps de propagation d'une onde longitudinale dans le silicium pour atteindre la base des piliers.

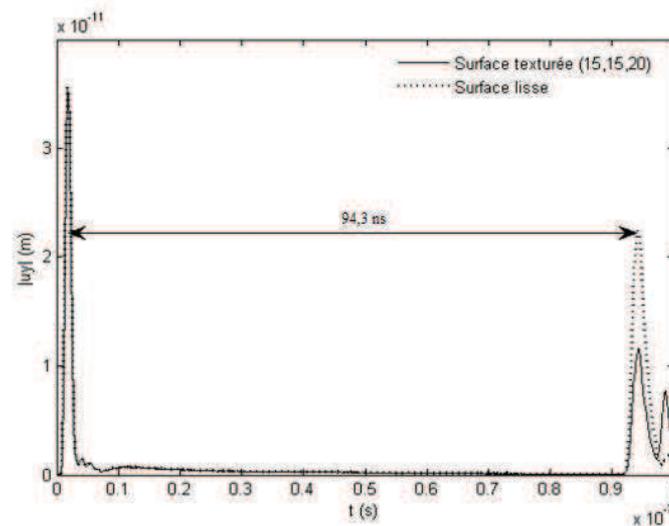


FIGURE 3.13 – Signal réfléchi du premier modèle texturé (de paramètres suivants : largeur des piliers =  $a = 15 \mu m$ , hauteur des piliers =  $h = 20 \mu m$  et espacement =  $b = 15 \mu m$ ).

En effet compte tenu de la distance de propagation  $d = 2e = 792 \mu m$  conduit à  $t = 94,3 ns$ . Une valeur en concordance avec le cas précédent ; cas d'une surface lisse. Par contre, nous pouvons remarquer (Figure 3.14) que l'amplitude de cet écho est moindre et vaut la moitié de celle obtenue pour une surface lisse. Cette différence est liée à la diminution d'un facteur deux de la surface réfléchissante à la base des piliers par rapport au cas précédent.

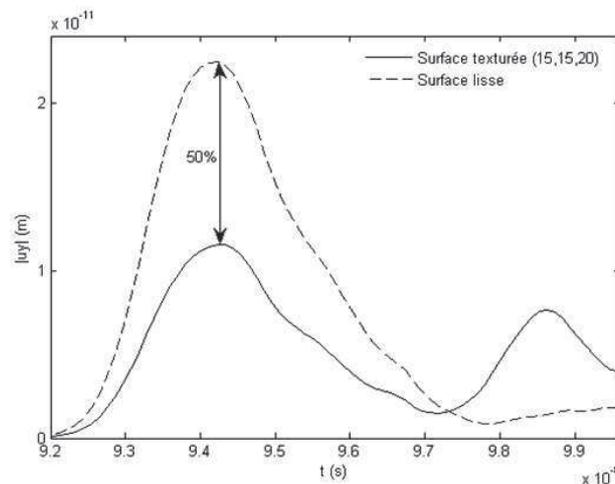


FIGURE 3.14 – Comparaison des signaux réfléchis par une surface lisse et une surface texturée.

Par ailleurs, le second écho de la figure 3.15 se trouve à  $(94,3+4,4)$  de l'émission principale. Un retard de  $4,4 ns$  qui n'est autre que la conséquence du temps de propagation de l'onde dans la structure "piliers". En d'autres termes, le premier écho est attribué à la réflexion de l'onde par le niveau "bas des piliers" et le second résulte de la réflexion sur le niveau "haut des piliers".

Ce retard est compatible avec les calculs de vitesse de groupe des ondes guidées.

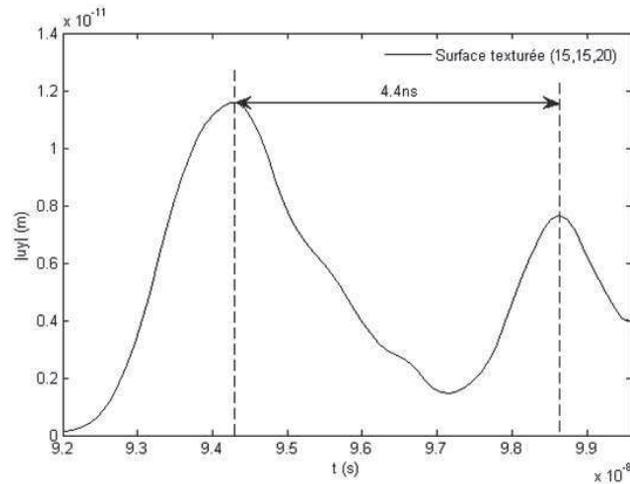


FIGURE 3.15 – Retard entre les deux échos réfléchis.

**Cas 2 :** Pour confirmer ce résultat, la même analyse a été réalisée pour une autre géométrie (a, b, 2h). Il s'agit des piliers ayant la même largeur, la même périodicité, mais d'une hauteur 2h (Figure 3.16). Dans ce cas, le retard obtenu par simulation numérique est de 9,3 ns. Cela confirme le lien entre le retard du second écho et la hauteur des piliers. Toutefois, la différence d'amplitude entre les seconds échos obtenus pour les deux structures pourrait s'expliquer par les pertes dues à la conversion de modes des ondes guidées dans les piliers.

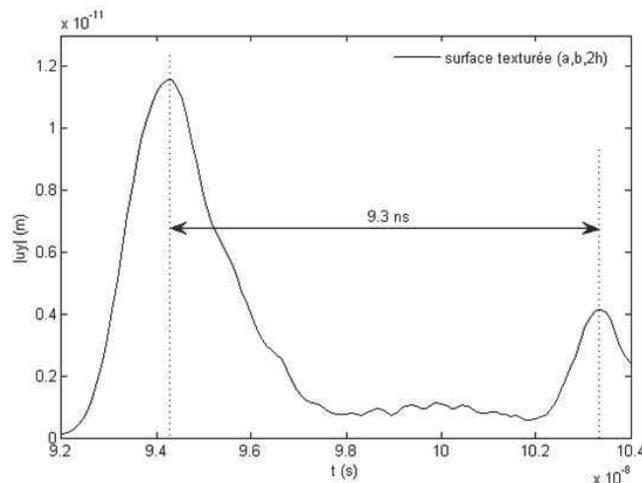


FIGURE 3.16 – Retard entre les deux échos pour une hauteur 2h.

Pour approfondir cet effet sur nos mesures, plusieurs cas ont été abordés tout en laissant les autres paramètres constants (même largeur des piliers, même espacement, hauteur variable).

Nous remarquons que, (Figure 3.17), au fur et à mesure que nous augmentons la hauteur des piliers, le rapport  $\text{écho2}/\text{écho1}$  diminue ce qui pourrait laisser supposer une modification des conversions de mode dans les piliers.

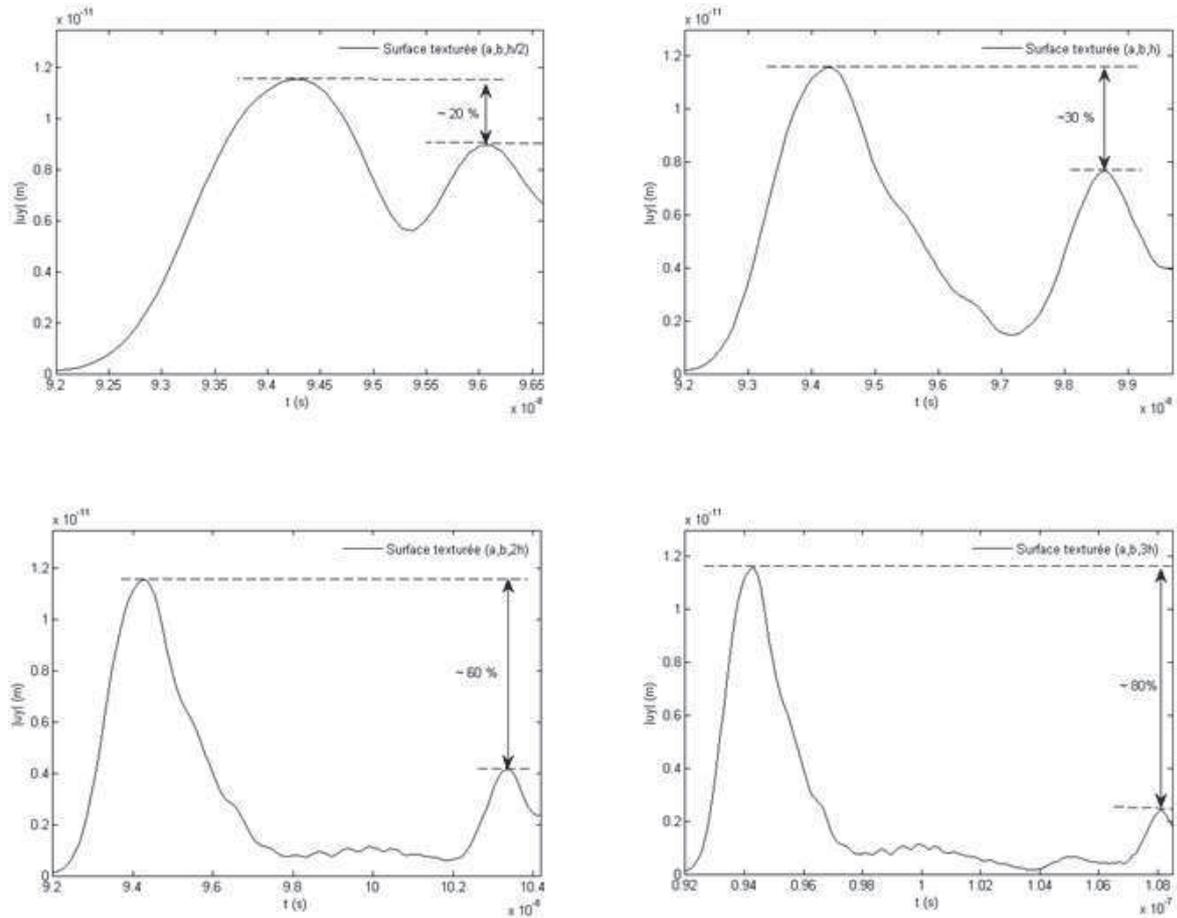


FIGURE 3.17 – Influence de la hauteur des piliers sur l'amplitude du 2nd écho réfléchi.

Pour comprendre les interactions entre l'onde longitudinale incidente et les piliers, des études plus détaillées ont été menées de façon à analyser la propagation de l'onde dans les piliers.

Une première estimation du champ de déplacement dans les piliers donne les profils suivants :

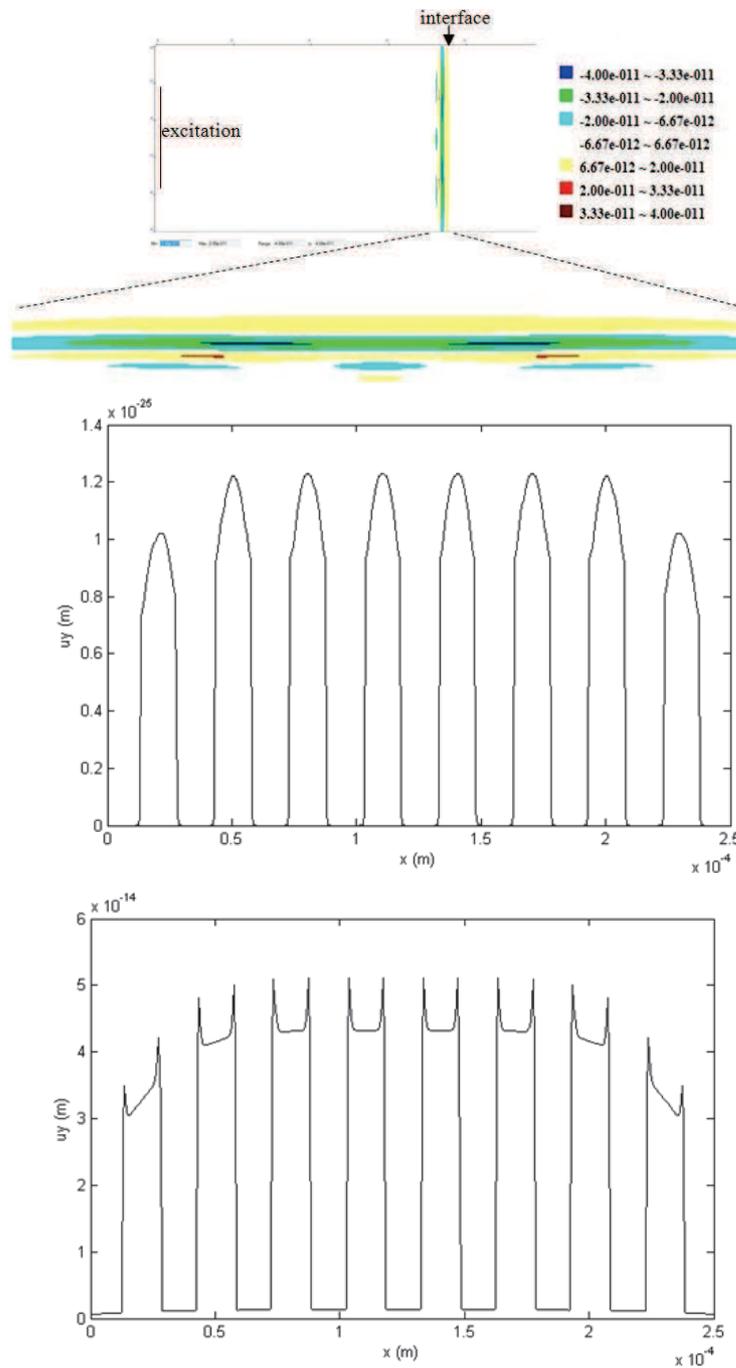


FIGURE 3.18 – Champ de déplacement dans les piliers à  $t=46,2$  ns.

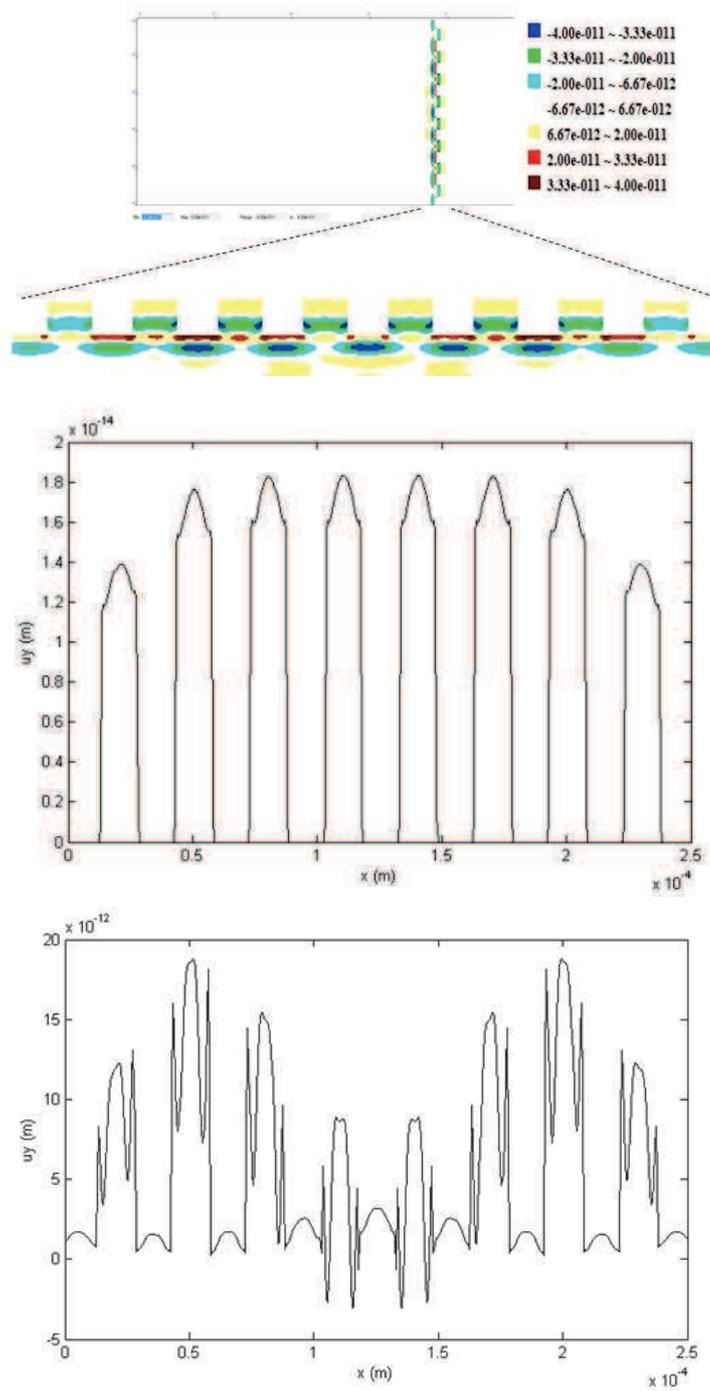


FIGURE 3.19 – Champ de déplacement dans les piliers à  $t=48,6$  ns.

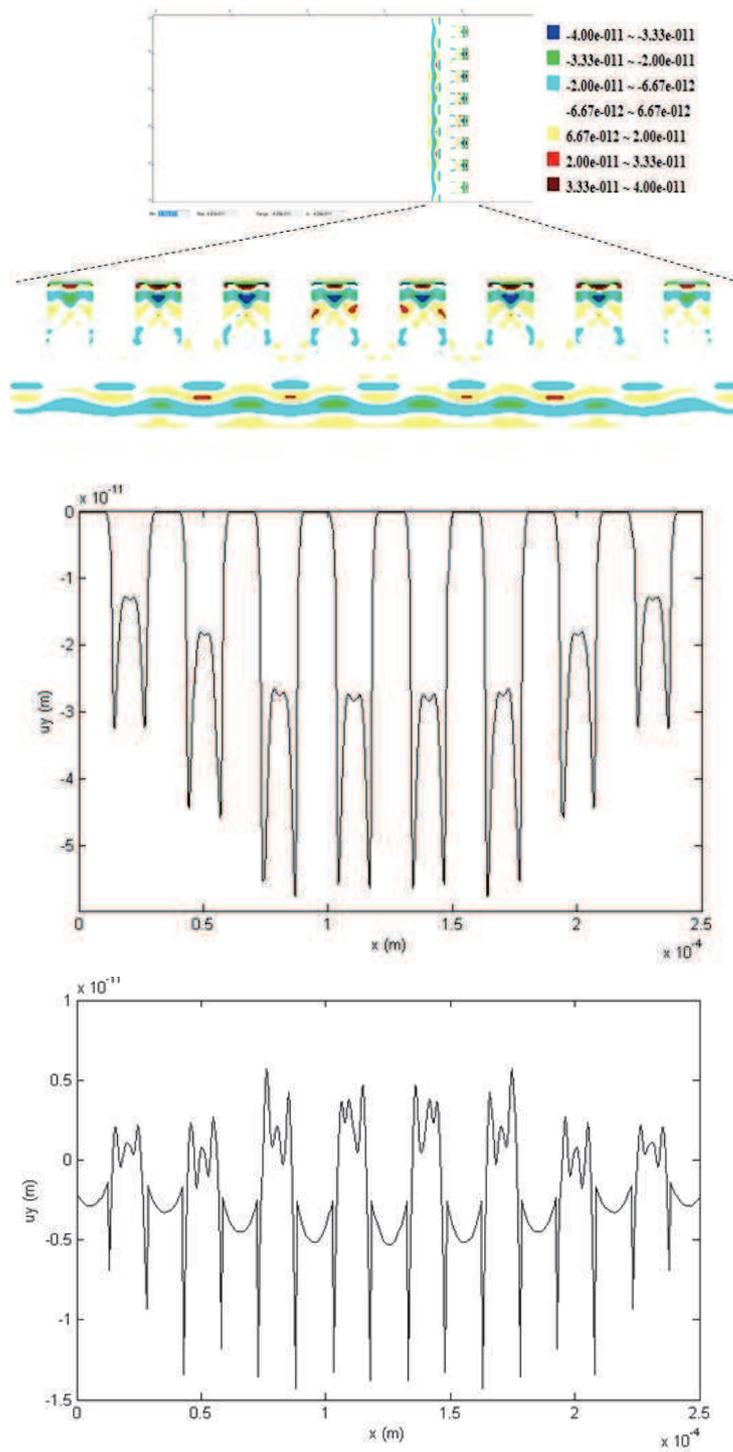


FIGURE 3.20 – Champ de déplacement dans les piliers à  $t=51$  ns.

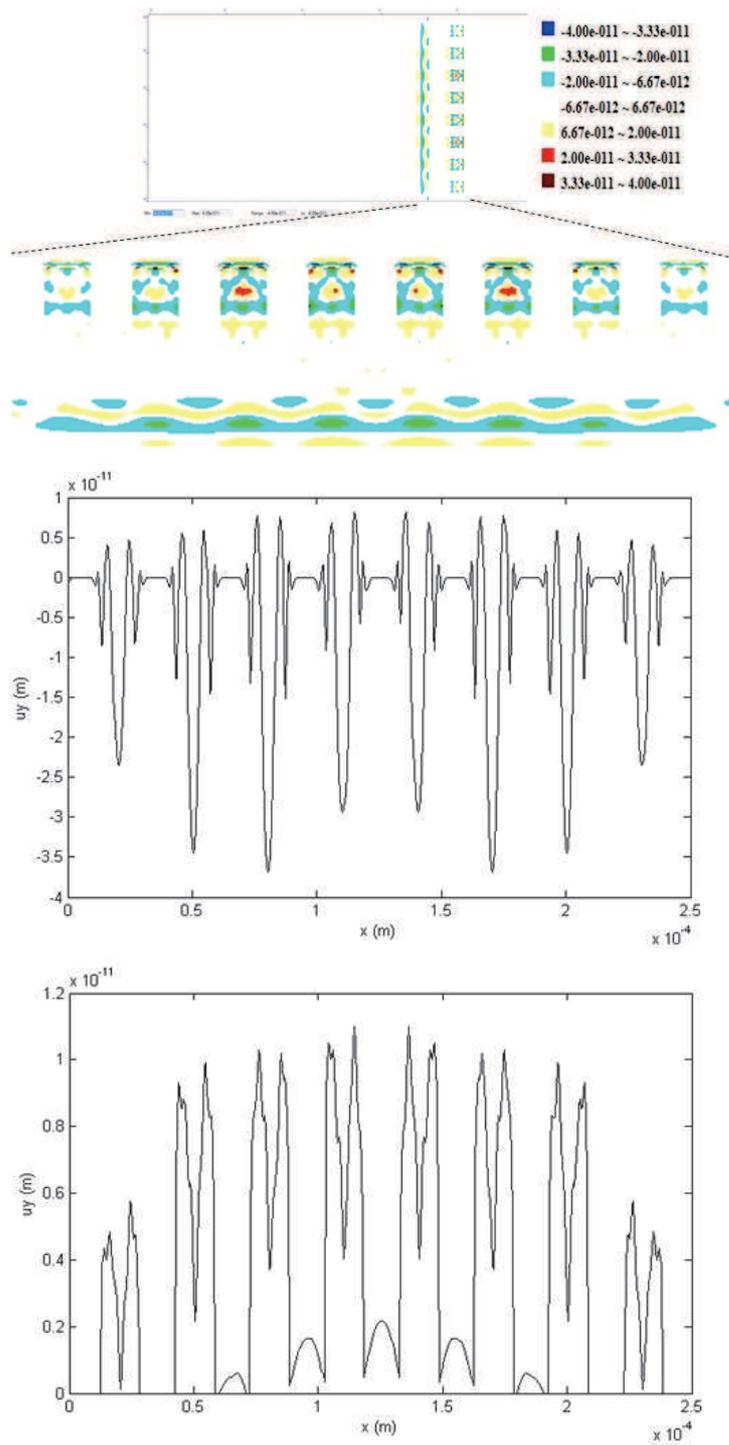
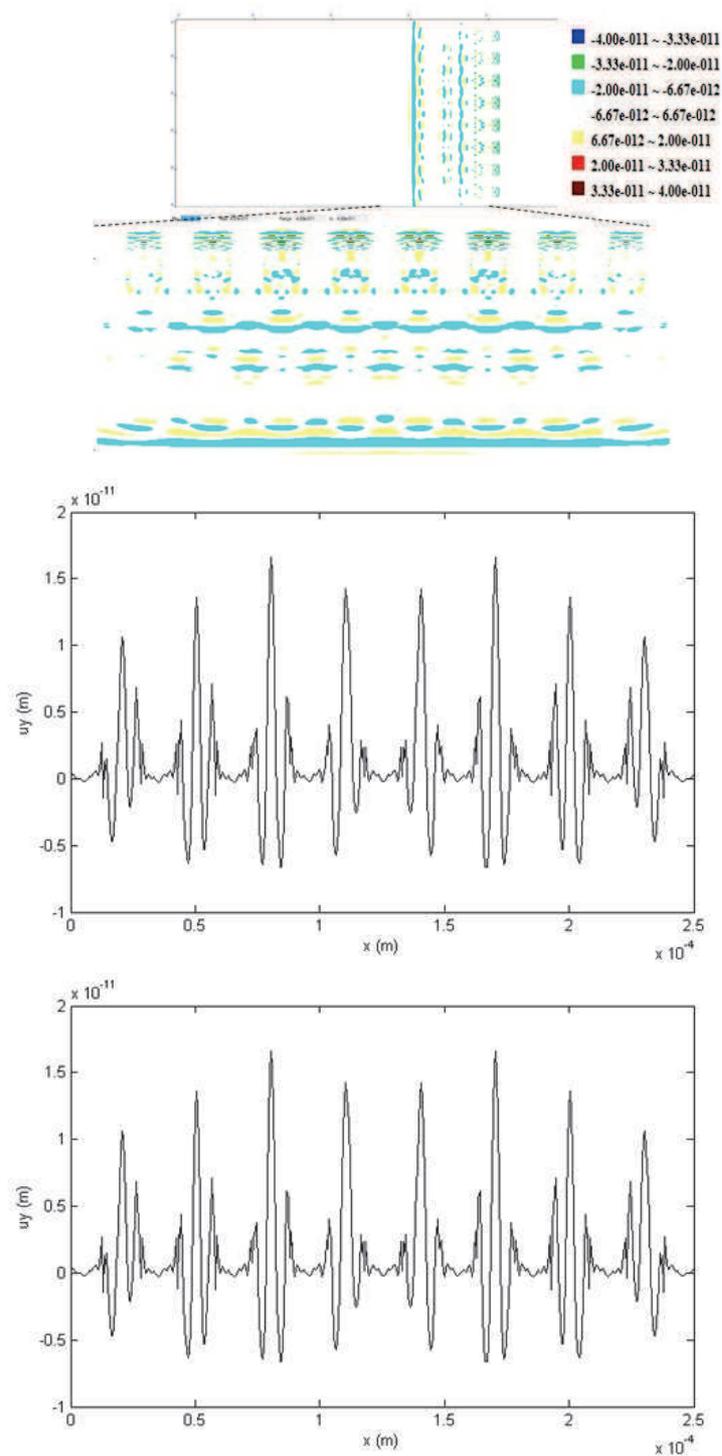
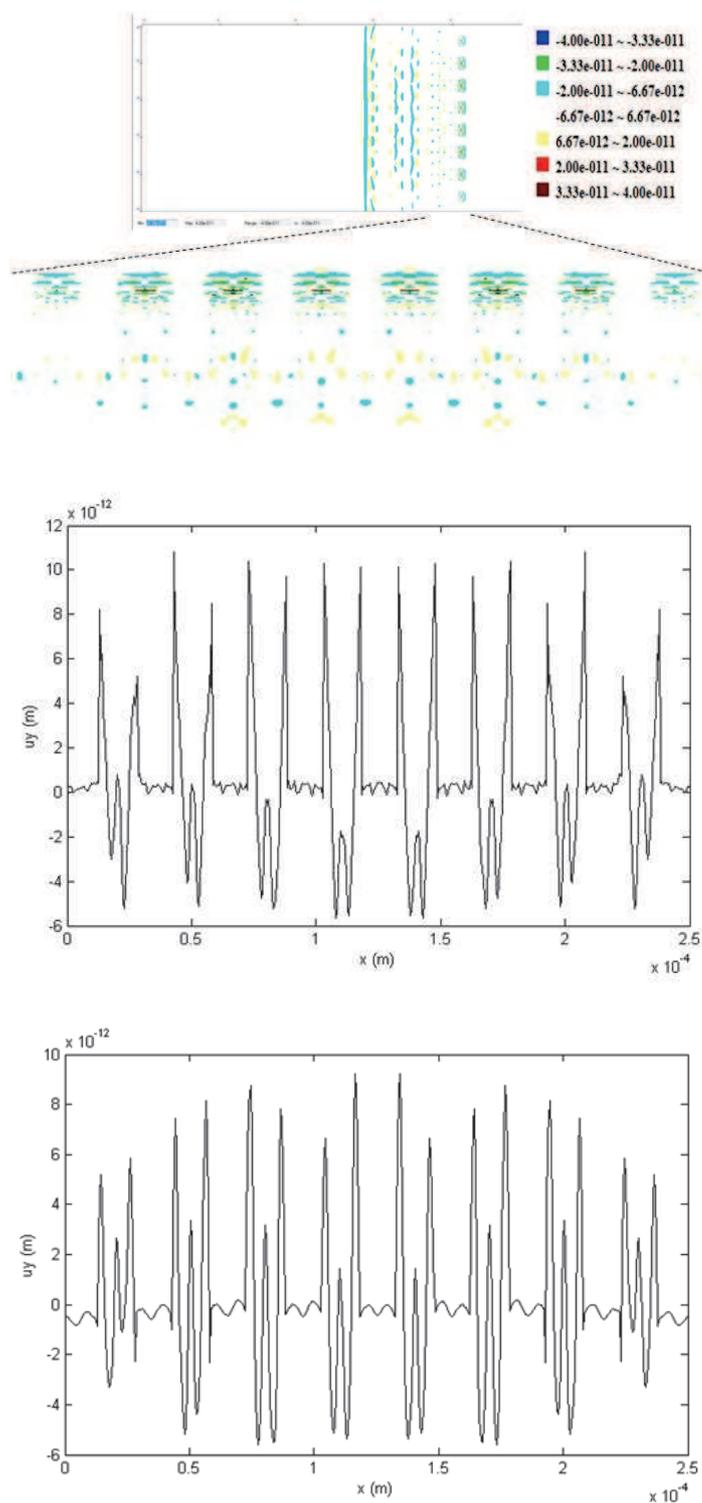


FIGURE 3.21 – Champ de déplacement dans les piliers à  $t=52$  ns.

FIGURE 3.22 – Champ de déplacement dans les piliers à  $t=58$  ns.

FIGURE 3.23 – Champ de déplacement dans les piliers à  $t=60$  ns.

Comme l'étude analytique de la propagation d'onde guidée nous l'avait montré, nous retrouvons par l'étude numérique les déplacements particuliers sont plus importants sur la surface latérale des piliers.

### Cas 3 :

Le troisième modèle est celui d'une surface texturée (2a, b, h).

La courbe de la Figure 3.24 montre, par comparaison au cas 1 (géométrie a, b, h), un même écart de temps entre les deux échos, cependant, des amplitudes différentes sont obtenues en raison de la diminution de la surface réfléchissante d'un rapport de 2/3 au niveau bas des piliers et l'augmentation de la surface réfléchissante à leur niveau haut.

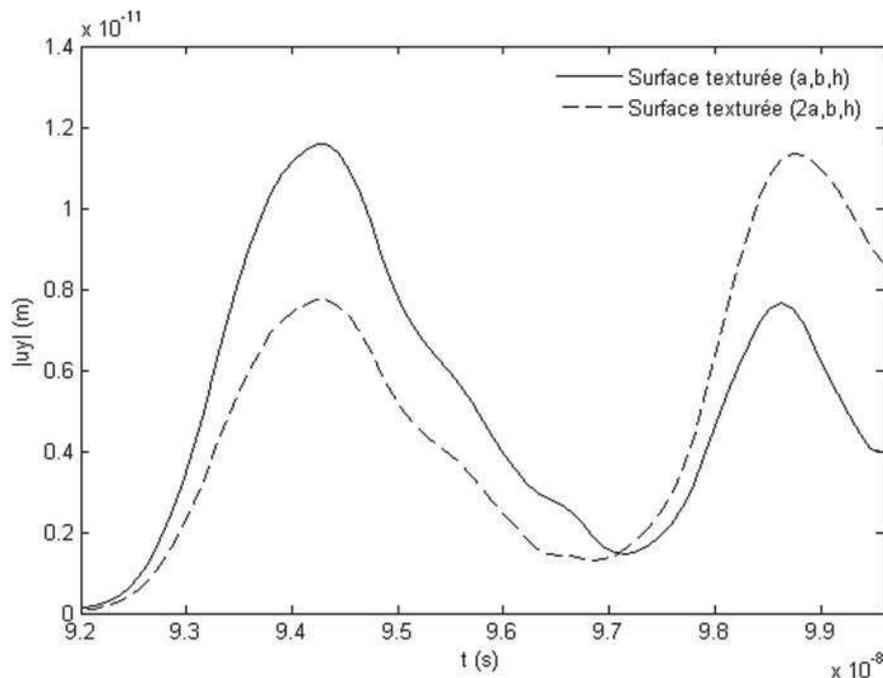


FIGURE 3.24 – Influence des surfaces réfléchissantes supérieure et inférieure sur les amplitudes des ondes réfléchies.(Structures (a,b,h) et (2a,b,h))

### Surfaces chargées par un liquide

**Cas 1 bis (Surface a, b, h) :** Afin d'étudier l'interface solide / fluide, et, par conséquent, le mouillage de la structure initialement précitée (a, b, h), trois cas typiques ont été discutés : l'état Wenzel, l'état Cassie et un état intermédiaire pour lequel le liquide imprègne à mi-hauteur les piliers. Pour cette géométrie donnée, et pour les trois configurations, nous observons une diminution de l'amplitude des échos provenant des interfaces pour lesquelles l'air a été remplacé par l'eau (Figure 3 19). En effet une partie de l'énergie est transmise dans l'eau.

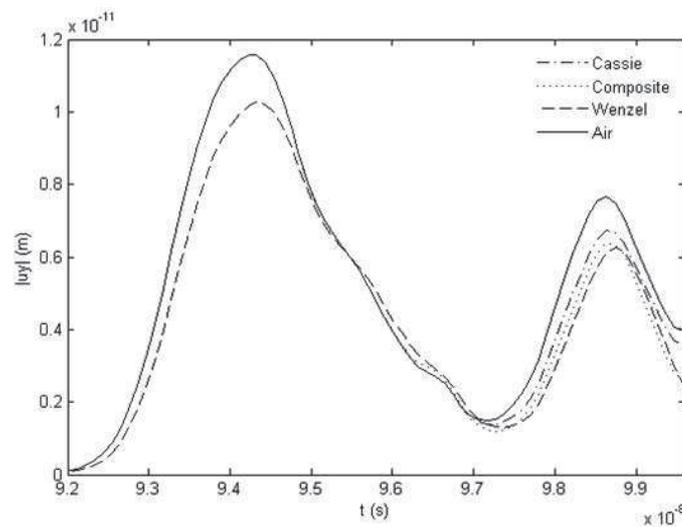


FIGURE 3.25 – Influence de la pénétration de liquide sur l'amplitude des échos (Géométrie (a,b,h)).

Effectivement, pour le premier écho réfléchi (situé à environ 94,3 ns) sur la surface basse des piliers, ceux correspondant à l'état Cassie et à l'état Composite se superposent avec celui obtenu dans le cas de la surface sans charge (cas 1) du fait que, pour les trois configurations, l'air reste emprisonné entre les piliers et qu'une réflexion totale se produit au niveau de ces interfaces. Toutefois, à l'état Wenzel (remplissage total), l'eau imprègne jusqu'au fond les piliers, et nous observons par conséquent une diminution de l'amplitude de l'écho lié à la réflexion au bas des piliers.

Pour quantifier ce phénomène, nous avons pris en considération le coefficient de réflexion comme grandeur de mesure. Celui-ci a été calculé au sommet et au bas des piliers pour chaque configuration.

Les valeurs attendues à partir d'un modèle d'onde plane incidente sur une interface infinie sont données dans le Tableau 3.1 :

Géométrie(a, b, h)	Coefficients de réflexion	
	Bas des piliers " $r_1$ "	Sommets des piliers " $r_2$ "
Cassie	$1(r_{Si/air})$	$0.86(r_{Si/eau})$
Wenzel	$0.86(r_{Si/eau})$	$0.86(r_{Si/eau})$

TABLE 3.1 – Tableau de coefficients de réflexion attendus en première approximation (cas d'une surface plane) pour des interfaces Si/air et Si/eau.

Pour la géométrie du cas (a, b, h), le Tableau 3.2 résume les différentes valeurs obtenues pour différentes conditions de mouillage, obtenues à partir du modèle FDTD.

Géométrie(a, b, h)(15,15,20) $\mu m$	Coefficients de réflexion	
	Bas des piliers " $r_1$ "	Sommets des piliers " $r_2$ "
Cassie	1	0.84
Wenzel	0.87	0.77
Composite	1	0.77

TABLE 3.2 – Tableau de coefficients de réflexion au bas et au sommet des piliers, respectivement, pour différents états de mouillage (Cassie, Wenzel et Composite) de la géométrie (a,b,h).

Pour l'état Cassie, l'air est emprisonné entre les piliers, le coefficient de réflexion 1 obtenu au bas des piliers est en bon accord avec le modèle simplifié montrant ainsi une réflexion totale sur le niveau bas des piliers (interface Si/air). Au sommet des piliers, la valeur 0.84 obtenue est légèrement inférieure à la valeur théorique correspondant à une interface Si/eau.

En état Wenzel et lorsque l'eau imprègne le fond des piliers, le coefficient de réflexion 0.87 obtenu au bas des piliers est conforme à la valeur du modèle simplifié correspondant à une interface Si/eau. Cependant, au sommet des piliers, la valeur 0.77 calculée est largement inférieure à la valeur théorique 0.86. Cette différence peut être attribuée à la propagation de modes guidés dans les piliers, ce dont nous avons parlé précédemment. Ceci est attesté par les images de champ présentées précédemment (figures 3.18,3.19,3.20,3.21, 3.22,3.23).

Dans le cas de l'état Composite pour lequel l'eau s'effondre à mi-hauteur des piliers, l'air reste toujours emprisonné entre les piliers et donc le coefficient de réflexion au bas des piliers est toujours égal à 1. Néanmoins, la valeur au sommet des piliers est constamment très petite en comparaison à la valeur théorique montrant un rayonnement dans l'eau des ondes guidées plus importante.

Durant l'expérimentation, comme nous le verrons plus tard, des états mixtes en dessous de la goutte ont été identifiés (Figure 3.26). D'où la nécessité de montrer leur influence sur les coefficients de réflexion. Le Tableau 3.3 présente les valeurs obtenues pour quelques états mixtes de la goutte.

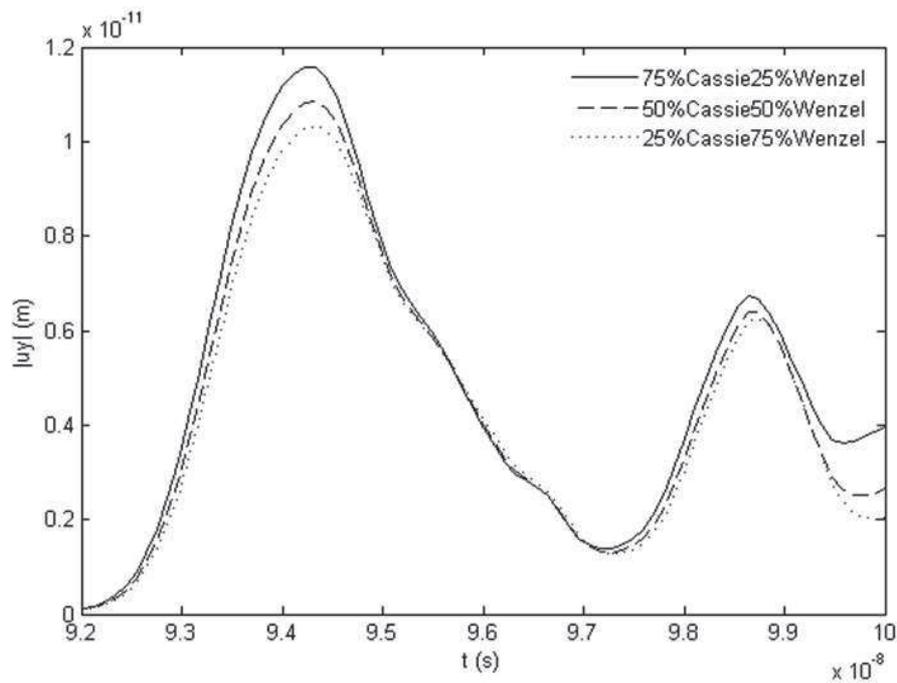


FIGURE 3.26 – Echos réfléchis pour des interfaces Si/eau mixtes (modèle FDTD).

Géométrie(a, b, h)(15,15, 20) $\mu m$	Coefficients de réflexion	
	Bas des piliers " $r_1$ "	Sommets des piliers " $r_2$ "
Cassie	1	0.84
75% Cassie 25% Wenzel	0.98	0.83
50% Cassie 50% Wenzel	0.93	0.81
25% Cassie 75% Wenzel	0.88	0.78
Wenzel	0.87	0.77

TABLE 3.3 – Tableau de coefficients de réflexion au bas et aux sommets des piliers, respectivement, pour différents états mixtes de mouillage de la géométrie (a,b,h).

Nous apercevons, dans le tableau ci-dessus, la sensibilité du coefficient de réflexion aux différents états mixtes de mouillage. Cela montre bien qu'une simple inhomogénéité de l'état d'une goutte d'eau sur une surface microtexturée peut modifier les valeurs des coefficients de réflexion attendues aux sommets et au bas des piliers.

D'autres cas ont été observés avec une micro-texturation contrôlée sur :

- La périodicité de la rugosité ;
- Les dimensions des éléments rugueux (piliers).

Géométrie(a, b, 2h)(15,15, 40) $\mu m$	Coefficients de réflexion	
	Bas des piliers " $r_1$ "	Sommets des piliers " $r_2$ "
Cassie	1	0.85
Wenzel	0.87	0.75

TABLE 3.4 – Tableau de coefficients de réflexion au bas et au sommet des piliers, respectivement, pour différents états de mouillage (Cassie et Wenzel) de la géométrie (a,b,2h).

Géométrie(2a, b, h)(30, 15, 20) $\mu m$	Coefficients de réflexion	
	Bas des piliers " $r_1$ "	Sommets des piliers " $r_2$ "
Cassie	1	0.84
Wenzel	0.87	0.80

TABLE 3.5 – Tableau de coefficients de réflexion au bas et aux sommets des piliers, respectivement, pour différents états de mouillage (Cassie et Wenzel) de la géométrie (2a,b,h).

Géométrie(a, 2b, h)(15, 30, 20) $\mu m$	Coefficients de réflexion	
	Bas des piliers " $r_1$ "	Sommets des piliers " $r_2$ "
Cassie	1	0.82
Wenzel	0.87	0.75

TABLE 3.6 – Tableau de coefficients de réflexion au bas et aux sommets des piliers, respectivement, pour différents états de mouillage (Cassie et Wenzel) de la géométrie (a,2b,h).

Une analyse plus fine des résultats numérique aura lieu, en comparaison avec les relevés expérimentaux, dans le chapitre suivant.

## 3.5 Conclusion

Dans ce chapitre ont été présentés plusieurs aspects de l'interaction d'une onde ultrasonore avec une surface microtexturée.

Une étude analytique de la propagation d'ondes élastiques dans un cylindre nous a permis d'identifier les modes pouvant s'y propager, ainsi que leurs vitesses de groupes et de leurs répartitions d'amplitudes. Nous avons ensuite mené une étude numérique. Bien que réalisée en 2D nous avons relevé quelques similarités, notamment en ce qui concerne les répartitions surfaciques du déplacement particulaire. Le modèle FDTD a ensuite permis de décrire précisément le diagramme d'écho délivré par le transducteur. Il semble aux vues des résultats obtenus qu'il sera possible de caractériser l'état de mouillage grâce au coefficient de réflexion de l'onde ultrasonore.

C'est dans le chapitre suivant que ces résultats seront confrontés à ceux fournis par les expériences.

# Chapitre 4

## Dispositifs expérimentaux, résultats et interprétations

Notre objectif a été de caractériser les performances d'une méthode de mesure ultrasonore des propriétés de mouillabilité d'une surface microtexturée.

Cette validation s'est appuyé sur :

- la réalisation d'échantillons microtexturés ;
- la mise au point d'un banc de mesure qui permet :
  - de mesurer le signal ultrasonore réfléchi sur la surface en présence de la goutte ;
  - de visualiser l'emplacement de la goutte et son état ;
  - de maîtriser le volume de la goutte et son dépôt sur la surface ;
- l'interprétation des mesures réalisées.

Nous allons dans ce chapitre présenter ces différents aspects.

### 4.1 Etapes de réalisation des échantillons

La réalisation des échantillons se fait en deux étapes :

1. La réalisation des surfaces superhydrophobes sur la face avant : microtexturation des surfaces et dépôt par plasma d'une couche hydrophobe  $C_4F_8$  ;
2. Le dépôt des transducteurs piézoélectriques en ZnO réalisés en technologie couche mince sur la face arrière des substrats.

### 4.1.1 Microtexturation

La figure 4.1 montre les différentes étapes de la mise en place d'une surface microtexturée.

Soit un substrat de silicium (Figure 4.1.(1)). Un masquage de protection du silicium lors de la gravure profonde (qui permettra de graver d'une manière sélective le substrat de silicium) est d'abord réalisé grâce à une couche de résine structurée par photolithographie (Figure 4.1.(2-4)). En utilisant la méthode de gravure ionique réactive au plasma induit par haute fréquence (ICP RIE), la surface de silicium non couverte par la résine est gravée (Figure 4.1.(5)). La résine est ensuite dissoute dans de l'acétone (Figure 4.1.(6)) avant qu'une surface hydrophobe  $C_4F_8$  soit déposée par technologie plasma (Figure 4.1.(7)).

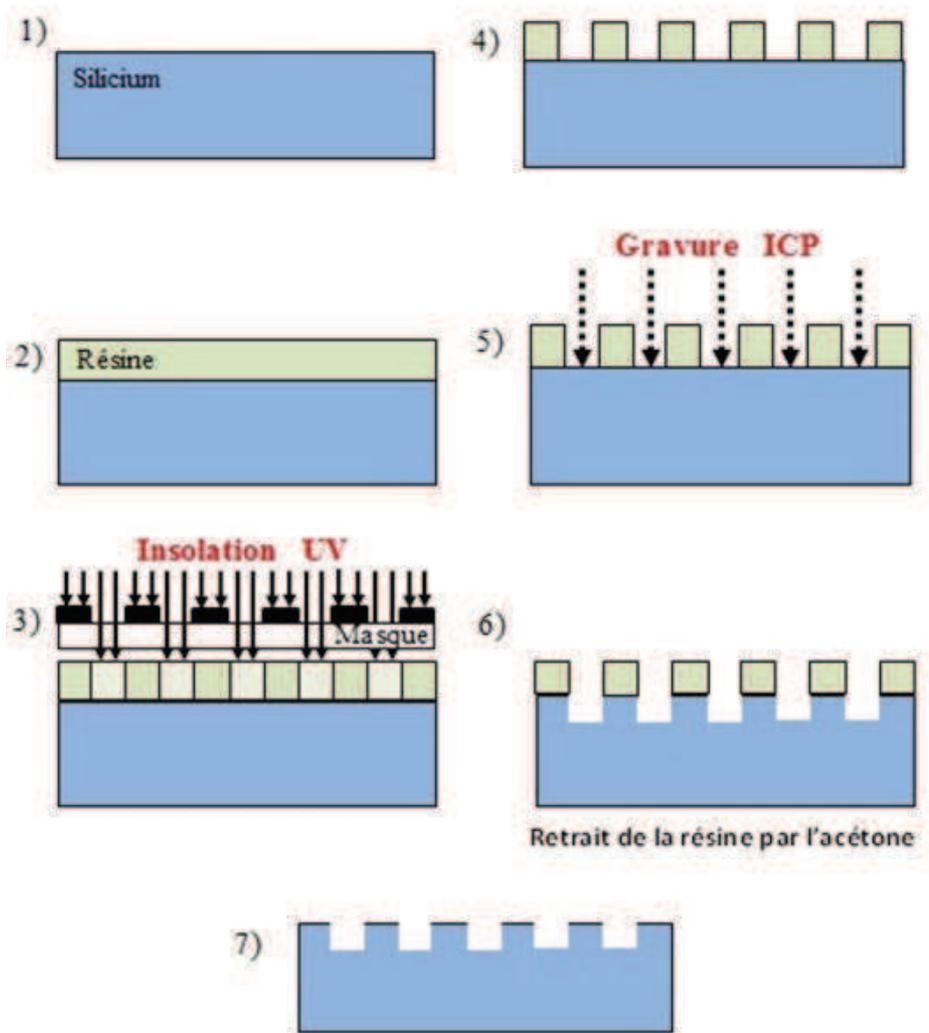


FIGURE 4.1 – Etapes de microtexturation des échantillons.

## La photolithographie

La photolithographie est un ensemble d'opérations permettant de transférer une image vers un substrat. Elle consiste, en premier lieu, à déposer une résine photosensible (photorésine) en film mince, uniforme et fortement adhérent sur la surface du substrat.

Les résines utilisées peuvent être de deux types :

- les résines négatives pour lesquelles le rayonnement ultraviolet provoque la polymérisation des zones exposées qui deviennent insolubles au solvant de révélation alors que les parties non insolées disparaissent dans ce solvant,
- les résines positives pour lesquelles le rayonnement UV entraîne une rupture des macromolécules et donc les parties exposées deviennent solubles au solvant de révélation tandis que les zones inexplorées restent insolubles.

La résine est généralement déposée par enduction centrifuge (spin coating en anglais). Cette méthode consiste à déposer une surface de résine sur un substrat (Figure 4.2). Une action rotative à vitesse/accélération/durée contrôlées rend la surface déposée homogène et permet de contrôler précisément l'épaisseur du dépôt.

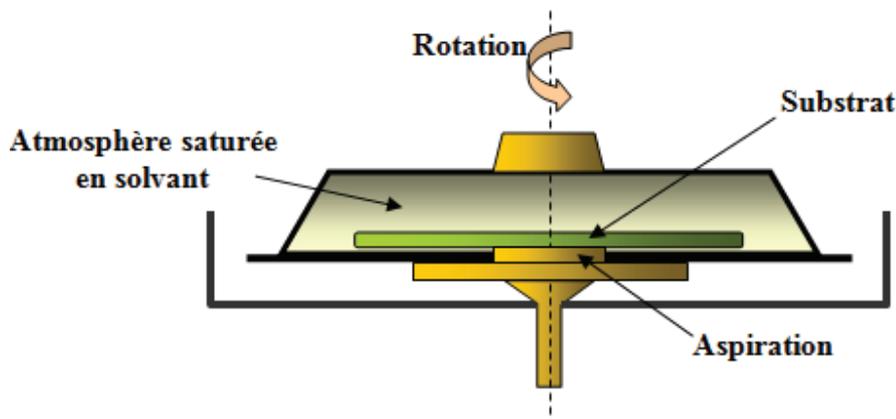


FIGURE 4.2 – Dispositif expérimental de dépôt par spin coating.

La résine est ensuite recuite afin qu'elle durcisse (sèche) et que les traces du solvant soient éliminées avant son insolation qui consiste à irradier le substrat, par le biais d'un masque, à un rayonnement ultraviolet, afin d'obtenir, après révélation, le motif du masque (ou son inverse dans le cas d'une résine négative). Finalement la résine est retirée par traitement chimique. Dans le cas d'un dépôt métallique cette étape est appelée "lift off".

Technique dite du "lift off" : après photolithographie, une couche mince métallique est déposée par évaporation sur la résine ainsi que sur le substrat (où l'adhérence est favorisée par une autre couche métallique d'accroche Cr ou Ti). Cette résine sacrificielle est ensuite dissoute dans l'acétone, permettant de décoller la couche mince métallique aux endroits non souhaités.

### Gravure ionique réactive au plasma induit par haute fréquence (ICP RIE)

La gravure ionique réactive au plasma induit par haute fréquence (ICP RIE) est une méthode de gravure sèche qui est très utilisée en microtechnologie pour la gravure de silicium. Elle utilise le plasma qui réagit, à la fois physiquement et chimiquement avec les matériaux déposés sur des substrats ou avec le substrat lui-même. Il est généré sous basse pression par un (ou plusieurs) champ électromagnétique. À partir du plasma, des ions de hautes énergies attaquent la surface du substrat et réagissent avec lui. Ce dernier est éliminé par pompage et les atomes du matériau sont ainsi éliminés sous forme de gaz [71].

Pour des raisons de facilité d'ionisation, de conductivité électrique et de coût, le gaz utilisé principalement dans les plasmas est l'argon. En comparaison avec du FIB (Focused Ion Beam), cette technique permet de traiter de plus grandes surfaces et offre la possibilité de réaliser des structures de géométries différentes (Figure 4.3).



FIGURE 4.3 – Bâti de gravure ICP-DRIESTS MPO 562.

Une bobine cylindrique peut générer une densité de plasma plus élevée. Quand un courant électrique variable passe à travers la bobine, il crée un champ magnétique variable autour d'elle, ce qui induit, à son tour, des courants électriques azimutaux dans les gaz raréfiés, conduisant à la formation du plasma. Cette technique a deux avantages : en premier lieu, les décharges ont une densité d'électrons relativement élevée, de l'ordre de  $10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . Ils ont de larges applications surtout dans les domaines où une haute densité de plasma est recommandée. En plus, ces décharges sont relativement libres de contamination grâce aux électrodes qui sont complètement en dehors de la chambre de réaction.

La gravure par cette technique a démontré sa potentialité dans la fabrication de microstructures profondes de silicium anisotrope ayant un fort rapport d'aspect (plus de 100 :1), d'où son intérêt croissant dans la technologie MEMS [72],[73].

La figure 4.4 montre les images de la surface de l'échantillon obtenues par un microscope électronique à balayage (Figure 4.4 (a)) et par un microscope optique (Figure 4.4 (b)).

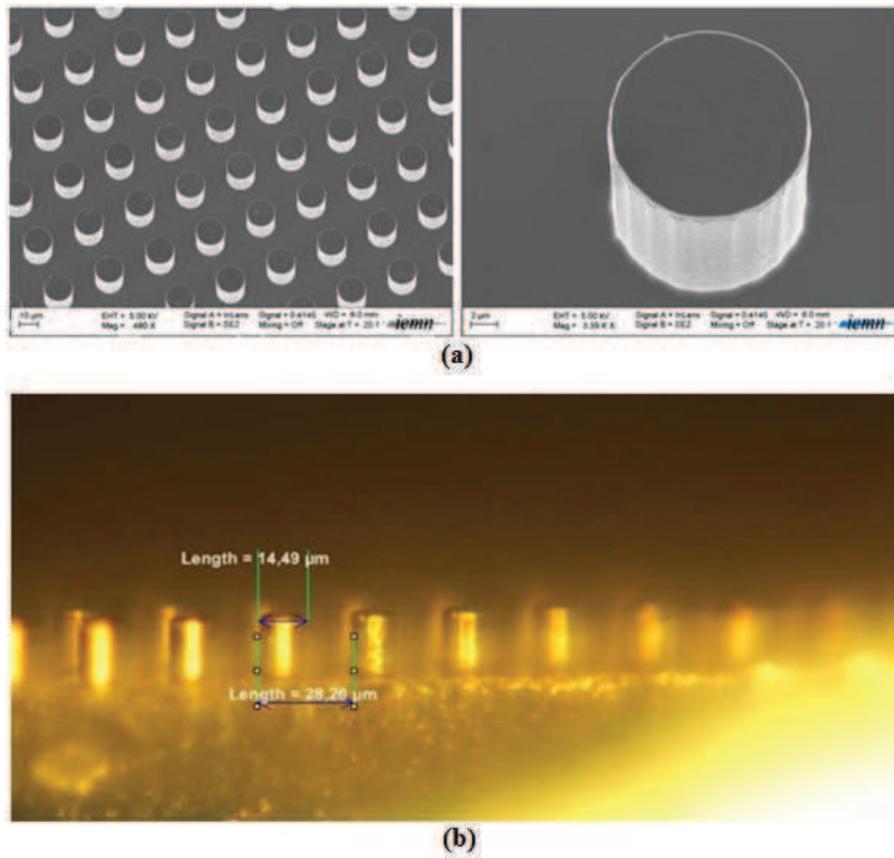


FIGURE 4.4 – Images de la surface de l'échantillon obtenues par un microscope électronique à balayage(a) et par un microscope optique (b).

### 4.1.2 Transducteurs

Dans ce travail, plusieurs raisons ont conduit au choix des transducteurs en ZnO. Ce choix est lié à la facilité d'élaboration, par rapport à la mise en place d'éléments monocristallins tels que le  $LiNbO_3$  qui nécessite des savoir-faire de collage par diffusion de couches métalliques sur un wafer mince (fraction de mm) et d'amincissement mécano-chimique du monocristal ainsi collé.

De plus, pour une génération efficace des ondes acoustiques, l'épaisseur du film piézoélectrique est choisie afin d'obtenir une résonance en mode épaisseur. Au regard, des fréquences de travail choisies pour cette étude, cet amincissement devient délicat puisqu'il s'agit d'amincir le monocristal à quelques micromètres d'épaisseur.

En fait, l'utilisation de transducteurs à base de couches minces d'oxyde de zinc s'est en revanche accrue dans les domaines d'applications hautes fréquences, par exemple pour les applications de microscopie

acoustique dans la gamme de fréquences allant de 100 MHz à plusieurs GHz [74],[75],[76].

En effet, dans cette gamme de fréquence, l'épaisseur requise pour le matériau piézoélectrique va de quelques micromètres à une trentaine de micromètres plus compatible avec les technologies couches minces par pulvérisation et sol-gel.

La figure 4.5 montre les différentes étapes du dépôt de ZnO sur la face arrière du substrat. D'abord, une électrode de masse de type Ti/Pt est déposée par évaporation sur la face arrière du substrat (Figure 4.5.(1)). La couche de titane intermédiaire est ajoutée pour améliorer l'adhérence du platine (Figure 4.5.(2)). Ensuite, l'électrode de masse est revêtue par un dépôt homogène de résine effectué par spin coating. A travers un masque, la résine est insolée (Figure 4.5.(3)). Une étape de photolithographie est réalisée pour pouvoir ensuite structurer la couche de ZnO par lift off. Ultérieurement, le ZnO piézoélectrique est déposé en utilisant la technique de pulvérisation radiofréquence (RF) magnétron (Figure 4.5.(4)). L'électrode supérieure est ensuite déposée sur la couche de ZnO (Figure 4.5.(5)) pour enfin utiliser la technique de "lift off" permettant de retirer du substrat la résine recouverte de métal et de ZnO (Figure 4.5.(6)). L'échantillon est prêt pour l'expérimentation (Figure 4.5.(7)).

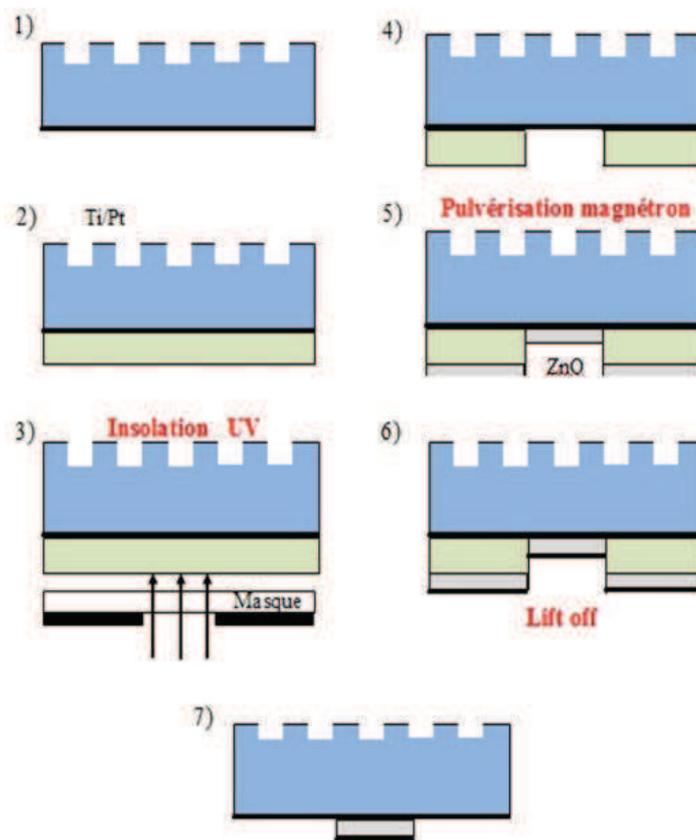


FIGURE 4.5 – Procédé de fabrication des transducteurs.

### La technique de pulvérisation magnétron

La pulvérisation cathodique (ou sputtering) est un procédé de dépôt physique en phase vapeur (PVD : Physical Vapor Deposition) qui consiste à créer des couches minces métalliques ou des films céramiques s'appliquant dans divers domaines tel que la mécanique, l'optique, l'électronique (micro-électronique), les industries chimiques, etc.

La pulvérisation cathodique est une technique qui sert à recouvrir la surface d'un substrat grâce à un bombardement d'atomes provenant de la cible (située à la Cathode). Pour éviter la pollution du plasma ou du substrat, la cible, constituée du matériau à déposer, est introduite dans un réacteur sous vide (pression entre 1 et 100 Pa selon la taille du réacteur).

Pour pouvoir pulvériser la cible, il faut donc créer un plasma, c'est-à-dire une phase de la matière dans laquelle se trouvent des particules chargées, d'ions et d'électrons. L'application d'une différence de potentiel entre la cible (Cathode) et une anode (les parois du réacteur, le substrat,...) sous certaines conditions, excite le gaz et le rend conducteur. Un plasma froid est alors créé sous un gaz chargé et, sous l'effet d'un champ électrique, les électrons sont attirés par l'anode et les ions positifs attirés par la cathode (la cible) (Figure 4.6).

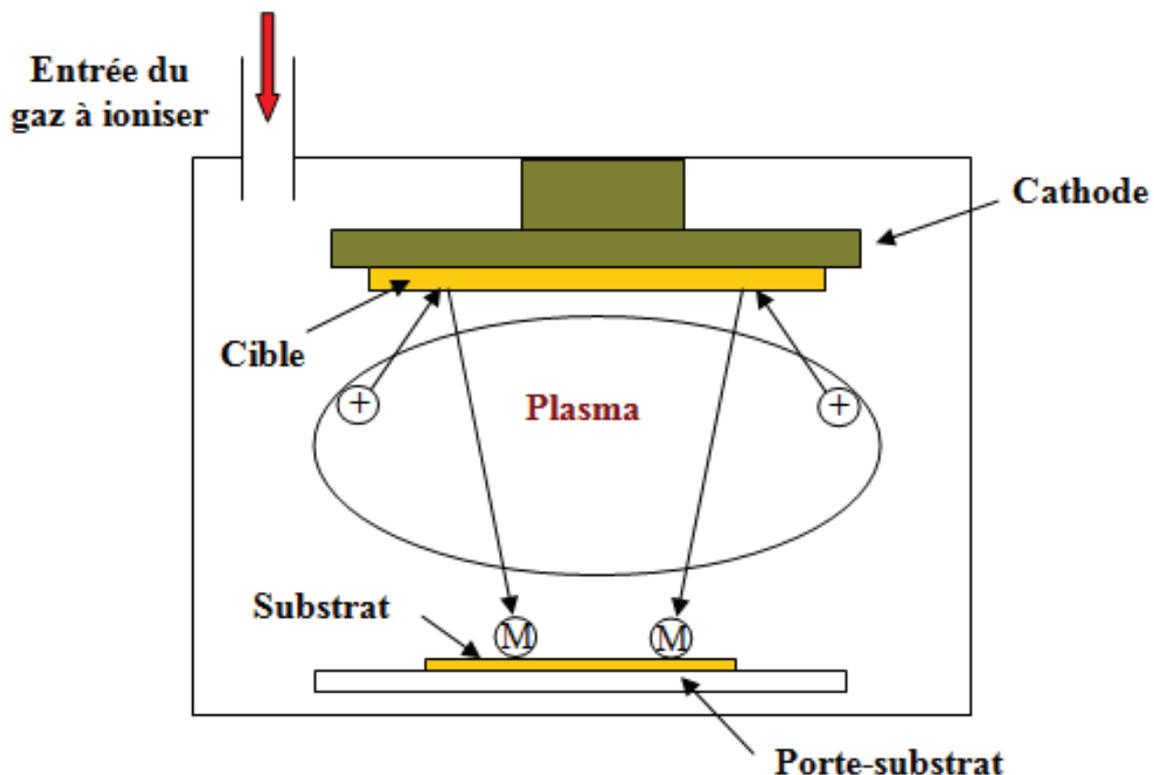


FIGURE 4.6 – Schéma de principe de la pulvérisation cathodique.

Par ailleurs, la pulvérisation cathodique magnétron dispose du même procédé général que la pulvérisation cathodique simple. Les cathodes magnétrons, constituées d'aimants, ont été développées

pour piéger les électrons au voisinage de la cible (force de Lorenz) afin d'augmenter leur densité ionique, et par conséquent, d'augmenter la vitesse de dépôt et diminuer la tension d'amorçage et d'entretien de la décharge (Figure 4.7).

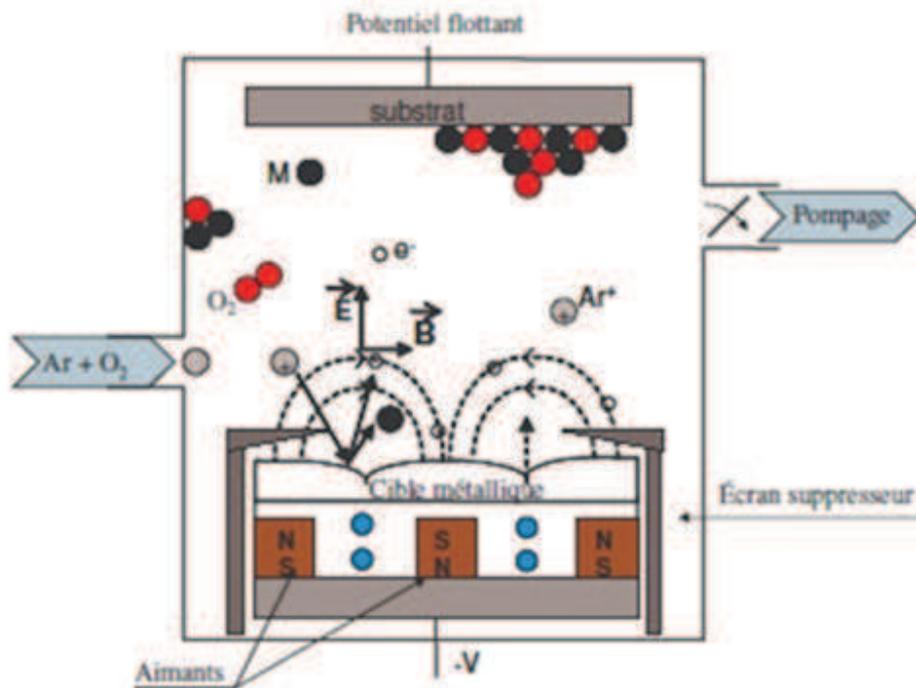


FIGURE 4.7 – Principe du procédé de pulvérisation cathodique magnétron.

L'intérêt de cette méthode réside dans le fait que la forte concentration d'ions se concrétise par une augmentation de la vitesse de pulvérisation donc du dépôt. En outre, la faible pression de la décharge peut être maintenue ce qui permet l'obtention des dépôts de grande pureté.

Cette technique très simple à mettre en œuvre permet d'obtenir à la fois des diélectriques couches isolantes mais également des couches métalliques (aluminium, chrome, ...). De plus, la couche déposée est relativement homogène, ce qui influe directement sur la qualité des éléments réalisés.



FIGURE 4.8 – Bâtis de dépôt : à gauche : évaporation ; à droite : pulvérisation magnétron.

### Dépôt par évaporation

Cette méthode consiste à provoquer l'évaporation d'un métal dans le vide en le chauffant jusqu'à sa température d'ébullition. L'évaporation entraîne la libération des atomes métalliques qui vont alors, à leur tour se déplacer dans l'enceinte et se fixer sur la surface froide de l'objet à recouvrir (Figure 4.8).

Diverses techniques permettent de chauffer le métal à évaporer :

- Le creuset : il s'agit d'un récipient réchauffé par une résistance électrique et dans lequel est installé le métal. Le substrat à traiter est ensuite placé au-dessus de ce creuset.
- Le canon à électrons : l'échantillon du métal à évaporer est soumis à un intense faisceau d'électrons qui le réchauffe jusqu'à évaporation. Le substrat à traiter est placé au-dessus comme pour le creuset.

La Figure 4.9 montre une image d'un réseau de transducteurs obtenu par pulvérisation magnétron et observé par un microscope optique.

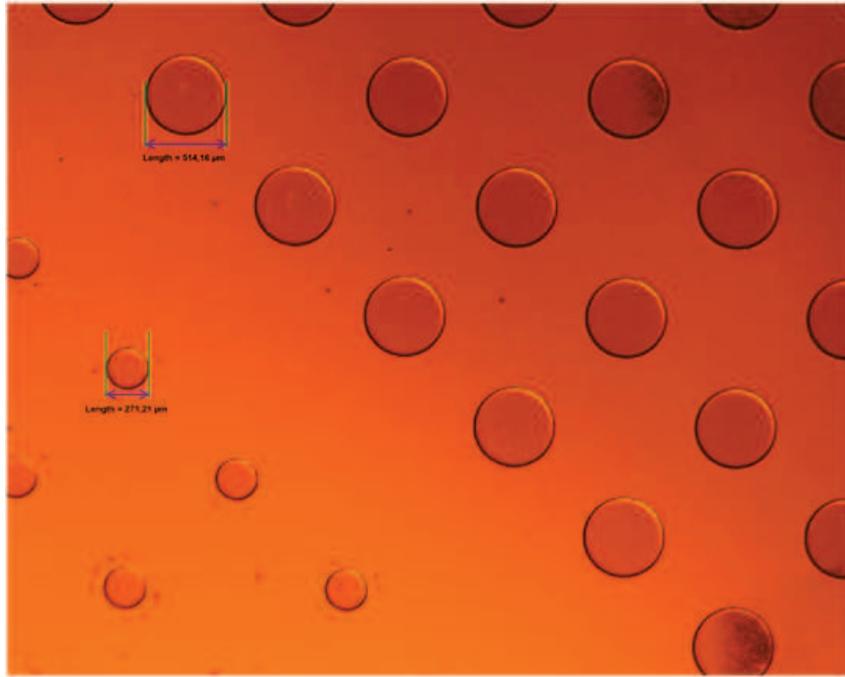


FIGURE 4.9 – Image d'un réseau de transducteurs de  $100\mu\text{m}$  de diamètre obtenue par microscopie optique.

## 4.2 Dispositif de mesure expérimental

### 4.2.1 Paramètre mesuré

La méthode consiste à utiliser un analyseur de réseau afin d'extraire de la mesure des paramètres S la caractéristique acoustique d'une interface.

Les paramètres S ou matrice de répartition (scattering matrix) sont utilisés pour l'étude des quadripôles en hyperfréquence (en électronique) ainsi que d'une façon générale dans la caractérisation des interactions d'une onde avec un milieu. De nombreuses propriétés électriques peuvent être exprimées en utilisant ces paramètres, comme le gain, les pertes en réflexion, le taux d'ondes stationnaires (TOS) ou le coefficient de réflexion. Ils dépendent de la fréquence de mesure et peuvent être mesurés grâce à des analyseurs de réseau.

Par exemple, pour un dispositif hyperfréquence à 2 ports (Figure 4.10), ces paramètres S peuvent être mis sous la forme matricielle suivante :

$$\begin{pmatrix} U_{1r} \\ U_{2r} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} \\ S_{21} & S_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} U_{1i} \\ U_{2i} \end{pmatrix} \quad (4.1)$$

Soit :

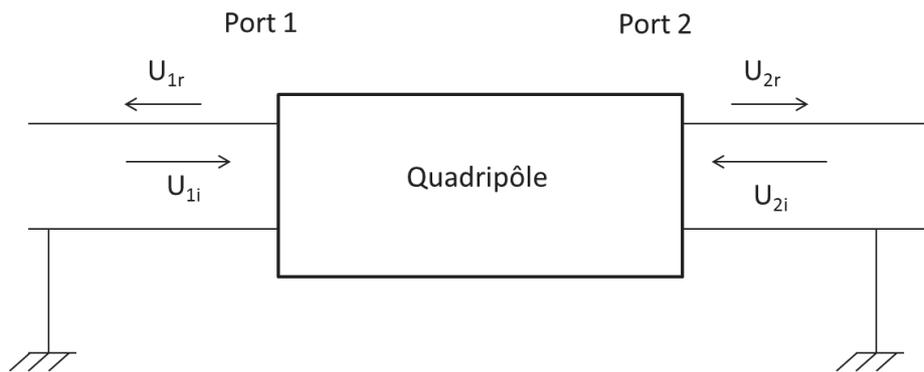


FIGURE 4.10 – Notation utilisée dans le cas d'un quadripôle.

$$\begin{aligned} U_{1r} &= S_{11}U_{1i} + S_{12}U_{2i} \\ U_{2r} &= S_{21}U_{1i} + S_{22}U_{2i} \end{aligned} \quad (4.2)$$

$U_i$  et  $U_r$  sont respectivement les signaux incidents et réfléchis sur chaque port ;

$S_{11}$  est le coefficient de réflexion à l'entrée lorsque la sortie est adaptée ( $U_{2i} = 0$ ) ;

$S_{12}$  est le coefficient de transmission du port 2 vers le port 1, lorsque l'entrée est adaptée ( $U_{1i} = 0$ ) ;

$S_{21}$  est le coefficient de transmission du port 1 vers le port 2, lorsque la sortie est adaptée ( $U_{2i} = 0$ ).

$S_{22}$  est le coefficient de réflexion à la sortie lorsque l'entrée est adaptée ( $U_{1i} = 0$ ).

Dans le cas d'un dipôle :

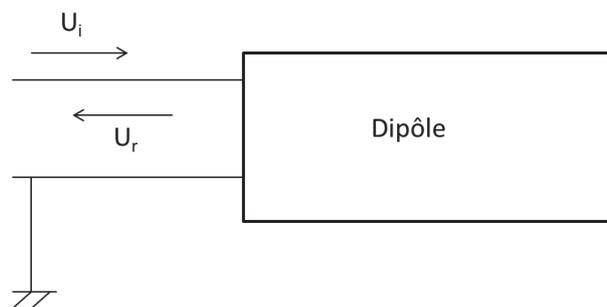


FIGURE 4.11 – Notation utilisée dans le cas d'un dipôle.

$$U_r = S_{11}U_i \quad (4.3)$$

Le paramètre  $S_{11}$  peut être déterminé par :  $S_{11} = \frac{U_r}{U_i}$  Le dispositif de mesure intégré dans l'analyseur de réseau est présenté à la Figure 4.12 :

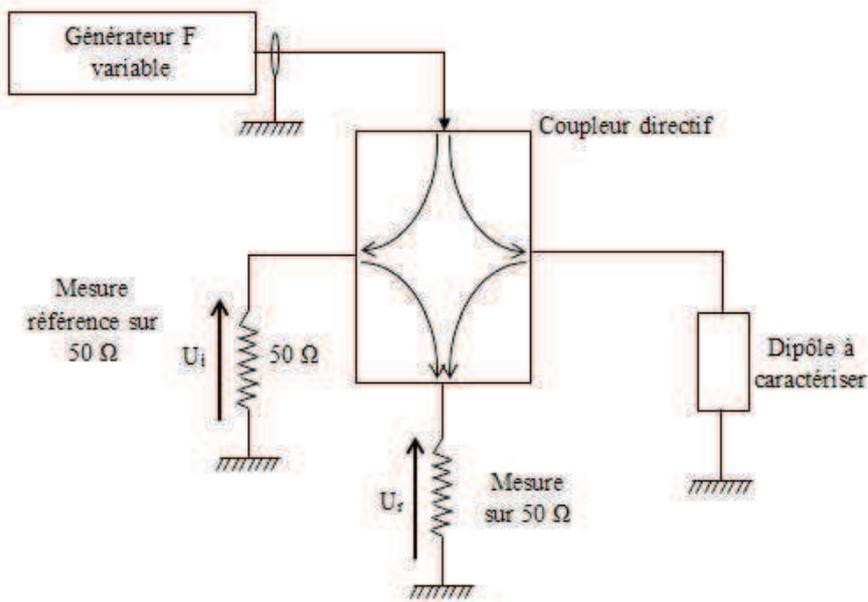


FIGURE 4.12 – Dispositif de mesure.

### 4.2.2 Traitement de signal

Nous allons dans ce qui suit nous intéresser au paramètre  $S_{11}$  uniquement donné par la relation :

$$S_{11} = \frac{U_r}{U_i} \quad (4.4)$$

Le paramètre  $S_{11}$  est lié à l'impédance du transducteur par l'équation suivante :

$$S_{11} = \frac{Z_{él} - Z_0}{Z_{él} + Z_0} \quad (4.5)$$

Avec

$Z_{él}$  : l'impédance de charge ;

$Z_0$  : l'impédance caractéristique ( $Z_0 = 50\Omega$ ).

La Figure 4.13 montre les parties réelle et imaginaire du coefficient  $S_{11}$  en fonction de la fréquence dans un circuit où la charge est le transducteur. La variable mesurée est la variation fréquentielle du coefficient de réflexion électrique sur le transducteur.

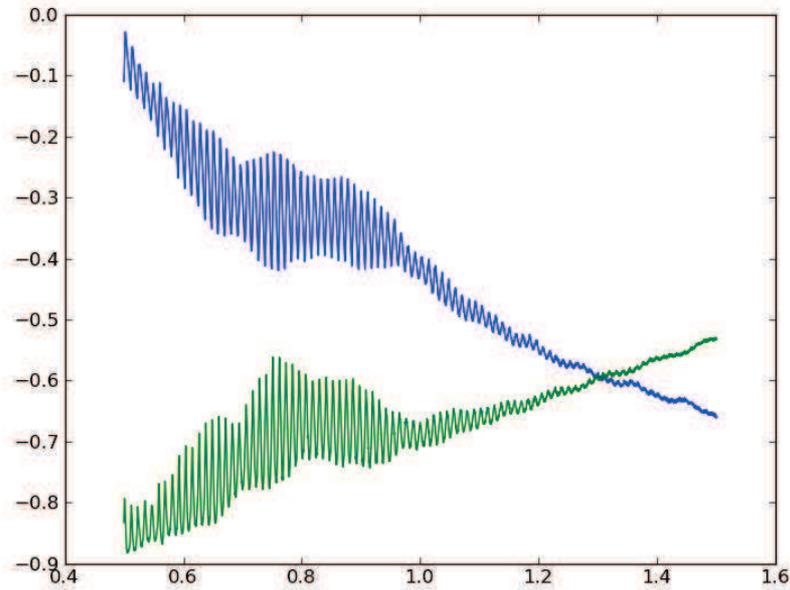


FIGURE 4.13 – Paramètre  $S_{11}$  mesuré avec l'analyseur de réseau.

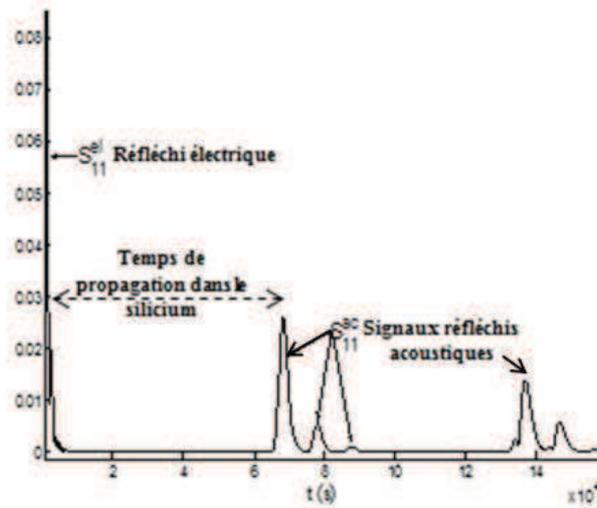
Il a été démontré [77],[78] que ce paramètre peut être décrit à partir de deux contributions. La première provient de la réflexion directe de l'onde électrique sur le transducteur, qui est donc d'origine purement électrique. La seconde provient de la réflexion de l'onde acoustique sur la face opposée du substrat. Cette onde est ensuite reconvertie en signal électrique par le transducteur.

$$S_{11}(f) = S_{11}^{él} + K S_{11}^{ac} \quad (4.6)$$

Avec  $K$  le coefficient de couplage électromécanique du transducteur ;

$S_{11}^{ac}$  est le résultat de la superposition des ondes acoustiques qui se sont formées à partir de toutes les réflexions possibles avant de retourner au capteur. Ce paramètre peut être utilisé pour estimer les caractéristiques acoustiques d'un matériau.

Le paramètre  $S_{11}$ , comme il a été décrit, représente la fonction de transfert en réflexion du système étudié. La réponse temporelle associée peut être obtenue par transformée de Fourier inverse. Dans le domaine temporel, les deux contributions dans  $S_{11}$  sont séparées. Le terme électrique survient peu de temps après l'excitation électrique du transducteur alors que le terme acoustique est retardé du temps de propagation acoustique dans le substrat.

FIGURE 4.14 – Transformée de Fourier inverse de  $S_{11}$ .

$S_{11}^{el}$  est la réflexion électrique sur le transducteur. Elle permet de mesurer son impédance et peut être utilisée pour apporter les adaptations électriques nécessaires afin d'optimiser le rendement du transducteur, soit :

$$Z_{elp} = \frac{1 + S_{11}^{el}}{1 - S_{11}^{el}} \quad (4.7)$$

Les impédances mesurées (Figure 4.15) pour une série de transducteur  $ZnO$  de diamètre  $500\mu m$  et d'épaisseur  $2.7\mu m$  montrent une bonne répétabilité.

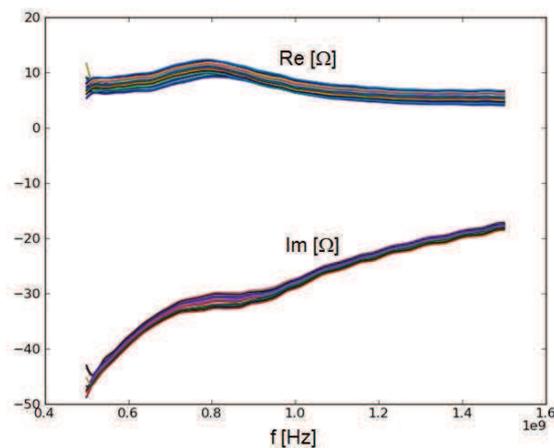


FIGURE 4.15 – Impédance électrique des transducteurs.

$S_{11}^{ac}$  sera utilisée pour caractériser l'état de mouillage de la surface opposée au transducteur.

Prenons l'exemple de la caractérisation d'un matériau inconnu déposé sur un substrat de silicium sur lequel un transducteur est initialement déposé sur l'autre face du substrat. La première étape consiste à mesurer  $S_{11}(f)$ . Par traitement il est possible d'isoler les différentes contributions qui se décomposent en un réfléchi électrique et une contribution acoustique. Les deux sont séparées à l'aide d'une fenêtre temporelle après transformée de Fourier inverse ce qui donne accès au diagramme d'échos (Figure 4.16).

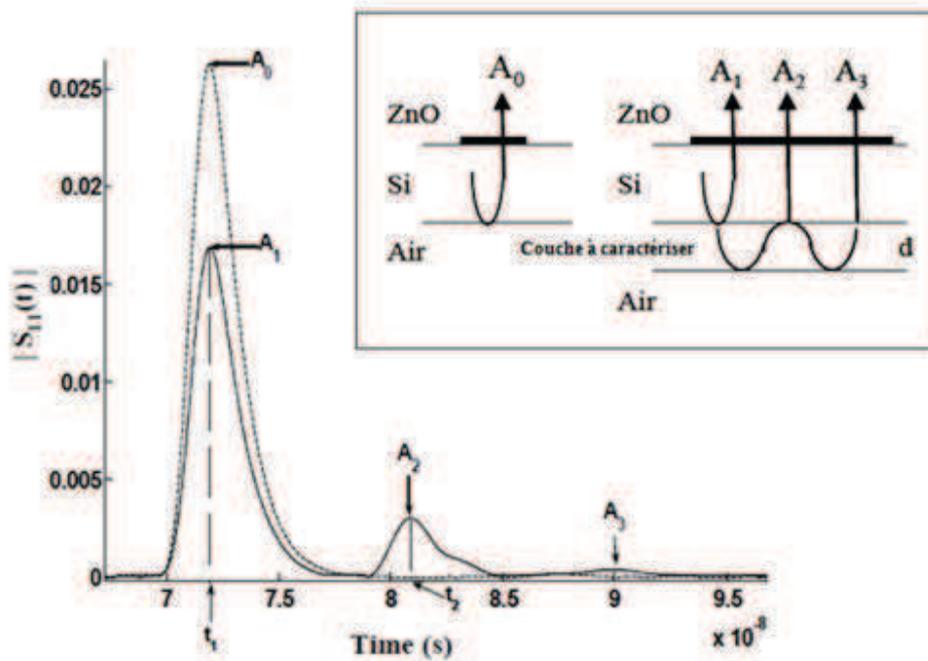


FIGURE 4.16 – Représentation du paramètre  $S_{11}^{ac}(t)$ .

Par ailleurs, la vitesse de l'onde longitudinale dans le matériau, calculée par le biais de la transformée inverse de  $S_{11}^{ac}$ , est donnée par :

$$v_a = \frac{2d}{t_2 - t_1} \quad (4.8)$$

$t_2 - t_1$  étant le temps mis par l'onde acoustique pour effectuer un aller-retour dans le matériau et  $d$  son épaisseur.

Dans notre cas, le terme acoustique est dû à la réflexion sur les deux interfaces définies par la texturation : surface des sommets des piliers et surface des intervalles entre piliers (Figure 4.17).

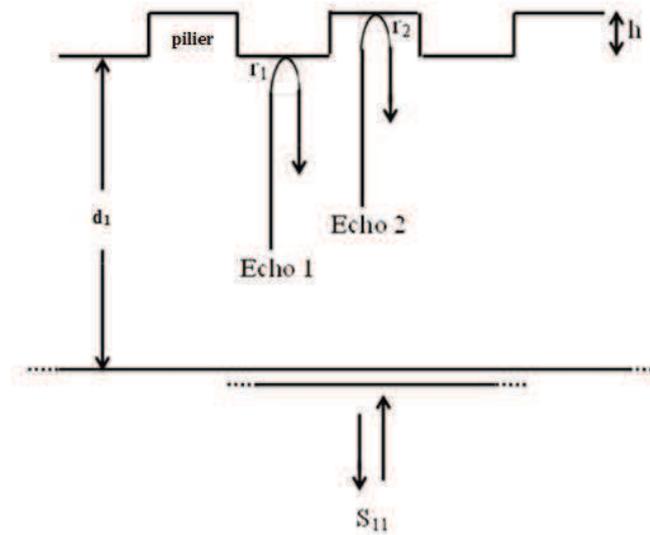


FIGURE 4.17 – Réflexion au sommet des piliers et sur le plan situé à leur base (que nous appellerons bas de piliers dans la suite).

Soit :

$$S_{11}(f) = S_{11}^{él} + K \left\{ \sum r_1 e^{\frac{-2 \pi f d_1}{v}} + \sum r_2 e^{\frac{-2 \pi f (d_1 + h)}{v}} \right\} \quad (4.9)$$

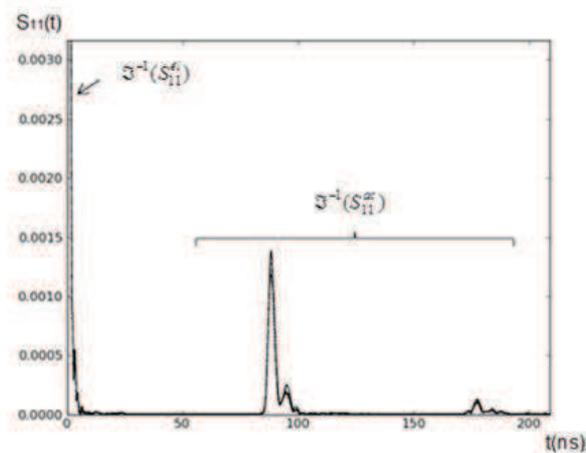


FIGURE 4.18 – Transformée de Fourier inverse de  $S_{11}$ .

En effet, la réponse temporelle du système obtenue est composée d'une série d'échos. Nous ne nous intéresserons qu'aux premiers échos correspondant aux ondes qui n'ont effectué qu'un seul aller-retour dans le substrat de silicium et travaillons à une fréquence suffisamment élevée pour que ces échos soient résolus en temps. Nous négligeons les phénomènes de diffraction.

Le coefficient de réflexion acoustique dépend du matériau de propagation et, dans le cas d'une interface hétérogène (succession de piliers et de trous), des surfaces intervenant dans la réflexion.

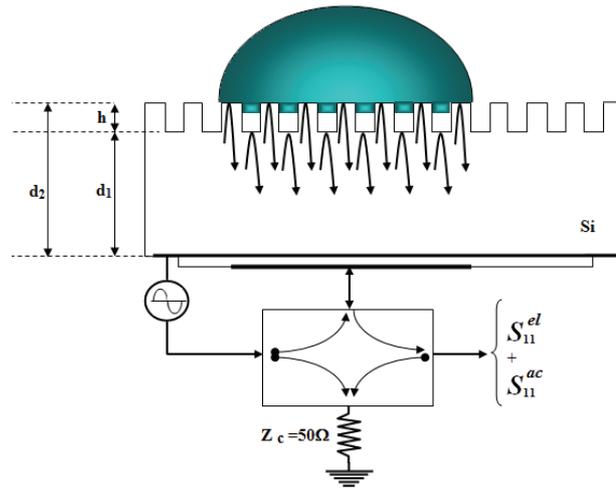


FIGURE 4.19 – Réflexions des ondes acoustiques à l'interface microtexturée.

Les premiers échos d'origine acoustique de la réponse impulsionnelle apparaîtront aux instants  $2d_1/c_{l,Si}$  et  $2d_2/c_{l,Si}$  (Figure 4.19) et auront pour amplitude  $A_1 = |r_1 \mathfrak{S}^{-1}(S_{11})|$  et  $A_2 = |r_2 \mathfrak{S}^{-1}(S_{11})|$ .

Le coefficient de couplage électromécanique du système est inconnu. Une première mesure est effectuée dans l'air,  $|r_{Si/air}|$ . On note  $A_1^{air}$  et  $A_2^{air}$  les amplitudes des échos.

L'état du système est donné par les rapports  $A_i^{air}$  :

$$\begin{aligned} r_1 &= \frac{A_1^i}{A_1^{air}} \\ r_2 &= \frac{A_2^i}{A_2^{air}} \end{aligned} \quad (4.10)$$

Comme référence, nous considérons le coefficient de réflexion sur une interface microtexturée avec l'air  $A_2^{air}$ . L'amplitude du signal réfléchi sur la surface inférieure des piliers est  $A_1^{air}$  et celle de la surface supérieure des piliers est . Pour les autres configurations, Cassie, Composite et Wenzel, ces amplitudes sont respectivement  $A_1^i$  et  $A_2^i$  ; avec  $i=1, 2, 3$  ; 1 : Cassie, 2 : Composite et 3 : Wenzel. (Figure 4.20).

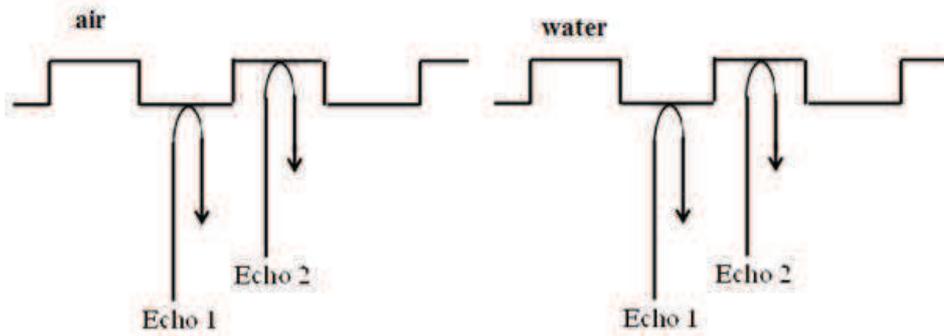


FIGURE 4.20 – (a) interface de référence; (b) interface à caractériser.

Pour l'état Cassie, les amplitudes des deux échos notées  $A_1^{Cassie}$  et  $A_2^{Cassie}$  doivent vérifier :  $\frac{A_1^{Cassie}}{A_1^{air}} = 1$   
 $\frac{A_2^{Cassie}}{A_2^{air}} = |r_{Si/H_2O}|$  donc  $r_1 = 1$   $r_2 = r_{Si/H_2O} = \frac{Z_{H_2O} - Z_{Si}}{Z_{H_2O} + Z_{Si}} = 0,86$  ( $Z_{H_2O} = 1,48MRay$  et  $Z_{Si} = 19,64MRay$ )

(Cette valeur a été vérifiée par une expérience réalisée dans le cas d'une surface lisse totalement recouverte par de l'eau).

Quand le basculement en état Wenzel est effectué, et donc toutes les surfaces sont mouillées. Les amplitudes  $A_1^{Wenzel}$  et  $A_2^{Wenzel}$  des deux échos doivent vérifier :  $\frac{A_1^{Wenzel}}{A_1^{air}} = \frac{A_2^{Wenzel}}{A_2^{air}} = |r_{Si/H_2O}|$   
d'où  $r_1 = r_2 = r_{Si/H_2O} = 0,86$ .

### 4.2.3 Banc de mesure. Procédure d'initialisation

Le protocole de mesure comprend une première phase d'initialisation du système indispensable à l'obtention d'une répétabilité satisfaisante.

#### Le matériel en présence

Le dispositif s'organise autour d'un système de mesure sous pointes de type "Backside". En effet pour réaliser les mesures, l'échantillon doit être disposé de façon à laisser apparente la surface texturée sur laquelle un liquide sera déposé. Cette contrainte se traduit par une disposition de l'élément piézoélectrique sous la face visible de l'échantillon. La prise du contact électrique sur le transducteur se fera donc à l'aide d'une pointe de mesure placée sous l'échantillon. Son positionnement se fait à l'aide d'une caméra située également sous l'échantillon.

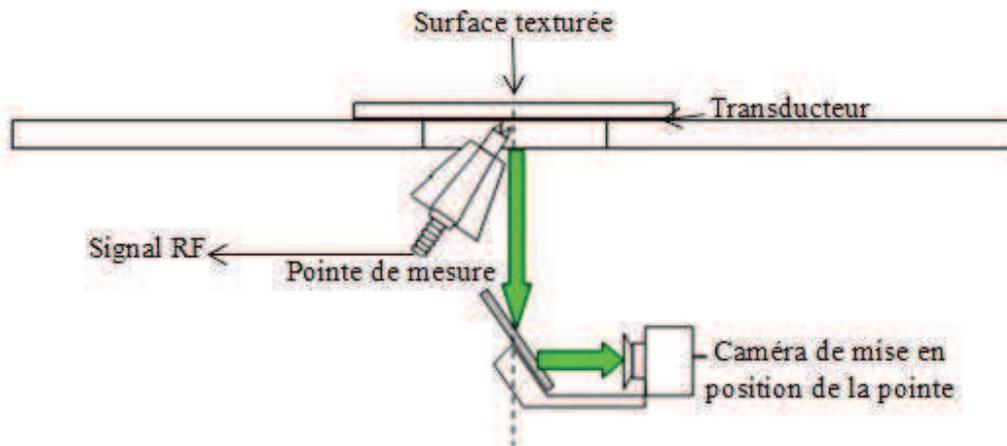


FIGURE 4.21 – Positionnement de la pointe de mesure.

La mesure s'effectue à l'aide d'un analyseur de réseau "ROHDE & SCHWARTZ" de type ZVA 8 dont la bande de fréquence peut aller jusqu'à 8 GHz(Figure4.22).

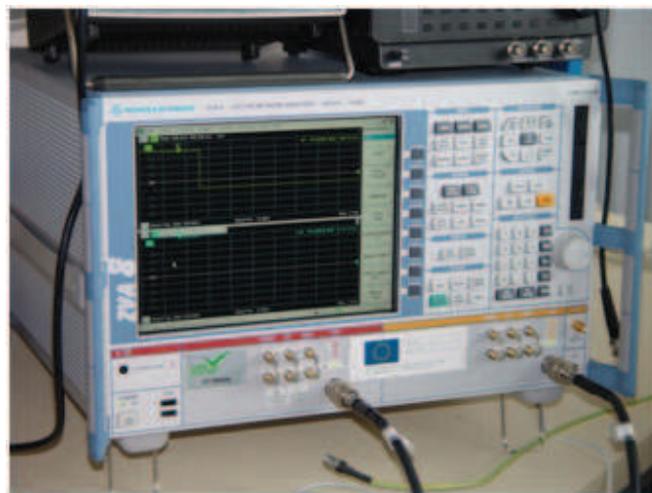


FIGURE 4.22 – Analyseur de réseau.

Compte tenu de la disposition du banc de mesure, la longueur du câble de connexion entre la pointe de mesure et l'analyseur est supérieure à deux mètres. Les fréquences utilisées de l'ordre du gigahertz imposent d'effectuer une calibration.

Cette étape habituelle lors de l'utilisation d'un analyseur de réseau consiste à réaliser une correction des

mesures de façon à compenser l'erreur liée à la pointe et à la longueur des câbles. Cette correction est enregistrée dans l'appareil de mesure lors d'une étape de calibration définie pour une plage de fréquence donnée à l'aide d'un substrat de calibration. Durant cette phase, l'appareil de mesure va enregistrer, pour trois situations de mesure (court-circuit ; circuit ouvert ; charge adaptée :  $50\Omega$ ), le résultat de la mesure ramenée par la pointe de mesure au travers des câbles de connexion.

Ce fichier de calibration doit être rappelé lors de chaque mesure.

Lors des mesures réalisées, la bande de fréquence est comprise entre 500 MHz et 1500 MHz. Le nombre de points de mesures est de 10 000 points sur la bande de fréquences et la bande IF est de 1 KHz.

### Initialisation des positions des caméras

Dans le système de mesure nous disposons d'une caméra d'axe perpendiculaire au substrat qui donne une image de la surface texturée et de la position de la goutte. La seconde caméra nous donne, vue de dessous du wafer, l'image du transducteur, donc de la zone de mesure acoustique. Il est donc essentiel de faire coïncider les zones visualisées par ces deux caméras.

Ce réglage s'effectue sur une lame de microscope transparente, ce qui permet de visualiser les positions relatives de la pointe de mesure et de la caméra d'observation de la position de la goutte. Il est en effet indispensable dans la suite de l'expérience d'être sûr que la zone de mesure acoustique est bien recouverte totalement par la goutte.

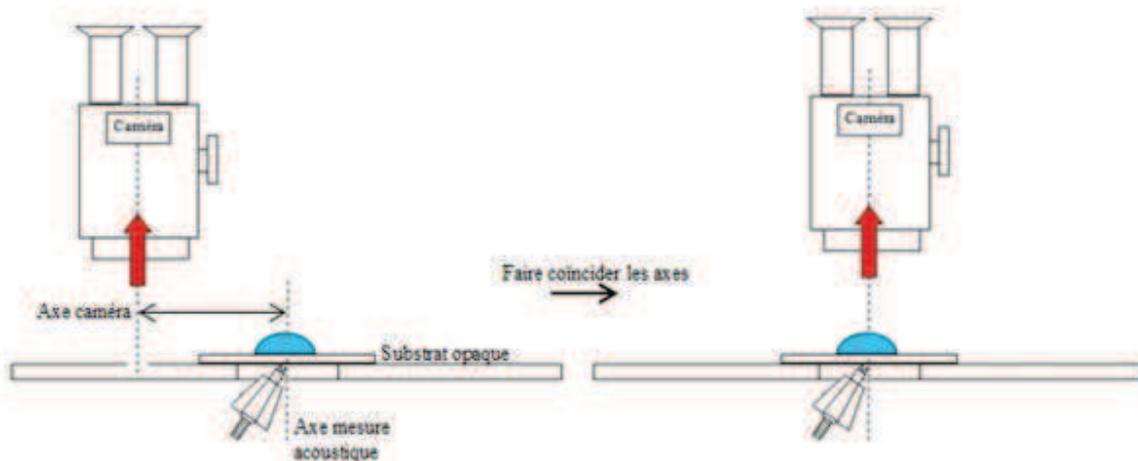


FIGURE 4.23 – Coïncidence de l'axe de la caméra d'observation de la goutte avec l'axe de mesure acoustique.

Ces réglages initiaux ne seront plus modifiés dans la suite de l'expérience. Une troisième caméra visualise le profil de la goutte à travers une vue latérale.

### Le système microfluidique

De marque Fluigent, il assure le contrôle du débit de liquide et du volume de la goutte déposée. Seules des gouttes d'eau ont été déposées. Le liquide doit être renouvelé avant chaque expérience de façon à être le plus proche possible d'une eau désionisée. Nous avons choisi d'amener la goutte au contact de la surface texturée à l'aide d'un tuyau incliné à environ  $45^\circ$  par rapport à la normale à la surface. La figure 4.24 présente le schéma entier du banc de mesure.

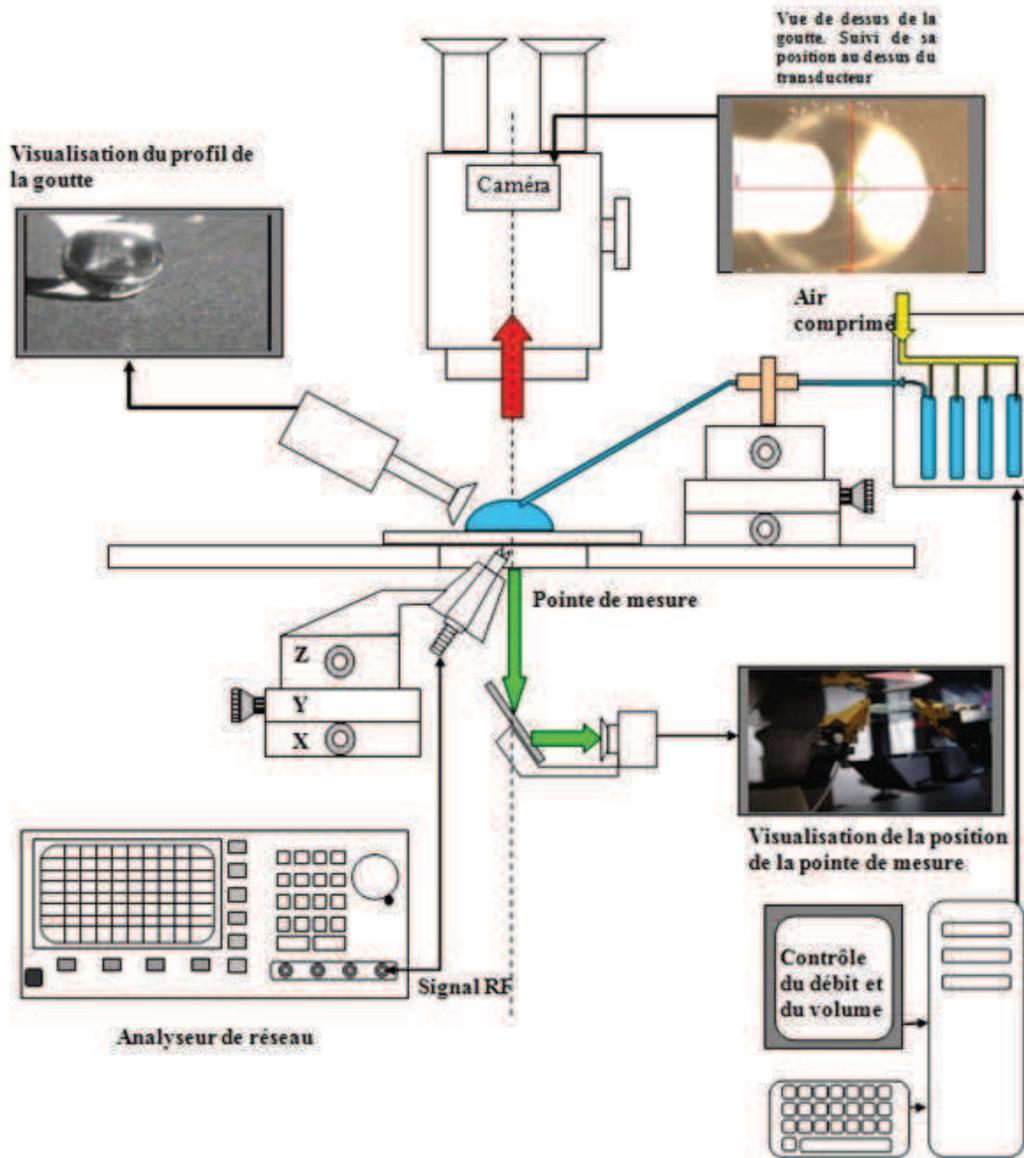


FIGURE 4.24 – Banc de mesure.

## 4.3 Résultats expérimentaux, analyse et interprétations

### 4.3.1 Introduction

La mesure simultanée de l'état d'une goutte en interaction avec une surface et de la réponse acoustique de l'interface exige un dispositif expérimental compliqué et délicat à utiliser.

La connaissance de l'état de la goutte et de son interaction avec la surface est essentielle à l'interprétation des résultats des mesures ultrasonores. Parmi les paramètres qu'il est nécessaire de maîtriser et de caractériser, on peut citer : l'état de la goutte, sa position par rapport au transducteur, l'assurance de son état au niveau plus local, l'obtention simultanée des vues de dessus et des vues de profil de la goutte permettant de suivre la dynamique de son étalement, etc. Dans ce but, nous avons utilisé plusieurs protocoles expérimentaux de façon à améliorer la qualité des mesures (répétabilité, précision, ...).

En premier lieu, nous avons procédé à l'ajout d'un volume d'eau de hauteur variable sur une surface limitée par un joint et couvrant une surface plus grande que celle du transducteur. Les mesures prises dans ces conditions, que nous avons appelées mesures en "piscine", permettent d'évaluer la faisabilité de notre méthode et de nous assurer des conditions de mesures. Cependant, avec cette méthode aucune mesure locale ne peut être réalisée.

En second lieu, après avoir détecté les deux états de mouillabilité, nous avons étudié le comportement d'une goutte isolée sur une surface de silicium. Dans ce contexte, nous avons déposé une goutte à l'aide d'un système microfluidique qui contrôle le débit du fluide et nous l'avons positionnée en déplaçant le tuyau du système microfluidique au moyen d'une platine de translation motorisée. Des mesures expérimentales significatives ont été réalisées.

Une troisième méthode a été expérimentée. Elle consiste à déposer une goutte sur la surface du silicium et à la laisser s'évaporer tout en suivant son changement d'état.

Enfin, l'électromouillage fournit un contrôle précis tant pour la génération individuelle de gouttes, que pour la modification contrôlée de l'état de la mouillabilité. Elle fait l'objet d'un quatrième procédé proposé afin de suivre la dynamique d'étalement d'une goutte sur la surface microtexturée.

Chaque méthode expérimentale sera détaillée dans la partie qui suit tout en montrant les avantages et les inconvénients de chacune d'entre elles.

### 4.3.2 Protocole expérimental suivi

1. L'analyseur de réseau est mis en service plus d'une heure avant le début des mesures de façon à stabiliser ses caractéristiques en température. Elles évoluent de façon très importante durant cet intervalle de temps. Le fichier de calibration est ensuite chargé.
2. Le système de mesure sous pointes de type backside est équipé de supports de pointes maintenus par aspiration, ce qui nécessite après chaque arrêt du banc de mesure de vérifier la coïncidence de l'axe d'observation de la face supérieure de l'échantillon avec celui du transducteur de mesure. De façon à repérer cette position et la surface du transducteur de mesure sur l'image de la face supérieure de l'échantillon, la zone de mesure est représentée schématiquement sur l'image.

3. Une mesure est ensuite réalisée initialement pour la surface libre.
4. Après vérification de la zone d'étude, de son intégrité et de sa propreté sur l'image de la face supérieure, une goutte est déposée à l'aide du système de contrôle microfluidique.
5. Par déplacement du tuyau d'amenée du fluide à l'aide de tables motorisées, la goutte est positionnée au-dessus du transducteur de mesure. Une goutte d'environ 10 à 15  $\mu L$  est déposée et son volume est mesuré.
6. Des mesures ultrasonores sont ensuite réalisées suivant l'étude choisie :
  - étude en "piscine" ;
  - étude avec évaporation ;
  - étude avec électromouillage...

Pour chaque situation l'image vue de dessus de la goutte est enregistrée et indexée au fichier de mesure ultrasonore.

7. L'étude se termine assez souvent par une mesure sur le substrat en contact avec le liquide initial avec ajout d'alcool de façon à disposer d'un signal avec une référence d'état Wenzel.

### 4.3.3 Exploitation des résultats expérimentaux

#### Exploitation des retards de propagation

La réponse acoustique  $S_{11}$  présentée après transformée de Fourier inverse (4.17) donne accès au diagramme d'écho identique dans les quatre situations d'expérience (Figure 4.25) :

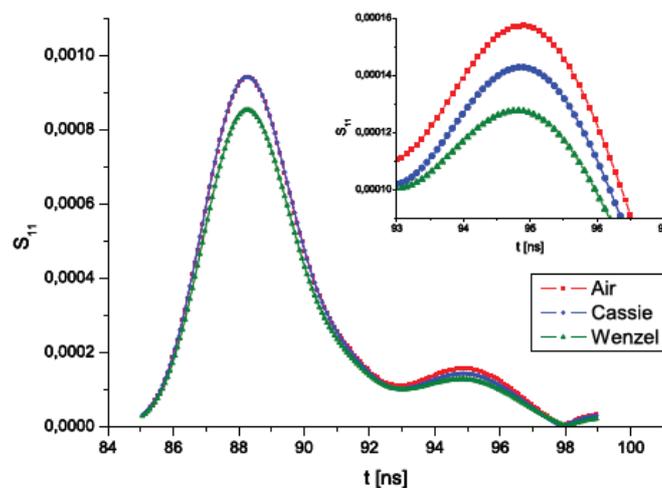


FIGURE 4.25 – Diagramme d'écho.

Le premier écho se produit à  $t_1 = 88,3ns$  après l'émission du signal et le retard entre les deux échos vaut environ  $t_2 - t_1 = 6,64ns$ . La hauteur des piliers étant de  $20 \mu m$ , nous en déduisons que l'onde acoustique s'est propagée à la vitesse de  $6024 \text{ m/s}$ .

Cette valeur est conforme aux prévisions données par le modèle de propagation dans un cylindre.

## Exploitation des amplitudes

### Mesures de l'interaction liquide-surface en "piscine"

Un joint torique déposé sur l'échantillon au-dessus d'un transducteur permet de constituer une réserve (appelée "piscine" dans la suite) permettant d'accueillir un volume de liquide.

A l'aide du système microfluidique nous déposons une goutte que nous laissons grossir jusqu'à recouvrir une partie de la piscine.



FIGURE 4.26 – Image de la "piscine".

Après dépôt du liquide en surface, le coefficient de réflexion  $r_1$  aux bas des piliers vaut 1 ; ce qui signifie que l'eau n'a pas pénétré entre les piliers et que la présence d'air entre ces derniers crée une réflexion totale à l'interface associée à un coefficient de réflexion égal à 1. Aux sommets des piliers, la valeur  $r_2$  obtenue est de 0,87, ce qui est en accord avec la valeur théorique correspondant à l'interface silicium/eau (0,86). La première situation de mouillage pour laquelle le liquide repose uniquement sur les sommets de la rugosité (état Cassie) est ainsi identifiée. Dans ce cas, le liquide repose sur une surface mixte à la fois de solide et d'air.

Afin de passer à la deuxième situation de mouillage possible pour laquelle le liquide épouse parfaitement les modulations de la surface (état Wenzel), une trace d'alcool est introduite dans le liquide. La quantité d'alcool est négligeable devant la quantité d'eau et donc n'affecte pas les propriétés acoustiques du liquide.

Il est aussi important de signaler que macroscopiquement nous n'arrivons pas à identifier visuellement les deux situations obtenues car avec la présence du joint torique, il n'est pas possible d'accéder au profil du liquide ou de la goutte.

Les deux valeurs du coefficient de réflexion alors obtenues  $r_1$  et  $r_2$  au sommet et aux bas des piliers sont égales à 0,87 et 0,8 respectivement. La valeur de  $r_2$  montre bien l'imprégnation de la surface texturée et le liquide repose alors sur une surface mixte solide-liquide. Cette expérience, répétée

plusieurs fois en plusieurs endroits de l'échantillon et en utilisant différents transducteurs, a toujours produit les mêmes résultats. Elle a prouvé son efficacité pour la détermination des deux états extrêmes du liquide sur une interface rugueuse.

On verra dans la suite qu'avec les autres expériences menées, ces résultats ne diffèrent que par la valeur de  $r_2$  qui vaut dans ce cas 0,8 alors que la valeur trouvée par la suite est plutôt de 0,75. C'est cette dernière valeur qui sera justifiée ultérieurement.

Une autre série d'expériences a été réalisée tout en posant une seule goutte d'eau à l'intérieur du joint et en suivant la dynamique de la goutte après l'ajout d'une trace d'alcool.

Le cas de la figure 4.27 illustre cette situation.

Au moment du dépôt de la goutte, cette dernière ne repose pas entièrement sur la surface solide mais sur un composite formé d'air et de solide, le contact liquide-surface est donc minimisé. La ligne triple de contact entre les trois phases du système reste accrochée et de l'air est ainsi piégé. Une fois l'ajout d'alcool (Figure 4.27), la ligne de contact commence à avancer en suivant le réseau de piler et se trouve finalement piégée dans la rugosité. D'où le basculement partiel de l'état Cassie à l'état Wenzel, sous le liquide.

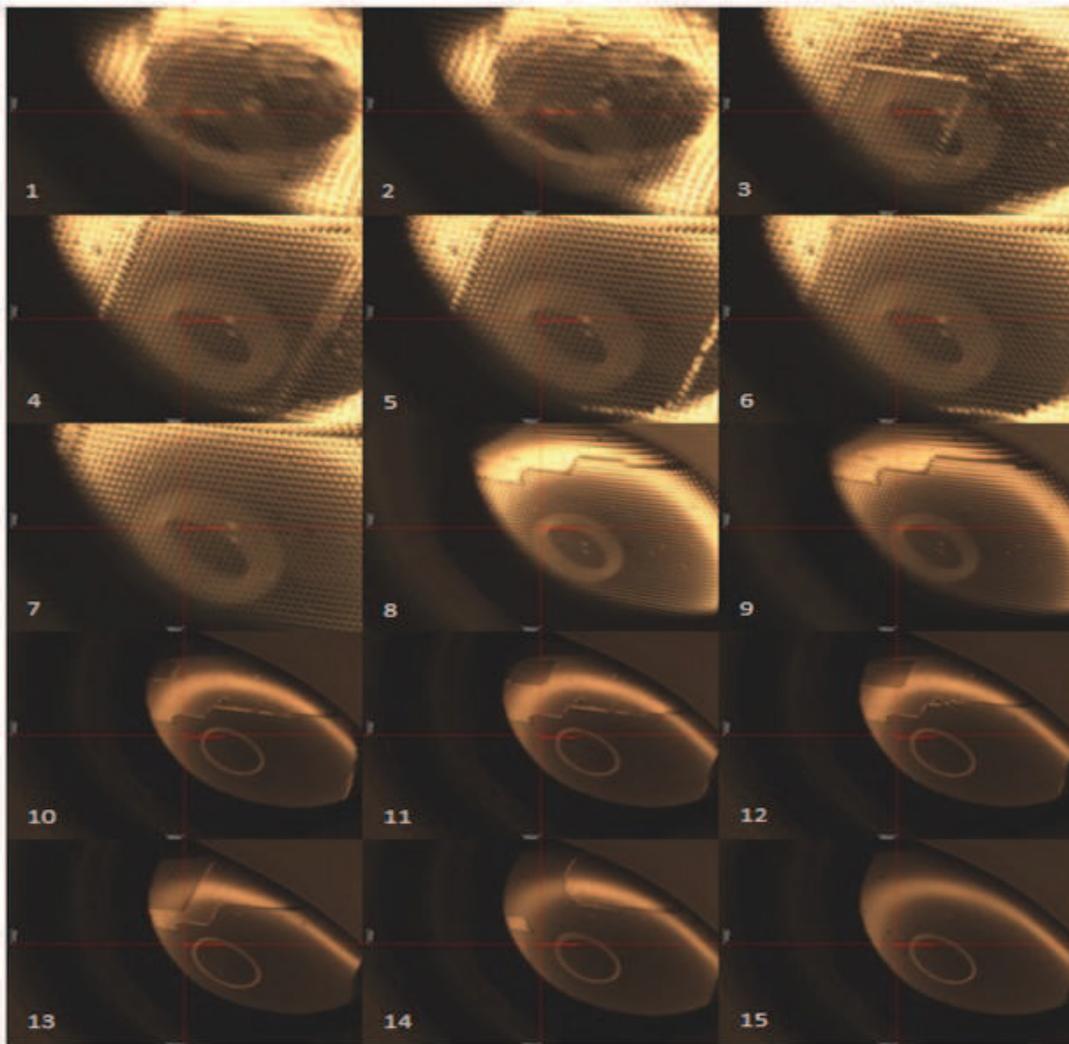


FIGURE 4.27 – Déplacement de la ligne de contact et remplissage de la surface texturée après ajout d'alcool. Passage de l'état Cassie à l'état Wenzel.

Pour cette expérimentation, les coefficients de réflexion mesurés ne sont pas significatifs car c'est la proportion des surfaces dans chacun des états qui définit leurs valeurs. En outre, la position de la goutte n'est pas précise puisque nous n'arrivons pas à la déposer à l'endroit voulu puisqu'elle vient se coller au joint torique. Donc, pour étudier plus finement les interactions entre des gouttes d'eau et des surfaces texturées, il s'est avéré nécessaire d'utiliser un dispositif qui nous permet de produire des gouttes de volume contrôlé et de les déposer mécaniquement afin de maîtriser leur position par rapport au capteur.

#### Mesures avec un dispositif microfluidique

Dans le but de contrôler le volume de la goutte déposée, nous avons utilisé, comme l'indique la photographie ci-dessous, un dispositif microfluidique pour la production des gouttes.

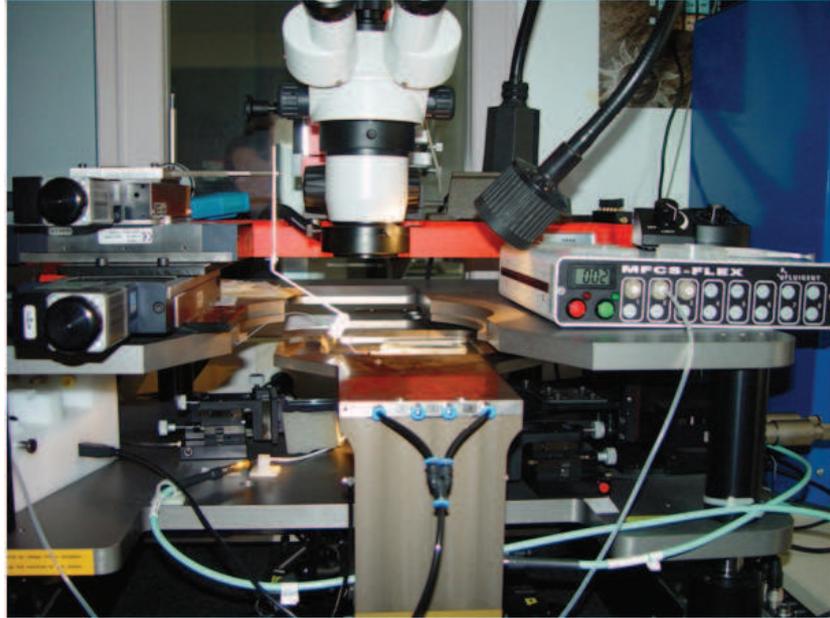


FIGURE 4.28 – Dispositif microfluidique utilisé.

Le tuyau de sortie (Figure 4.29) du dispositif est relié à une platine de translation motorisée de précision. Les gouttes sont filmées, vues de profil, au cours du processus grâce à une caméra (Figure 4.30) placée sur le côté de l'appareillage.

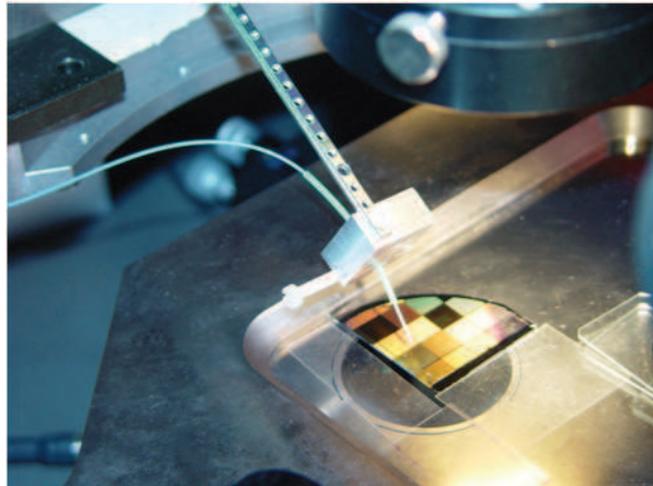


FIGURE 4.29 – Système microfluidique pour la production de gouttes.

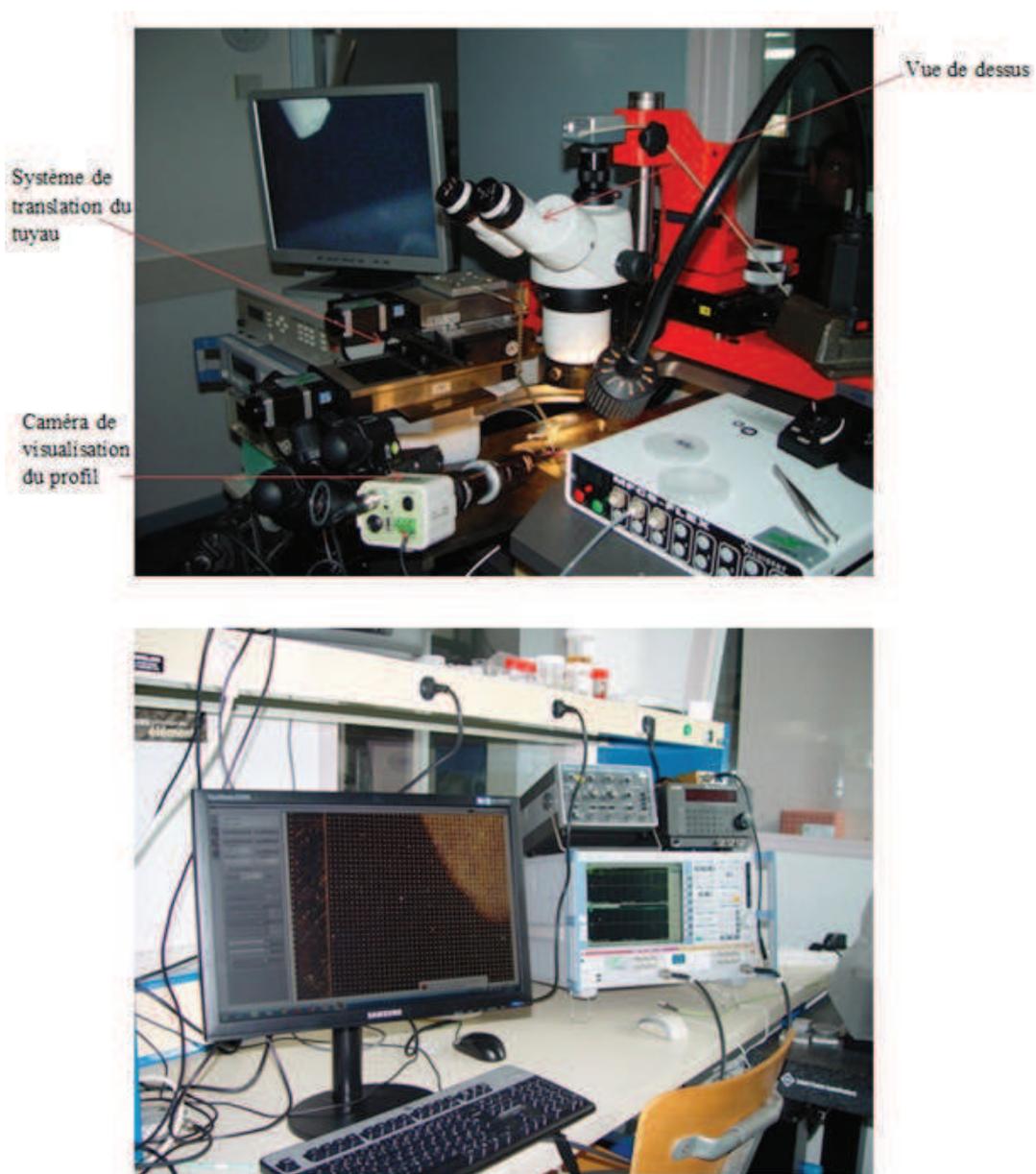


FIGURE 4.30 – Images données par les différentes caméras.

Le but de cette expérience est de faire grossir la goutte et de mesurer progressivement le coefficient de réflexion aux interfaces.

Plusieurs conditions doivent être vérifiées avant chaque série de mesures :

1. Evacuer l'air du canal d'alimentation :

Au cours du temps, des bulles d'air s'introduisent à l'intérieur de la goutte liquide formée et peuvent nuire aux mesures ; il faut purger les canalisations à chaque utilisation.

2. Changer l'eau régulièrement :

Au fur et à mesure que nous réalisons les mesures, nous remarquons la présence des microorganismes et de poussières qui se développent en suspension dans l'eau qui, vont modifier le comportement des gouttes formées.

3. Eviter les défauts de surface :

En effet, l'angle de contact étant lui-même une quantité souvent mal définie, nous observons, pour une surface donnée, toute une plage d'angles de contact possibles. Cet effet est souvent lié à la présence de défauts locaux physiques ou chimiques à la surface du solide et est responsable de l'accrochage des gouttes sur les défauts. Il devient alors difficile de prévoir le comportement de la goutte.

Pendant l'expérimentation, certaines zones ont présenté des défauts sur lesquels la goutte épouse brusquement la rugosité et donc passe directement à l'état Wenzel. La figure 4.31 illustre une situation typique.

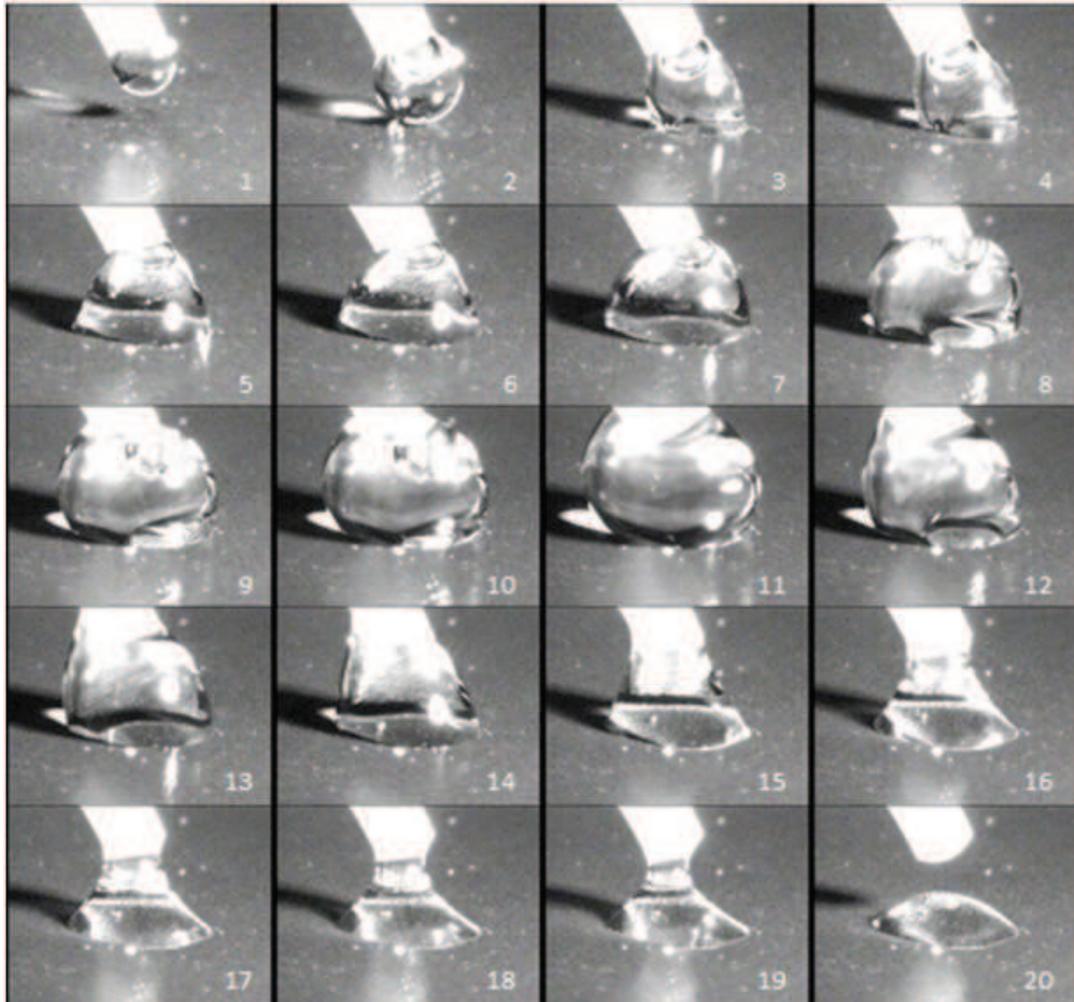


FIGURE 4.31 – Mouillage d’une zone présentant des défauts de surface.

Dès le dépôt de la goutte et juste au moment de son contact avec la surface, elle s’incruste subitement dans la texture présentant ainsi un faible angle de contact. La goutte est donc à l’état Wenzel.

En augmentant le débit, le volume de la goutte augmente et elle peut alors continuer à mouiller la surface.

En aspirant la goutte, nous remarquons que sa surface externe se déforme et étend son contact avec la surface du substrat pour enfin se diviser en deux : une partie du liquide est alors absorbée par le tuyau alors qu’une autre reste sur la surface formant un résidu de liquide ancré à la base des piliers.

Nous choisissons donc au début de l’expérience une zone d’étude non contaminée et nous commençons par augmenter le débit du liquide injecté. La goutte commence à grossir tout en conservant une forme quasi sphérique.

Au fur et à mesure que le volume augmente, la goutte se déforme en raison de son propre poids mais l’angle de

contact avec la surface reste très grand.

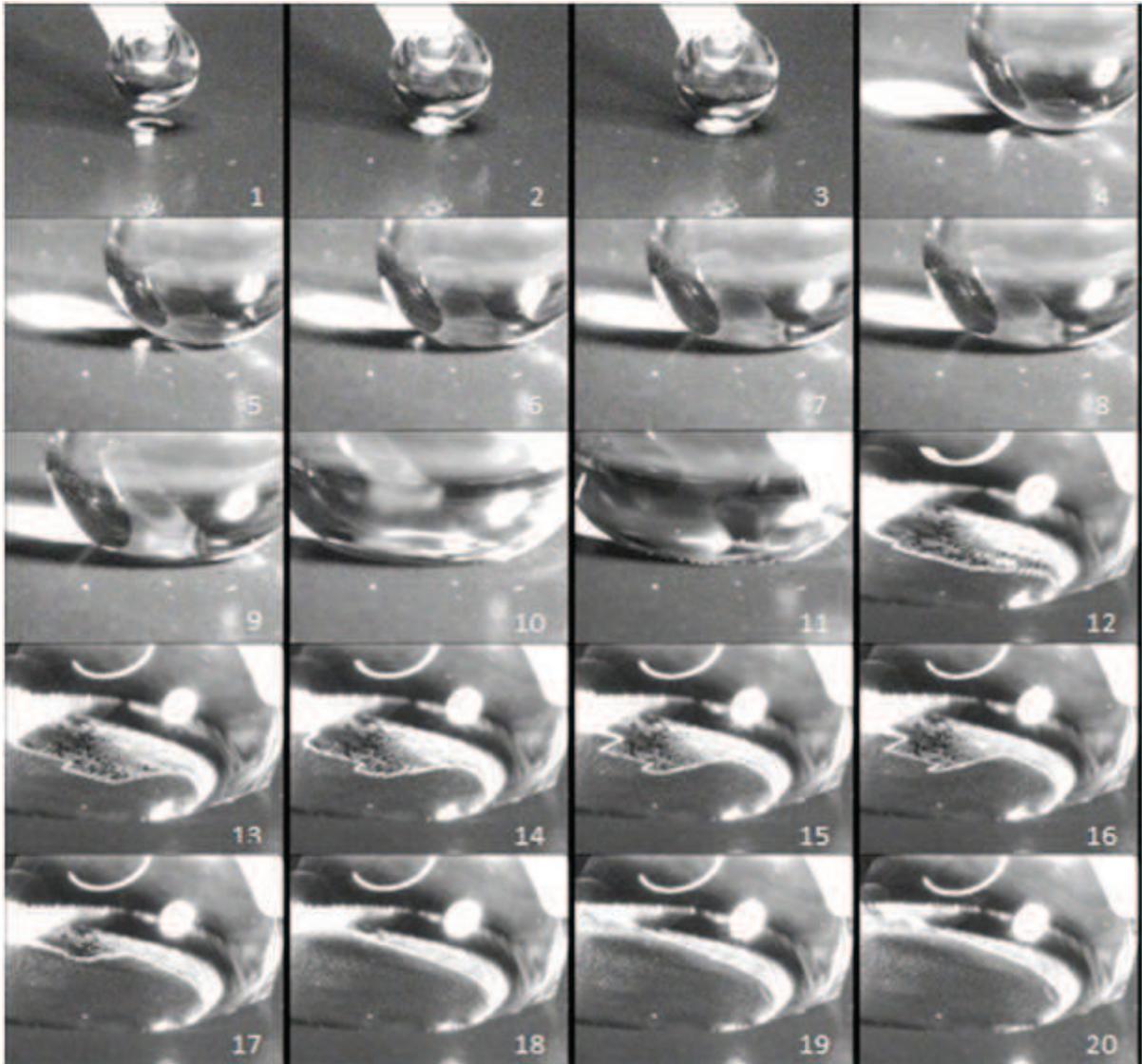


FIGURE 4.32 – Séquence d’images montrant la transition de l’état Cassie à l’état Wenzel lors d’ajout d’alcool.

Tout d’abord, le coefficient de réflexion  $r_1$  mesuré au bas des piliers pour la configuration de Cassie est égal à 1. Cela correspond aux valeurs théorique et simulée ( $r_{Si/air} = 1$ ) et atteste d’un piégeage d’air homogène en dessous de la goutte. Le coefficient  $r_2$  mesuré correspondant au sommet des piliers est trouvé égal à 0,87 tandis que la valeur théorique est de 0,86.

Nous remarquons que la goutte, isolée, n’arrive pas à imprégner l’espace libre entre les piliers même si nous augmentons son volume. Les valeurs des coefficients de réflexion restent toujours les mêmes au bas voire même aux sommets des piliers (Figure 4.33).

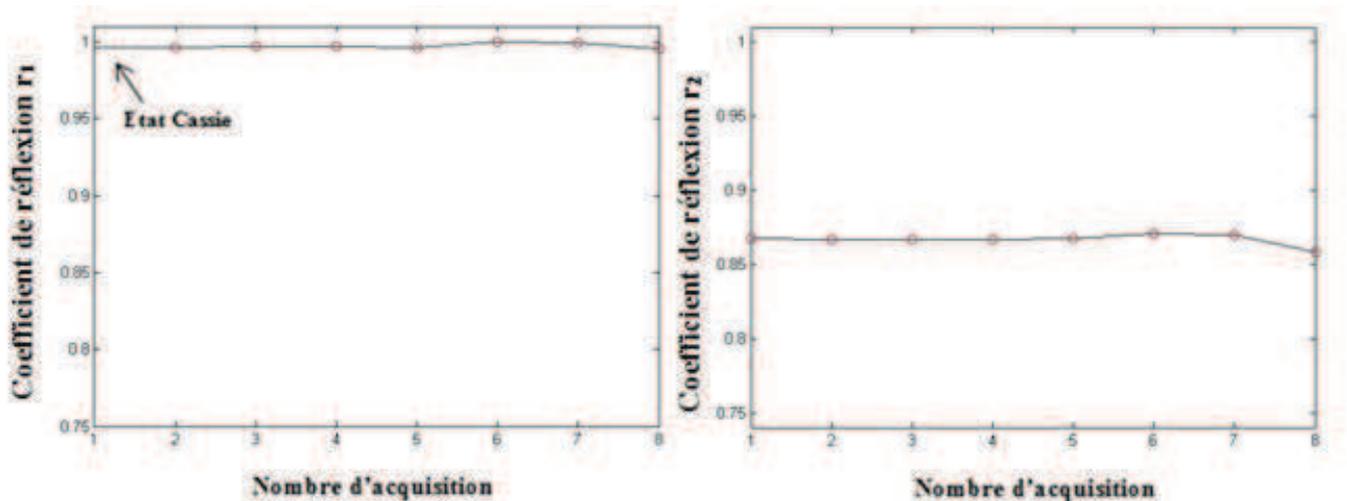


FIGURE 4.33 – Coefficients de réflexion  $r_1$  aux bas des piliers et  $r_2$  aux sommets des piliers.

Dans la suite, nous avons dû forcer la goutte d'eau à pénétrer entre les microstructures, ce qui correspond à l'état de mouillage de Wenzel. La transition est expérimentalement induite par l'ajout d'une légère trace d'éthanol sur la surface avant le dépôt de la goutte. Cela réduit localement l'énergie interfaciale et permet la pénétration du liquide dans les aspérités.

Au moment de l'ajout d'alcool, nous remarquons, macroscopiquement, une diminution de l'angle de contact et une augmentation d'étalement de la goutte, et, microscopiquement, nous observons en dynamique la ligne de contact qui avance sous la goutte en suivant le réseau de piliers et qui est finalement piégée dans la rugosité. D'où le basculement de l'état Cassie à l'état Wenzel.

Dans ce cas, le coefficient de réflexion  $r_1$  diminue nettement, pour atteindre une valeur de 0,85. Ceci est cohérent avec la valeur théorique ( $r_1 = 0,86$ ) et démontre la présence du liquide entre les micropiliers sous la totalité de la surface de la goutte. Au sommet des piliers, la valeur  $r_2$  mesurée est alors d'environ 0,75.

### Mesures par évaporation

Si l'on dépose délicatement des gouttes d'eau en état Cassie sur une surface de silicium texturée, ces gouttes sont quasi-sphériques et caractérisées par un grand angle de contact. Si l'on attend quelques minutes, voire dizaines de minutes, ces gouttes s'évaporent et leur taille décroît. Lors de cette évaporation, ces gouttes peuvent changer de forme et d'état.

D'où l'expérience suivante.

Au début de l'expérience, nous choisissons la zone d'étude (Figure 4.34).

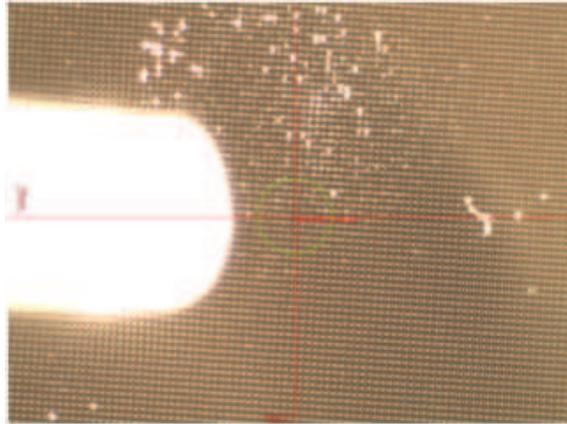


FIGURE 4.34 – Zone d'étude.

Comme nous le remarquons sur la figure ci-dessus, plusieurs zones de l'échantillon sont contaminées. Cependant la zone choisie couvrant la surface du transducteur (délimitée par le cercle en couleur) est dépourvue de défauts.

A l'aide du tuyau de sortie du dispositif microfluidique, une goutte d'eau de volume contrôlé ( $15 \mu L$ ) est libérée et est déposée sur la zone d'étude.

Initialement, la goutte est bien sphérique (Figure 4.35).

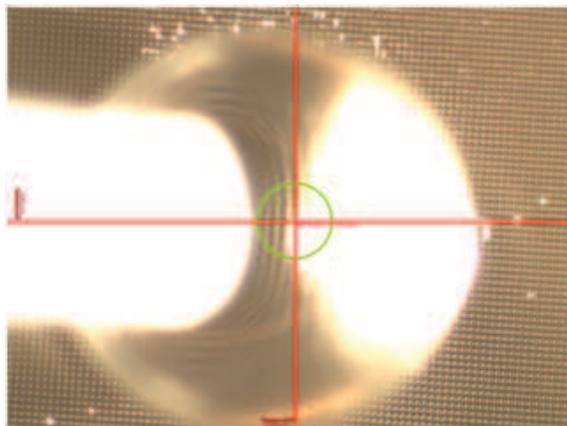


FIGURE 4.35 – Image de la goutte initialement déposée.

Au cours du temps, la goutte s'évapore et, par conséquent, sa taille commence à décroître régulièrement.

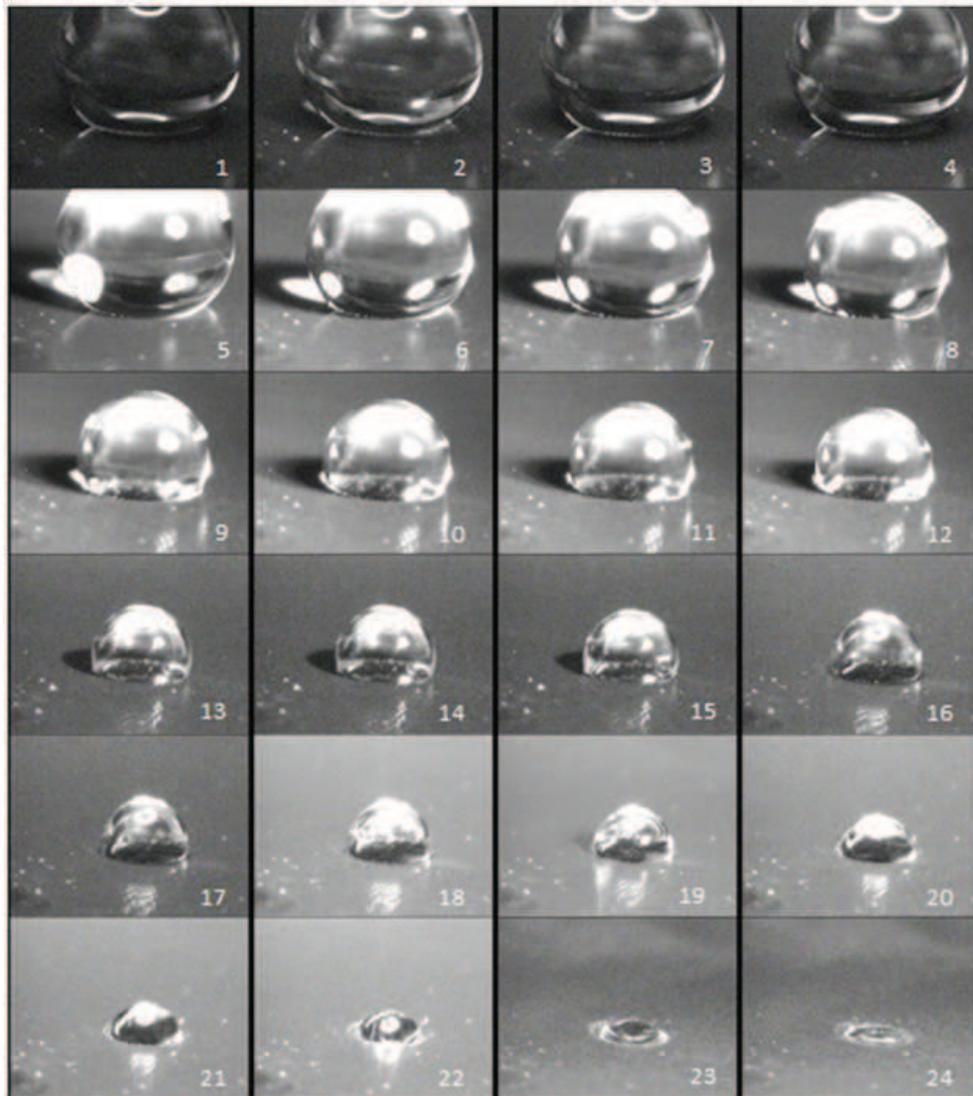


FIGURE 4.36 – Séquence d'images montrant l'évaporation d'une goutte d'eau posée sur la surface de silicium. Les images sont prises toutes les 2-3 minutes environ et la totalité de l'expérience dure une heure. L'image (8) montre la déformation de la goutte et sa transition de l'état Cassie à l'état Wenzel.

Cette situation est illustrée dans la figure ci-dessus. Sur cette figure, on observe la dynamique de l'évaporation d'une goutte d'un volume initial de  $15 \mu L$ . De ce fait, elle change de forme et l'angle de contact diminue progressivement. Après une vingtaine de minutes (Figure 4.36 ; 8-9), et lorsque son rayon devient plus petit qu'une valeur critique, on observe une petite goutte qui a perdu sa forme sphérique et qui est caractérisée par un angle de contact beaucoup plus faible qu'initialement. Cette goutte est donc passée de l'état Cassie à l'état Wenzel. Et l'angle de contact continue à décroître jusqu'à s'annuler en laissant la ligne de contact fixe.

Afin d'étudier quantitativement l'état de la goutte lors de cette expérience d'évaporation, les coefficients de réflexion  $r_1$  et  $r_2$  aux niveaux bas et haut des piliers ont été mesurés pour différents instants du processus. La figure 4.37 présente les valeurs de ces coefficients pour onze acquisitions.

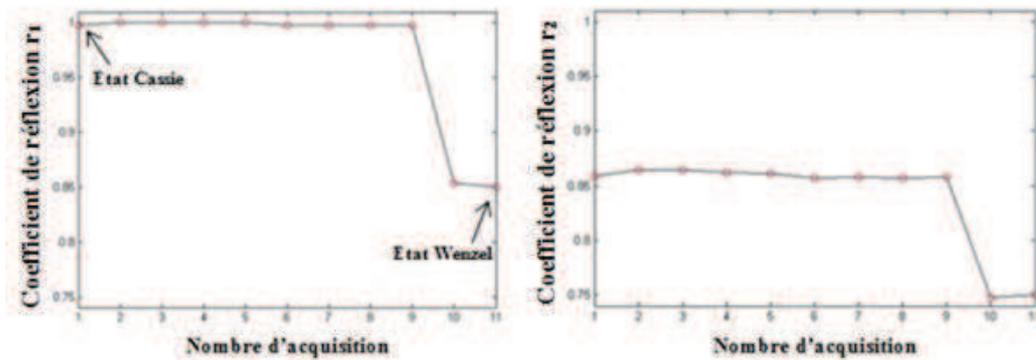


FIGURE 4.37 – Coefficients de réflexion  $r_1$  au bas des piliers et  $r_2$  au sommet des piliers.

Nous remarquons que, lors de cette évaporation, la goutte change subitement de forme : la goutte perd sa forme sphérique et elle est caractérisée par un angle de contact beaucoup plus faible. Cette goutte est passée d'un état glissant à un état collant sur la surface : de l'état Cassie à l'état Wenzel. Les coefficients de réflexion au bas et au sommet des piliers témoignent de ce passage. Lorsque la goutte est à l'état Cassie le coefficient de réflexion au bas des piliers est égal à 1 et celui au sommet vaut 0,86. A l'état Wenzel,  $r_1$  devient égal à 0,86 et  $r_2$  égal à 0,75.

### Une trace résiduelle, témoin de la transition

Si l'on revient à la dernière image de la séquence précédente (Figure 4.38) prise après l'évaporation complète de la goutte, nous pouvons voir clairement une trace à l'endroit où la goutte s'est évaporée. Cette trace est ancrée à la base des piliers ce qui confirme que la goutte s'est effectivement effondrée jusqu'au fond des piliers au moment de la transition. La ligne de contact, dans ce cas, a alors été piégée par les micropiliers. Dans le cas d'une goutte dans l'état Cassie aucune trace résiduelle n'est visible.

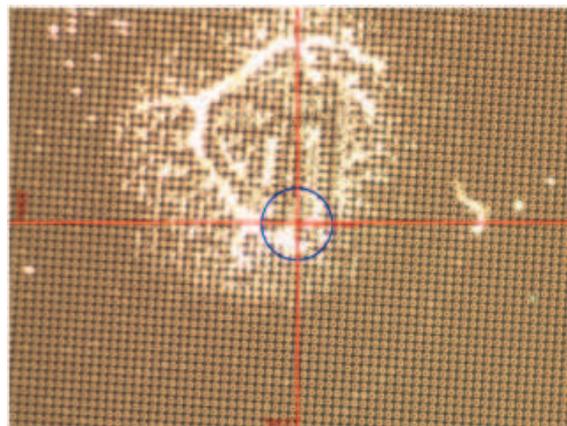


FIGURE 4.38 – Trace laissée par l'évaporation de la goutte d'eau sur la surface de silicium.

## Electromouillage

### Principe de l'électromouillage

Le principe de l'électromouillage sur diélectrique ("Electrowetting-on-dielectric" (EWOD)) consiste à poser une goutte de liquide conducteur sur un substrat hydrophobe. Une électrode impose le potentiel  $U$  de la goutte, et une contre-électrode est disposée à une distance  $e$  sous l'isolant. Sous l'effet du champ électrique, des charges électriques s'accumulent à l'interface de la goutte. Celle-ci, soumise à une contrainte, s'étale sur le substrat.

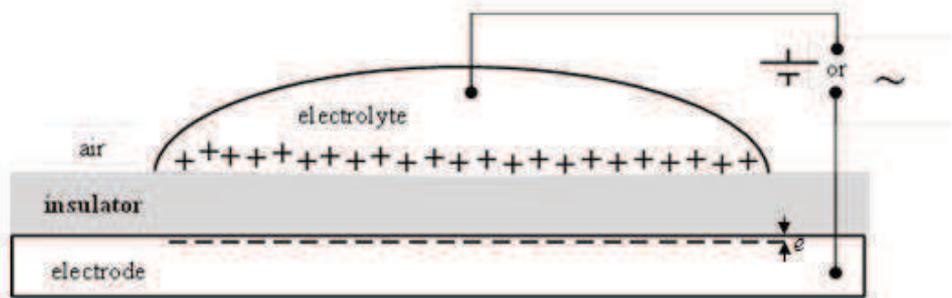


FIGURE 4.39 – Dispositif d'électromouillage.

De ce fait, l'électromouillage sur diélectrique est un phénomène permettant de modifier l'angle de mouillage d'une solution conductrice posée sur un support isolant [79].

Dans le cas d'une surface texturée superhydrophobe, la goutte liquide se trouve à l'état Cassie. Sous applications d'une tension de polarisation, l'eau est entraînée à l'intérieur des piliers provoquant la conversion d'un régime Cassie au régime de Wenzel. La transition inverse de mouillage est généralement empêchée par les barrières d'énergie de surface (Gibbs), rendant l'état Wenzel quasi irréversible [80], [81]. Cependant, des études récentes ont montré qu'une transition réversible entre les deux états de mouillage peut être réalisée localement à l'aide de surfaces appropriées et de géométries d'électrodes optimisées [82],[83].



FIGURE 4.40 – Electromouillage : Passage de l'état Cassie à l'état Wenzel.

Dans le domaine de la microfluidique, l'électromouillage sur diélectrique (EWOD) est devenu une technique primordiale pour son efficacité, les possibilités d'intégration qu'elle offre et les importantes applications qu'elle génère (lentilles microfluidiques, pixels pour écrans couleurs, Lab-on-Chip ...).

Cette technique permet de nombreuses utilisations (séparation, mélange, dosage,...) offrant des perspectives prometteuses mais son principal inconvénient est sa grande sensibilité aux propriétés de la surface (la couche hydrophobe) et sa tenue dans le temps.

### Suivi de la transition d'une goutte lors d'une expérience d'électromouillage

Cette partie décrit le résultat des expériences réalisées sur des gouttes où la transition Cassie-Wenzel a été induite par électromouillage sur des surfaces microstructurées.

Les expériences ont été réalisées afin de quantifier le coefficient de réflexion de l'onde acoustique à l'interface texturée entre le silicium et le fluide. Les expériences consistent à augmenter progressivement la tension d'électromouillage par bonds de 200 mV et à suivre les modifications subies par la goutte en fonction du potentiel appliqué, en partant d'une goutte à l'état Cassie initialement.

Une goutte est déposée à la seringue sur la surface de l'échantillon. Le générateur électrique délivre alors une tension de 50V, 1 kHz. L'amplitude du signal augmente au fur et à mesure et pour chaque valeur de tension appliquée, nous suivons l'évolution du paramètre  $S_{11}$ . Lorsque les images de la goutte à différentes valeurs de potentiel électrique sont prises, le paramètre  $S_{11}$  correspondant est analysé afin de déduire le coefficient de réflexion. Les résultats sont alors interprétés sous forme de courbes d'électromouillage. Sur de telles courbes, nous apercevons les variations du coefficient de réflexion aux niveaux "haut" et "bas" des piliers.

La figure 4.41 présente le coefficient de réflexion en fonction de la tension d'électromouillage toujours pour même échantillon affichant les paramètres suivants : diamètre des piliers  $a = 15 \mu m$ , espacement entre piliers  $b = 15 \mu m$  et hauteur des piliers  $h = 20 \mu m$ .

La figure 4.41 montre clairement que le coefficient de réflexion expérimental dans l'état Cassie (au début de l'expérience) concorde bien avec celui prévu théoriquement ( $r_{Si/air} = 1$ ). Lorsque la goutte commence à s'effondrer entre les piliers. Compte tenu de la position du transducteur en périphérie de la goutte (Figure 4.42), le coefficient de réflexion qu'il délivre passe progressivement de la valeur 1 à la valeur de 0,75 plus faible que prévue ( $r_{Si/eau} = 0,85$ ) mais identique à celle obtenue dans les expériences précédentes. Ceci traduit en fait l'augmentation progressive d'une surface à l'état Wenzel dans le champ du transducteur.

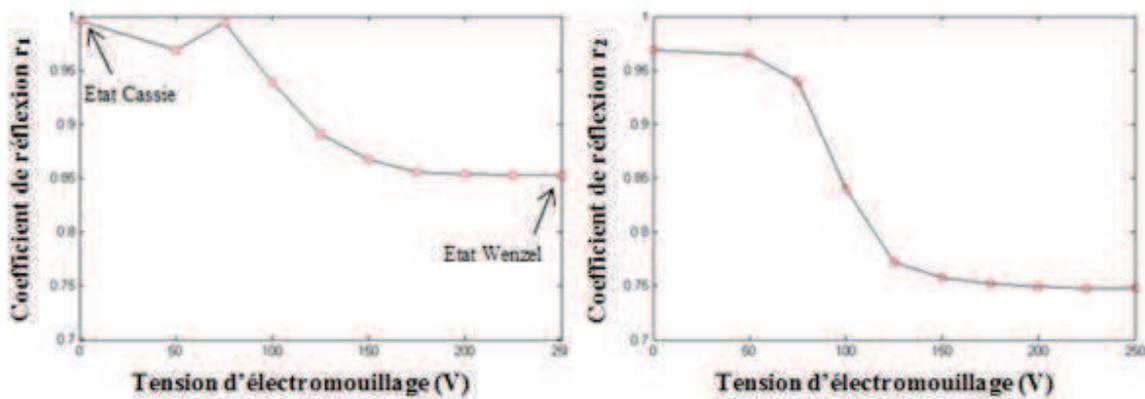


FIGURE 4.41 – Coefficients de réflexion  $r_1$  aux bas des piliers et  $r_2$  au sommet des piliers lors d'une expérience d'électromouillage.

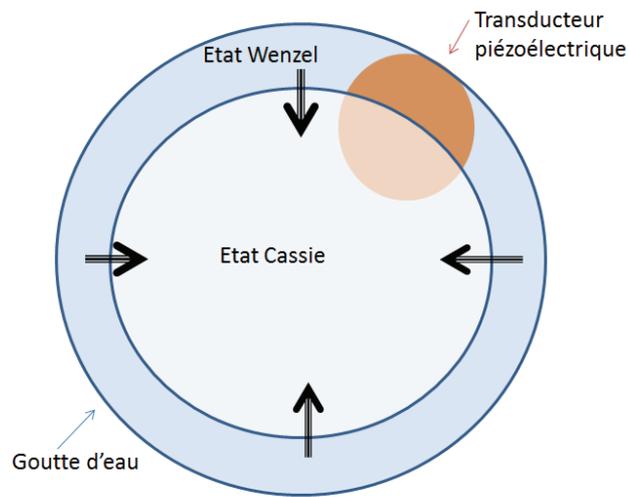


FIGURE 4.42 – Avancée du front mouillant sous EWOD.

### 4.3.4 Analyse

En résumé, l'histogramme de la Figure 4.43 représente respectivement la moyenne (avec une dispersion, écart-type, de 0,01) sur soixante-deux mesures des valeurs expérimentales et numériques de coefficients de réflexion  $r_1$  et  $r_2$  au bas et au sommet des piliers, pour les états Cassie et Wenzel.

Tout d'abord, le coefficient de réflexion mesuré  $r_1$  au fond des piliers pour la configuration de Cassie est égal à 1. Cela correspond aux valeurs théorique et simulée ( $r_{Si/air} = 1$ ) et atteste du piégeage de l'air entre les piliers. Le coefficient  $r_2$  mesuré correspondant au sommet des piliers est trouvé égal à 0,87 alors que la valeur simulée est de 0,84 (la valeur théorique étant de 0,86). Pour la configuration de Wenzel, la valeur moyenne de  $r_1$  mesurée est égale à 0,85 et celle de  $r_2$  est égale à 0,75.

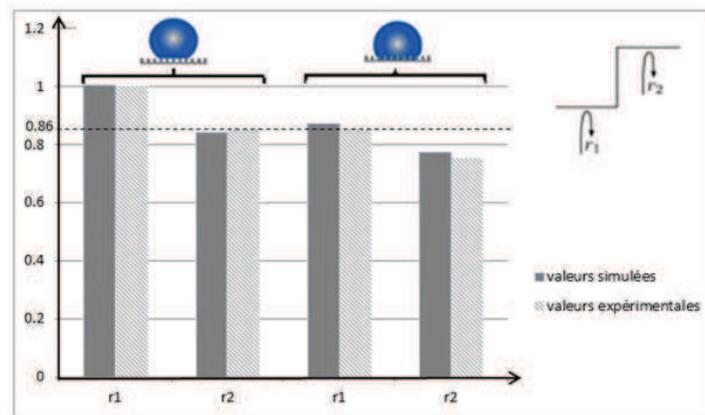


FIGURE 4.43 – les coefficients de réflexion  $r_1$  et  $r_2$  respectivement au bas et au sommet des piliers, pour les états Cassie et Wenzel. La ligne horizontale en pointillés correspond à  $r = 0,86$ , ce qui est la valeur théorique pour la réflexion sur une interface silicium /eau.

Dans le cadre de notre travail, quatre types de mesures ont été effectués. Le protocole a évalué et les dernières mesures lors d'une évaporation ou d'une expérience d'électromouillage ont bénéficié de l'expérience acquise dans la mise en œuvre de modalités de mesures complexes.

Cependant l'ensemble des résultats de mesure reste cohérent à la fois du point de vue des valeurs de coefficients de réflexion mesurés et de l'analyse du diagramme d'écho.

La dispersion des mesures des coefficients de réflexion dans les différents états de la goutte reste faible (mieux que  $\pm 0.01$  d'écart type), ce qui permet de valider la méthode ultrasonore en tant qu'outil de caractérisation d'une interface microtexturée .

Le choix d'une fréquence correspondant à la propagation d'ondes guidées dans les piliers a pu être à profit pour disposer de signaux réfléchis correspondant à des interactions de nature différente entre les motifs de texturation et le liquide.

Une étude plus approfondie des résonances observées serait particulièrement utile pour caractériser des états mixtes ou composites de la goutte.

# Conclusion

Ce travail de recherche a été initié suite à une discussion scientifique entre l'équipe microfluidique et l'équipe microsystèmes acoustiques de l'IEMN. Au cours de cette discussion est apparu l'intérêt de disposer d'un outil de mesure local des propriétés de mouillabilité d'une surface. En effet les dynamiques de changement d'état du mouillage sur une surface ne sont pas toujours bien décrites ou bien comprises. Une des causes de cette méconnaissance vient d'une connaissance ou d'une approche expérimentale trop globale de l'interaction d'une goutte avec une surface, c'est ce qui nous a conduits à imaginer une méthode locale de caractérisation de la mouillabilité d'une interface innovante.

D'autre part la recherche de propriétés superhydrophobes pour des applications de BIOMEMS, à l'aide d'une microtexturation physique de la surface, s'est traduite par l'utilisation des technologies de gravures bien maîtrisées sur le silicium. Les structures réalisées par gravure physique sur silicium constituent des réseaux de piliers de dimensions, de forme et d'espacement qui conditionnent les propriétés de mouillabilité des surfaces. Dans le cas de microtexturation, l'échelle des structures peut varier de quelques micromètres à plusieurs dizaines de micromètres. Ces dimensions sont alors compatibles avec les longueurs d'ondes ultrasonores, pour un domaine de fréquence de l'ordre du GHz.

Ce contexte a été à l'origine du travail réalisé. Le premier chapitre a présenté un bref état de l'art des phénomènes de mouillage ainsi que les méthodes utilisées pour leur caractérisation à l'échelle macroscopique et à l'échelle microscopique.. Le second chapitre a résumé les connaissances nécessaires à l'interprétation des différents phénomènes acoustiques en jeu dans la caractérisation des interfaces.

L'essentiel des résultats originaux produits par notre travail fait l'objet des chapitres trois et quatre. La modélisation de l'interaction d'une onde acoustique avec une interface fluide-silicium texturé compare les résultats obtenus pour différentes géométries par une méthode de différences finies. La synthèse des résultats des différents modèles fait apparaître d'une part que les modèles éléments finis sont, dans le cas de notre structure, trop consommateurs de temps de calcul vis-à-vis du modèle aux différences finies qui a été développé pour ce travail.

Les résultats du modèle font clairement apparaître l'existence de signaux acoustiques de réflexion provenant d'une interface microtexturée dont l'exploitation, après traitement des signaux, donne accès à une analyse et une interprétation de l'état d'un liquide déposé sur cette surface. En particulier, au-delà de la simple distinction entre l'état Cassie et l'état Wenzel d'un liquide sur une surface microtexturée, l'existence de modes de propagation guidés dans les piliers gravés en surface devrait permettre une interprétation plus fine des états composites d'une goutte déposée sur ces surfaces.

Le chapitre quatre présente le banc de mesure qui a été développé afin de disposer de mesures répétables des signaux ultrasonores tout en disposant de l'ensemble des paramètres caractérisant l'état de la goutte sur la surface. Plusieurs protocoles de mesure ont été utilisés ce qui a permis définir les conditions de mesures acoustiques optimales. Nous nous sommes intéressés, dans un premier temps, davantage à valider ces conditions de mesure plutôt que d'exploiter ce qui reste un des avantages essentiels d'une mesure acoustique (une mesure

locale). C'est avant tout la position, la surface voire la forme du transducteur qui permet de disposer d'une valeur moyenne de l'état de la goutte sur une fraction de la surface de contact, y compris dans le cas de matériaux optiquement opaques tels que le silicium. Les valeurs trouvées expérimentalement du coefficient de réflexion ultrasonore sur l'interface microtexturée viennent confirmer les résultats du modèle aux différences finies. Les résultats expérimentaux obtenus dans une soixantaine de mesures permettent également de valider le dispositif de mesure et le dernier protocole mis au point. Le dispositif demeure néanmoins complexe et délicat à mettre en œuvre. Il a été possible de déterminer les coefficients de réflexion acoustique sur des surfaces microtexturées sur lesquels reposent des gouttes en état Cassie ou Wenzel. Il a été également possible d'observer des états de transition de l'interface sous la goutte contrôlée par EWOD.

De nombreuses problématiques autour de l'évaluation de la mouillabilité de surfaces fonctionnalisées pourraient être désormais abordées, à la fois sous des aspects de modélisation ainsi que des approches expérimentales. C'est le cas pour l'étude de surfaces fonctionnalisées chimiquement ou à l'aide de nanofils ainsi que pour des études plus approfondies de surfaces microtexturées présentant des états métastables et dont les cinétiques de basculement entre différents états nécessitent une connaissance locale de l'état du liquide en contact. Le comportement de surfaces oleophobes ou omniphobes pourrait également être envisagé et étudié. Les développements importants des travaux de recherche dans le domaine des microsystèmes imposent une maîtrise des propriétés de surface des matériaux employés et conduiront probablement à l'émergence de nouveaux sujets d'étude s'appuyant sur un dispositif expérimental plus adapté et plus intégré.

# Annexe A

## Approche par éléments finis

La méthode des éléments finis, appelée FEM (Finite Element Method), est largement utilisée dans la simulation numérique pour la résolution des équations aux dérivées partielles décrivant les phénomènes physiques. Historiquement, ses premières et larges utilisations concernent les problèmes liés aux structures mécaniques nécessitant la recherche des solutions de contraintes et de déformations dans les milieux élastiques. Tel est aussi le cas de l'étude de la propagation des ondes acoustiques/élastiques dans les milieux.

### A.1 Principe de base

Les méthodes par éléments finis, fondées sur une partition de l'espace discrétisé, s'appuient naturellement sur des maillages non-structurés et sont particulièrement adaptées aux problèmes dont les frontières sont d'une géométrie irrégulière.

C'est une discrétisation géométrique qui consiste à procéder à un découpage du domaine continu en sous domaines tel que :

$$D = \sum_{e=1}^{n_e} D_e \quad (\text{A.1})$$

Cette méthode est basée sur la construction systématique d'une approximation  $u^*$  du champ variable  $u$  par sous domaine. Cette approximation est construite sur les valeurs approchées du champ aux nœuds de l'élément considéré, on parle de représentation nodale de l'approximation ou plus simplement d'approximation nodale.

L'approximation par éléments finis est une approximation nodale par sous domaines ne faisant intervenir que les variables nodales du domaine élémentaire  $D_e$  :

$$\forall M \in D_e, u^*(M) = N(M)u_n \quad (\text{A.2})$$

Où  $u^*(M)$  représente la valeur de la fonction approchée en tout point  $M$  de l'élément et  $N$ , la matrice ligne des fonctions d'interpolation de l'élément  $u_n$  variables nodales relatives aux nœuds d'interpolation de l'élément.

## A.2 Logiciel de simulation

Dans l'objectif de modéliser notre problème par éléments finis, COMSOL Multiphysics se montre en premier temps, adapté à ce domaine de travail vu sa performance dans le couplage de différents modules multiphysiques et la simplicité dans le post-traitement des données collectées [84]. Il propose des solveurs performants qui peuvent résoudre numériquement des problèmes de très grande taille. Grâce à des modèles prédéfinis, on peut simuler des phénomènes physiques comme l'électrostatique, la mécanique des fluides, le transfert thermique ou la déformation des matériaux, et les coupler entre eux avec facilité grâce à une interface graphique ou avec d'autres algorithmes comme Matlab [85].

Les principales caractéristiques de COMSOL, dans notre travail, sont :

- Les solveurs directs ou itératifs dont on peut modifier la plupart des paramètres ;
- Des modèles stationnaires linéaires et non-linéaires, ou non stationnaires ;
- Les propriétés physiques pouvant être spécifiées en tant que constantes numériques ou comme fonctions de différents paramètres, tels que le temps, l'espace ou d'autres propriétés ;
- La formulation générale des équations aux dérivées partielles pour les systèmes physiques les plus courants.

La résolution d'un problème à l'aide de COMSOL suit la succession logique des étapes suivantes :

1. Création de la géométrie ;
2. Définition des propriétés physiques intervenant dans les équations aux dérivées partielles ;
3. Définition des conditions aux limites ;
4. Choix du Maillage ;
5. Résolution numérique ;
6. Visualisation des résultats.

Ces étapes de calcul s'effectuent indépendamment, suivant le diagramme suivant :

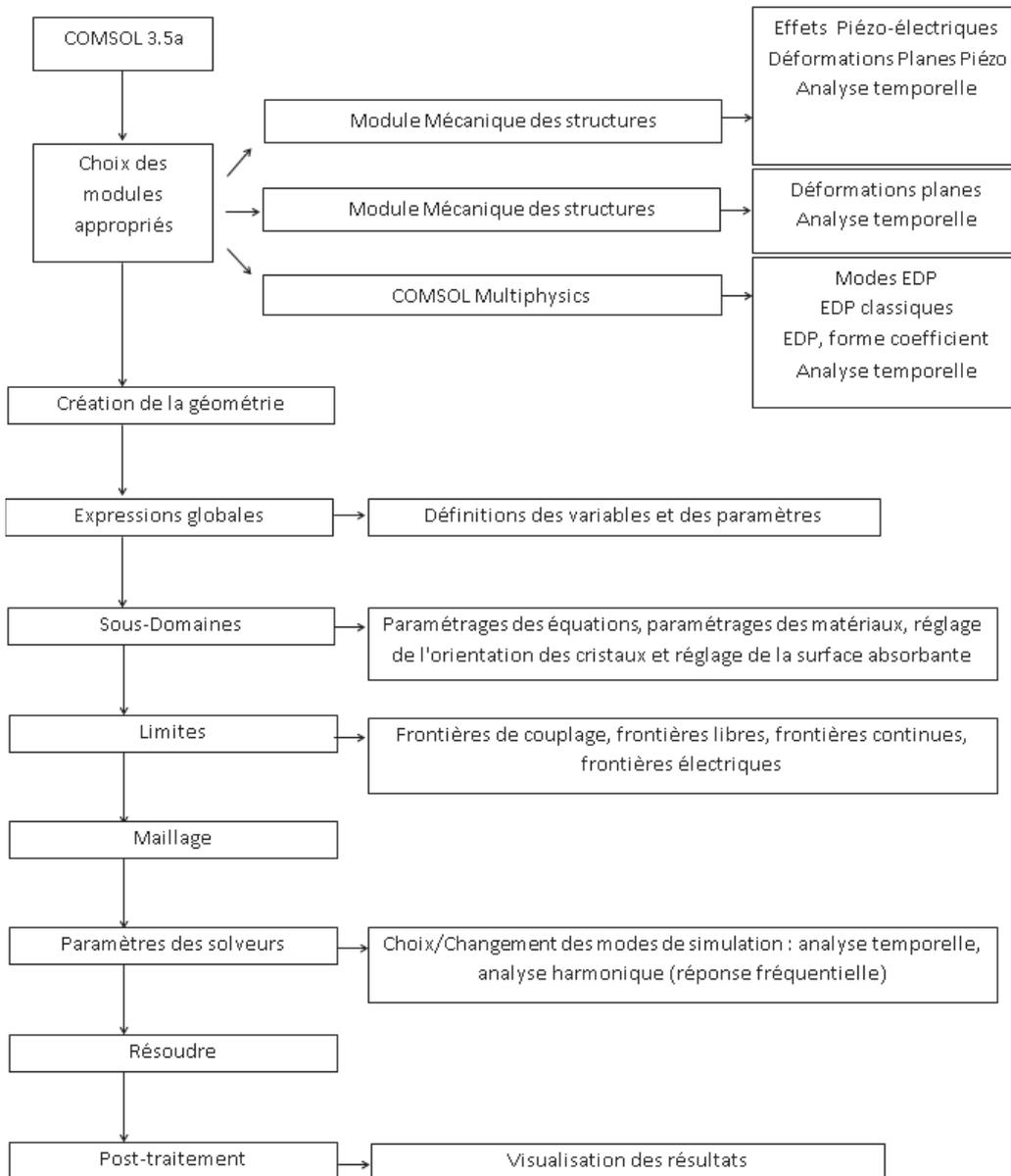


FIGURE A.1 – Diagramme de modélisation utilisant COMSOL 3.5a.

## A.3 Formalisme de COMSOL

### A.3.1 Modules et équations

Nous avons choisi le module "Déformations planes" dans le module "Mécanique de structures" de COMSOL 3.5a pour simuler la propagation des ondes dans les matériaux non-piézoélectriques. Pour les matériaux piézoélectriques, le module de "déformations planes piezo" dans le module "Effets piézoélectriques" a été utilisé. Dans ces modules, nous avons seulement besoin de donner des valeurs à  $c_{ijkl}$  et  $\rho$  pour les solides non-piézoélectrique et  $c_{ijkl}, e_{jkl}, \varepsilon_{ij}$  et  $\rho$  pour un solide piézoélectrique.

Le module "EDP, Forme coefficient" dans le module de "COMSOL Multiphysics" est sélectionné pour la modélisation de la propagation des ondes dans un fluide. Une variable  $p$ , la pression acoustique dans le fluide, est définie. Puisque COMSOL a un formalisme spécial pour le module EDP dans le domaine temporel qui donne l'expression de la pression sous la forme suivante,

$$e_a \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} + d_a \frac{\partial p}{\partial t} + \nabla(-c\nabla p - \alpha p + \gamma) + \alpha p + \beta \nabla p = f \quad (\text{A.3})$$

il faut identifier les deux expressions (équation A.3) et (équation 3.19), pour définir les paramètres inconnus. Nous obtenons  $e_a$  en tant que densité  $\rho$  (ex.  $e_a = 1000 \text{kg.m}^{-3}$  pour l'eau),  $c$  en tant que module d'incompressibilité du fluide  $\frac{1}{\chi}$ , et tous les autres coefficients, y compris  $d_a, a, \alpha, \beta, \gamma$  et  $f$  sont nuls.

### A.3.2 Modèle de source d'excitation

Afin de générer une onde acoustique (longitudinale et/ou transversale) dans la structure, une différence de potentiel électrique doit être appliquée aux faces des couches piézoélectriques. Cette impulsion électrique est définie dans le domaine temporel comme :  $s(t) = \sin(2\pi F t)$  ( $0 < t < T$ )  $T = \frac{1}{F}$  avec une fréquence  $F$  de 1GHz.

Selon le formalisme de COMSOL, la source peut être chargée soit en tant qu'une force de volume ou en tant qu'une force de surface (déplacements) aux frontières. Dans le solide, ces forces correspondent au chargement exprimé dans le sous-domaine ou dans les limites du module "Déformations planes", alors que dans le fluide, elles correspondent à  $f$  dans le sous-domaine ou à  $g$  utilisant les conditions aux limites de Neumann (ou  $r$  avec une condition de Dirichlet).

$$n(c\nabla p) = g \text{ sur } \partial\Omega \quad (\text{A.4})$$

(Conditions de Neumann)

$$hp = r \text{ sur } \partial\Omega \quad (\text{A.5})$$

(Conditions de Dirichlet)

$\Omega$  étant le domaine de calcul,  $\partial\Omega$  la limite du domaine et  $\vec{n}$  le vecteur unitaire normal à  $\partial\Omega$ . L'équation A.5 doit être satisfaite dans  $\Omega$  et les équations (Équation A.4) et (Équation A.5) doivent être prises en compte sur  $\partial\Omega$ .

La relation liant la pression au champ de déplacement dans le fluide est donnée par :

$$\vec{\text{grad}}(p) = -\rho \times \left( \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} \right) = \rho \times \omega^2 \times U \quad (\text{A.6})$$

Ceci permet d'écrire les conditions aux limites mécaniques selon la forme suivante :

$$n.T = -p \quad \text{côté solide} \quad (A.7)$$

$$n.(c\nabla p) = c.\rho.a_n \quad \text{côté fluide}$$

Où  $T$  est le tenseur des contraintes,  $n$  le vecteur unitaire normal à  $\partial\Omega$  et dirigé vers l'extérieur (Figure A.2) et  $p$  la pression du fluide, et,  $a_n$  est l'accélération normale de la particule du solide exprimée comme suit :  $-a_n = utt*nx\_solide + vtt*ny\_solide$  (notation de COMSOL). Expression dans laquelle  $u$  est la composante du déplacement suivant  $x$ ,  $v$  la composante du déplacement suivant  $y$ ,  $utt$  et  $vtt$  les dérivées seconde de  $u$  et  $v$  respectivement ( $-a = \frac{\partial^2 u_x}{\partial t^2} + \frac{\partial^2 u_y}{\partial t^2}$ ).

D'autre part, la condition de Neumann est utilisée pour coupler le fluide et le solide sous la forme analytique suivante :  $-c*\rho*(utt*nx\_solide + vtt*ny\_solide)$  avec comme exemple  $c_{eau} = 2,2.10^9$ .

Par contre, du côté solide, les conditions aux limites sont définies en tant que charge distribuée ayant les expressions suivantes :

$$F_x = -p*nx\_solid \quad (A.8)$$

$$(F_x = -p_x)$$

$$F_y = -p*ny\_solid \quad (A.9)$$

$$(F_y = -p_y)$$

à noter que, aux interfaces solide/solide, les conditions aux limites sont satisfaites par le principe de la continuité mécanique.

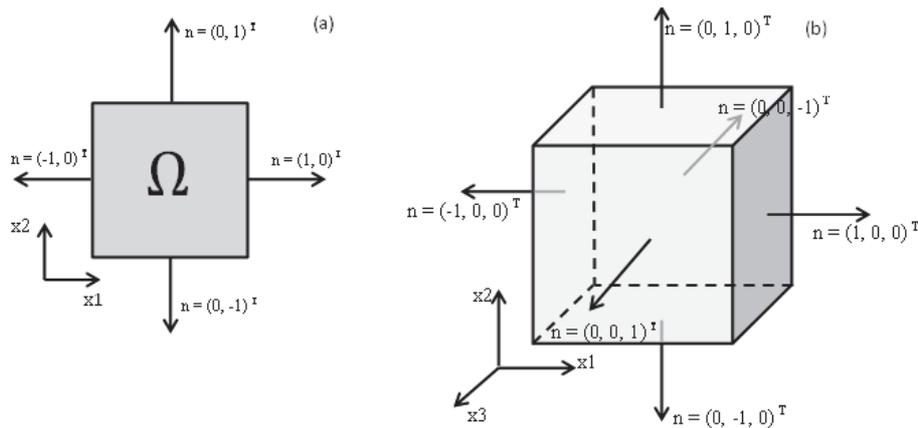


FIGURE A.2 – Vecteur unitaire sur  $\partial\Omega$  : (a) modèle 2D ; (b) modèle 3D.

### A.3.3 Maillage

Dans l'analyse des éléments finis, le domaine de résolution est discrétisé en sous domaines appelés éléments. Ces éléments sont les briques élémentaires dont le maillage va représenter le système géométrique à simuler. Les éléments sont des primitives géométriques composant plusieurs nœuds, la figure A.3 représente des exemples d'éléments classiques qu'on rencontre généralement dans le maillage éléments finis [86].

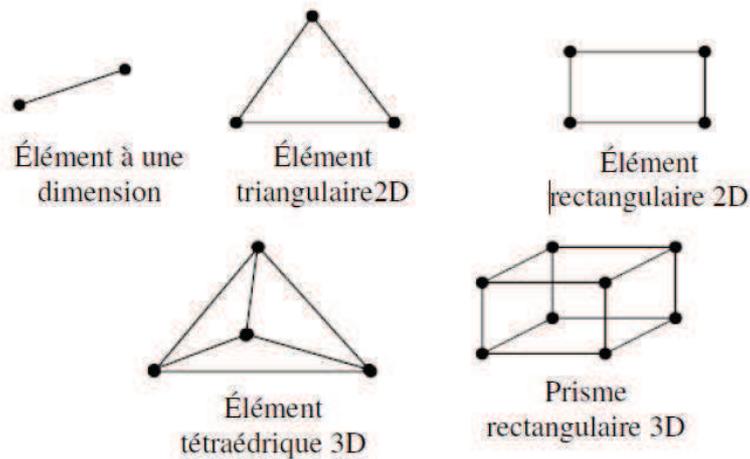


FIGURE A.3 – Exemple d'éléments de maillage éléments finis.

Généralement, toute exploitation d'une solution numérique suppose avant tout qu'elle soit consistante et stable. Ces deux propriétés sont conditionnées par le choix d'un maillage adéquat. Dans notre cas, le maillage quadrangle structuré semble être le mieux adapté à nos structures.

## A.4 Quantification des grandeurs acoustiques

### A.4.1 Propagation des ondes longitudinale et transversale

**Caractéristiques géométriques :**

La figure A.4 illustre une des géométries étudiées ainsi que les dimensions d'un modèle de base considéré dans notre étude. Le milieu de propagation est un solide anisotrope de silicium ayant une largeur de  $200 \mu m$  et une hauteur de  $80 \mu m$ . Le transducteur est du niobate de lithium de largeur  $50 \mu m$  et d'épaisseur  $3,7 \mu m$ , sur lequel nous appliquons une tension de forme sinusoïdale ;  $\sin(2\pi f t)$  ( $0 < t < T$ ) avec  $f=1GHz$ . Il est positionné sur la partie centrale de la face inférieure du substrat en silicium.

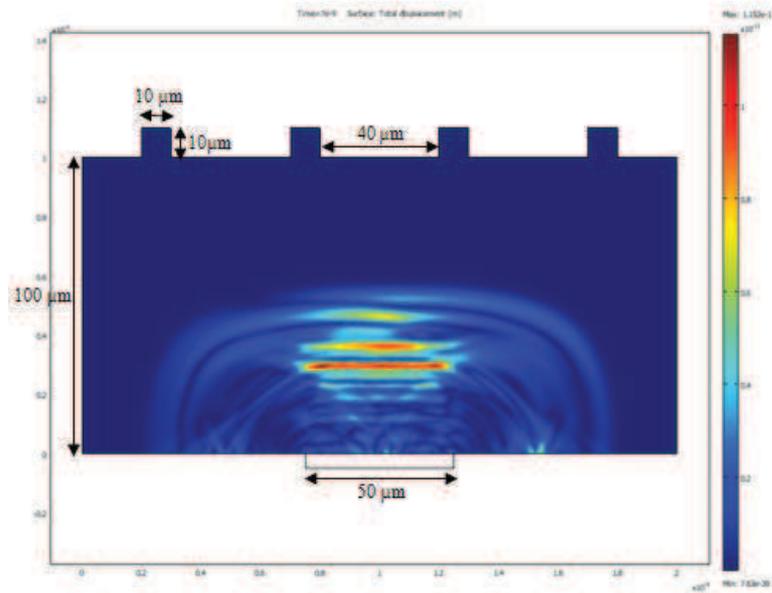


FIGURE A.4 – 1ère géométrie simulée. Propagation des ondes longitudinale et transversale.

La figure A.4 montre le champ de propagation (sous forme de champ de déplacement  $u_y$ ) des ondes dans le silicium avec un retard d'environ  $7.10^{-9}$ s de la source (Niobate), soit l'équivalent de 7 périodes pour une fréquence de 1 GHz.

Cette figure ne met pas en évidence les différents types d'ondes se propageant dans la structure.

Pour remédier à ce problème, nous avons choisi de générer soit une onde longitudinale ou une transversale et ceci par un choix des paramètres acoustiques de la source (e.g. coupe  $Y + 36^\circ$  (L) ou  $Y + 163^\circ$  (T)). En effet, le Niobate de Lithium permet par le choix de la coupe cristalline du matériau de privilégier la génération d'un seul mode[58]

La figure A.5 montre l'importance du choix des paramètres acoustiques pour améliorer les résultats. Dans ce cas nous avons privilégié [87] l'onde longitudinale avec une coupe  $Y + 36^\circ$  du transducteur. Par comparaison à la figure A.4, sur cette figure nous pouvons identifier, d'une manière beaucoup plus claire, l'onde quasi longitudinale, l'onde quasi transversale, l'onde de tête, les ondes de surface. Donc, le choix de générer un seul type d'onde est justifié.

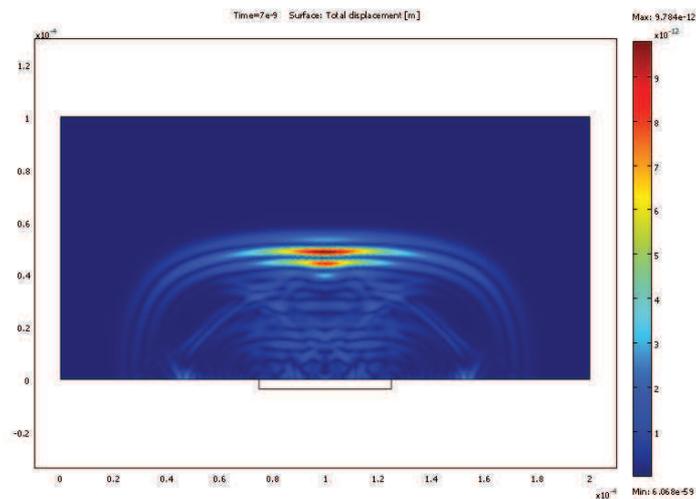


FIGURE A.5 – Propagation d'une onde longitudinale.

En favorisant cette fois l'onde transversale avec une coupe  $Y + 163^\circ$ , la figure A.6 nous révèle que la grande majorité de l'énergie est confinée dans l'onde quasi transversale. Nous observons, par contre, la contribution d'une onde quasi longitudinale ayant une vitesse plus grande que l'onde quasi transversale ( $v_L > v_T$ ).

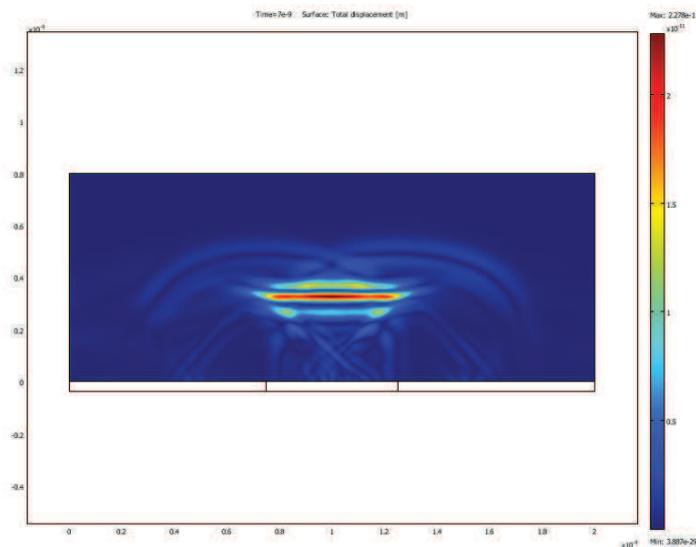


FIGURE A.6 – Propagation d'une onde transversale.

#### A.4.2 Cas réel : Interface substrat/eau avec une surface microtexturée

Dans le but de montrer l'influence de la géométrie de la rugosité de surface sur l'onde réfléchie, nous avons étudié plusieurs géométries avec des piliers de taille contrôlée. La figure A.7 illustre les dimensions (des éléments) prises en compte, soit :

1. Un solide anisotrope de silicium ayant une largeur de  $200 \mu m$  et une hauteur de  $80 \mu m$  qui présente le domaine de propagation.

2. Une surface microtexturée par un motif en piliers de dimensions :  $a$ ,  $b$  et  $h$ . Ces paramètres étant respectivement la largeur, l'espacement et la hauteur des piliers.
  3. Le transducteur de niobate de lithium (largeur =  $50 \mu\text{m}$ , hauteur =  $3,7 \mu\text{m}$ ) sur lequel une tension de  $\sin(2\pi Ft)$  avec  $F=1\text{GHz}$  est appliquée. Il est situé dans la partie centrale de la face inférieure du silicium.
- Un maillage quadrangle permettant d'avoir une répartition plus homogène a été choisi. Il est formé d'éléments carrés de côté  $0,5 \mu\text{m}$ .

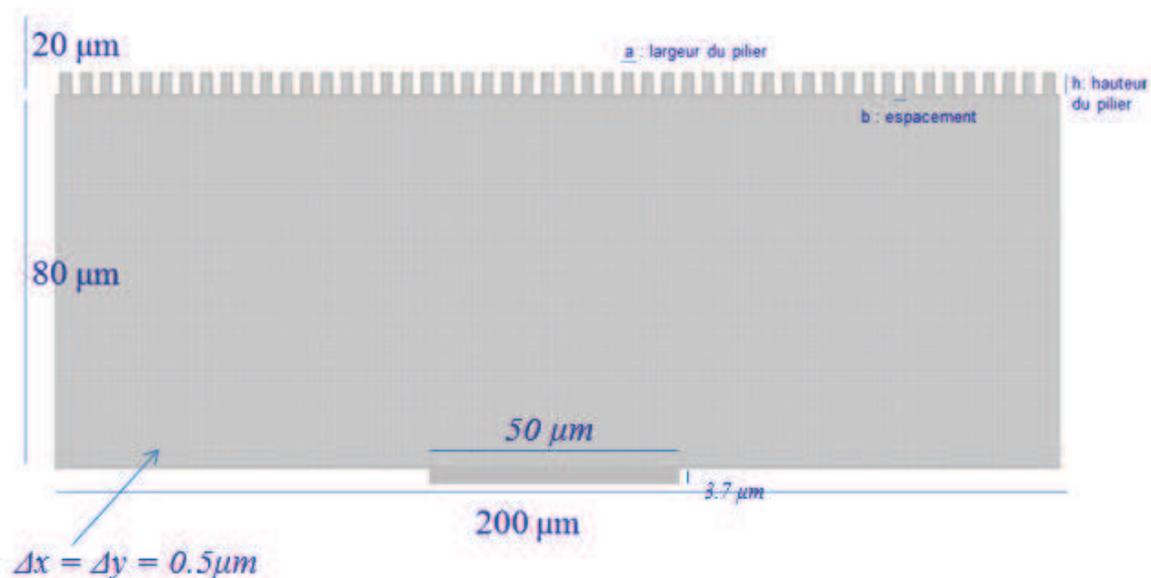


FIGURE A.7 – Géométries du modèle.

Deux cas de générations d'ondes ont été considérés : une onde longitudinale et une onde transversale. Pour estimer l'onde acoustique à l'interface, trois configurations ont été étudiées :

1. L'état Wenzel où la goutte épouse la surface du solide ;
2. l'état Cassie pour lequel la goutte est suspendue par le sommet des aspérités ;
3. l'état intermédiaire pour lequel la goutte s'effondre à mi-hauteur des piliers (Figure A.8).

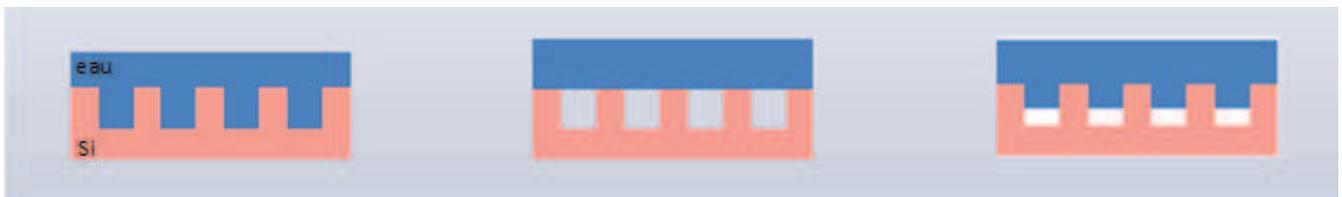


FIGURE A.8 – Configurations étudiées.

Les propriétés des ondes ultrasonores ont été étudiées par le biais des paramètres spatio-temporels suivants : le déplacement, la vitesse, la pression, etc.

En outre, nous pouvons visualiser instantanément le champ acoustique dans le silicium.

## A.5 Validation du modèle

Cette étape passe par la quantification de l'énergie avant et après la réflexion à l'interface.

Nous savons que, la direction du vecteur de Poynting indique la direction de la propagation de l'énergie d'une onde et dont le module indique la densité de puissance véhiculée par cette onde. Soit :

$$P_i = -\sigma_{ij} v_j \quad (\text{A.10})$$

Où  $\sigma_{ij}$  sont les contraintes et  $v_j$  le champ des vitesses.

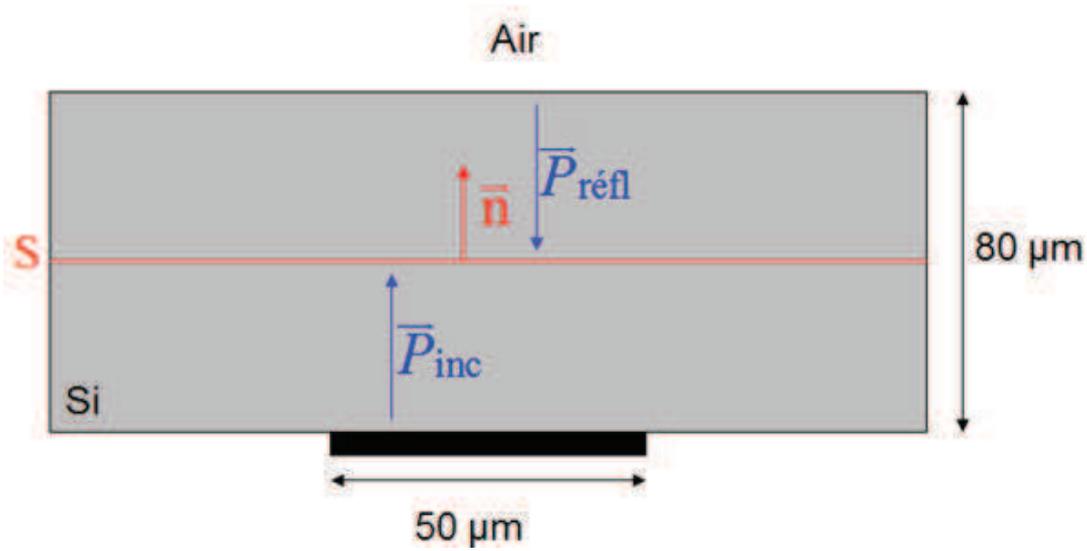


FIGURE A.9 – Représentation du vecteur de Poynting.

Par définition, la puissance transportée par un champ acoustique à travers une surface "S" est le flux du vecteur de Poynting, exprimée par :

$$P_{ac} = \int \int_S \vec{P} \cdot d\vec{S} = \int \int_S \vec{P} \cdot \vec{n} dS \quad (\text{A.11})$$

Pour vérifier la conservation de l'énergie sur l'interface, il faut montrer que :

$$\int \int_S \vec{P}_{inc} \cdot \vec{n} dS + \int \int_S \vec{P}_{refl} \cdot \vec{n} dS = 0 \quad (\text{A.12})$$

Avec  $\vec{P}_{inc}$  le vecteur de Poynting à l'incidence et  $\vec{P}_{refl}$  celui de l'onde réfléchie.

Dans notre cas, la puissance acoustique par unité de largeur du transducteur est obtenue en intégrant

l'expression du vecteur de Poynting sur la largeur du substrat dans un plan normal à la direction de propagation.

Le flux du vecteur de Poynting cumulé au cours du temps (Figure A.11) atteint son maximum sur une fenêtre temporelle  $\Delta t$ ;  $\frac{50}{200} \leq \Delta t \leq \frac{180}{200}$ ; avant de diminuer asymptotiquement vers zéro. D'où la conservation de l'énergie.

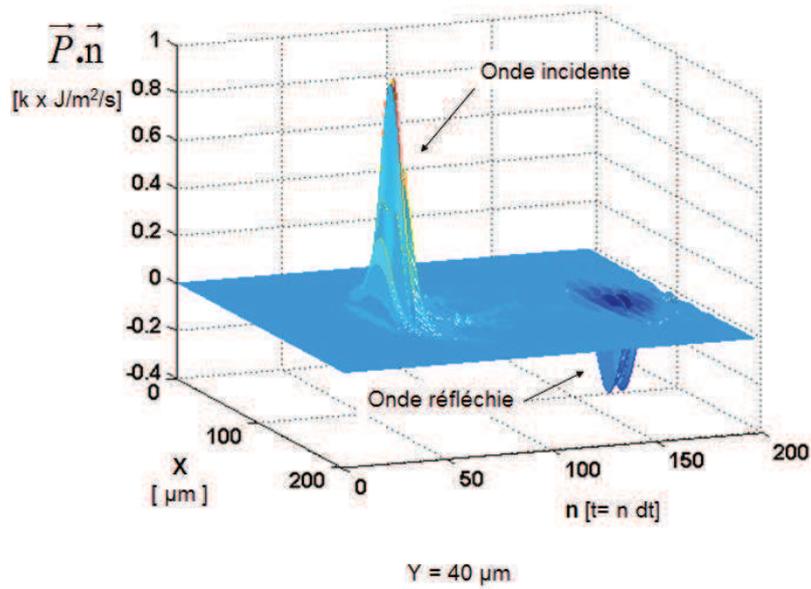


FIGURE A.10 – Lignes de champ du vecteur de Poynting.

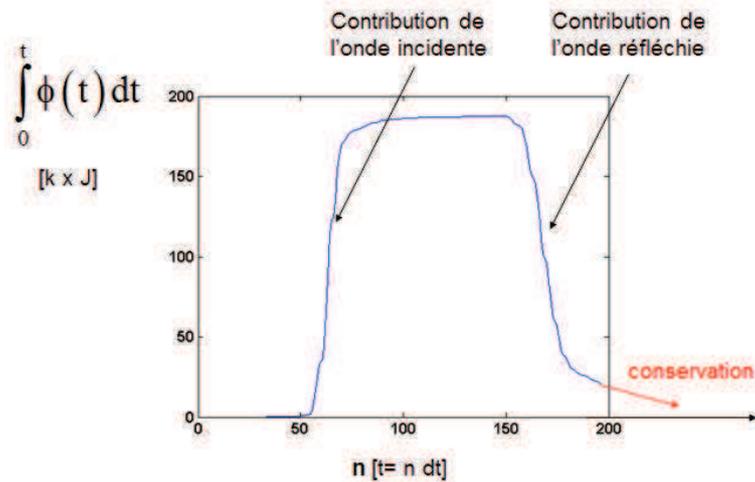


FIGURE A.11 – Flux du vecteur de Poynting cumulé au cours du temps.

## A.6 Résultats

Deux approches ont été abordées pour quantifier les coefficients de réflexion  $R$  et de transmission  $T$ . Une approche temporelle et une autre fréquentielle. Dans la suite, nous avons adopté l'approche temporelle.

Par un échantillonnage temporel de la solution de l'équation de propagation, le premier paramètre considéré en composante longitudinale, est la composante du déplacement suivant l'axe des  $y$  en fonction du temps, à une distance de  $10 \mu m$  de la source (Figure A.12).

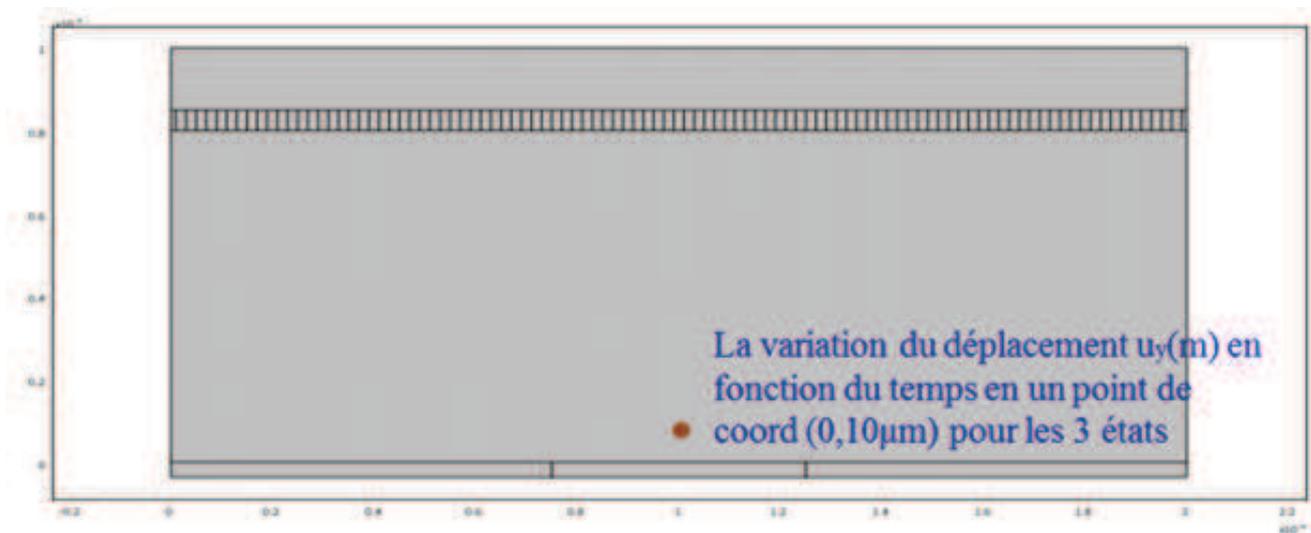


FIGURE A.12 – Premier paramètre étudié.

La figure A.13 montre plusieurs réponses temporelles, selon l'état physique de l'interface.

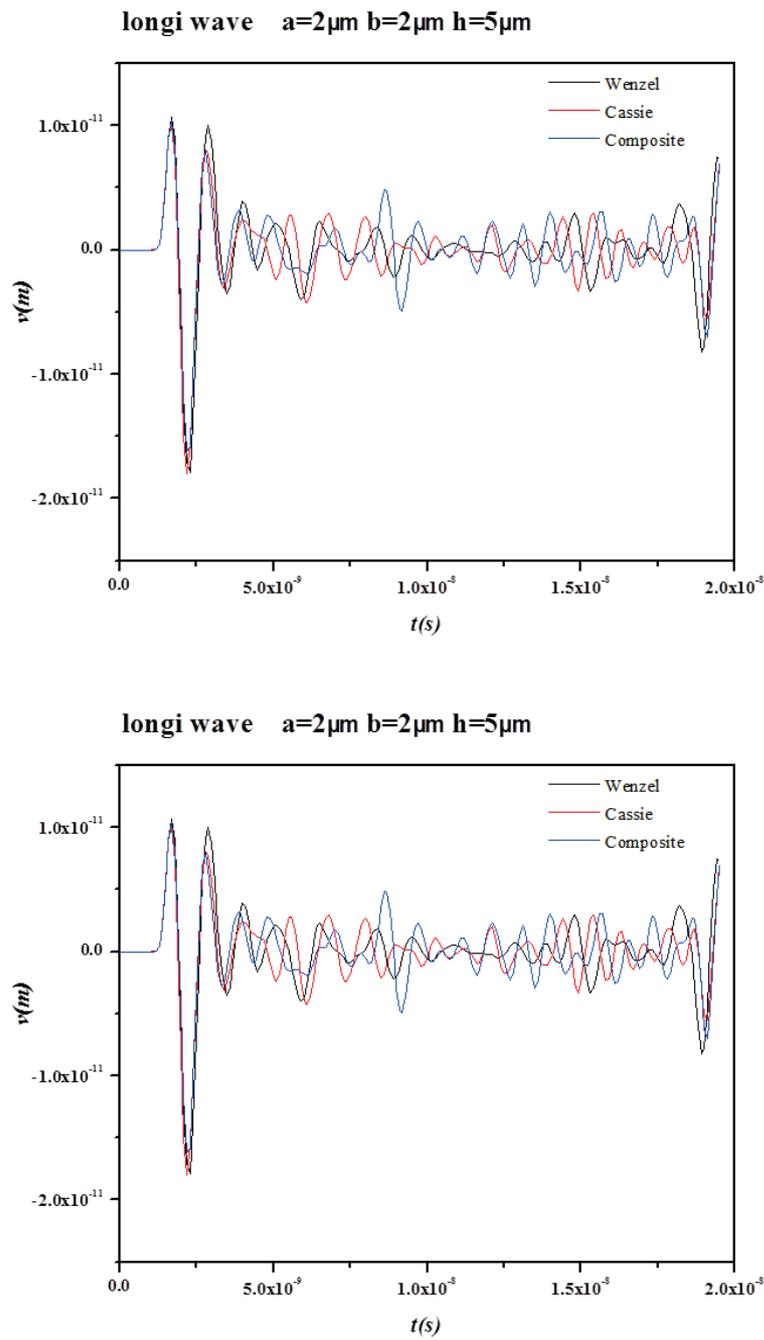


FIGURE A.13 – Déplacement suivant l'axe  $y$  en fonction du temps au point  $(x = 0, y = 10 \mu m)$  pour deux géométries étudiées.

Les courbes de la figure A.14 montrent à la fois l'effet de l'amélioration apportée sur la résolution par le choix d'un pas fin d'échantillonnage temporel et la sensibilité à l'état physique des interfaces. Nous pouvons constater l'intérêt de ce choix par la réponse, obtenue non bruitée par rapport à l'application précédente.

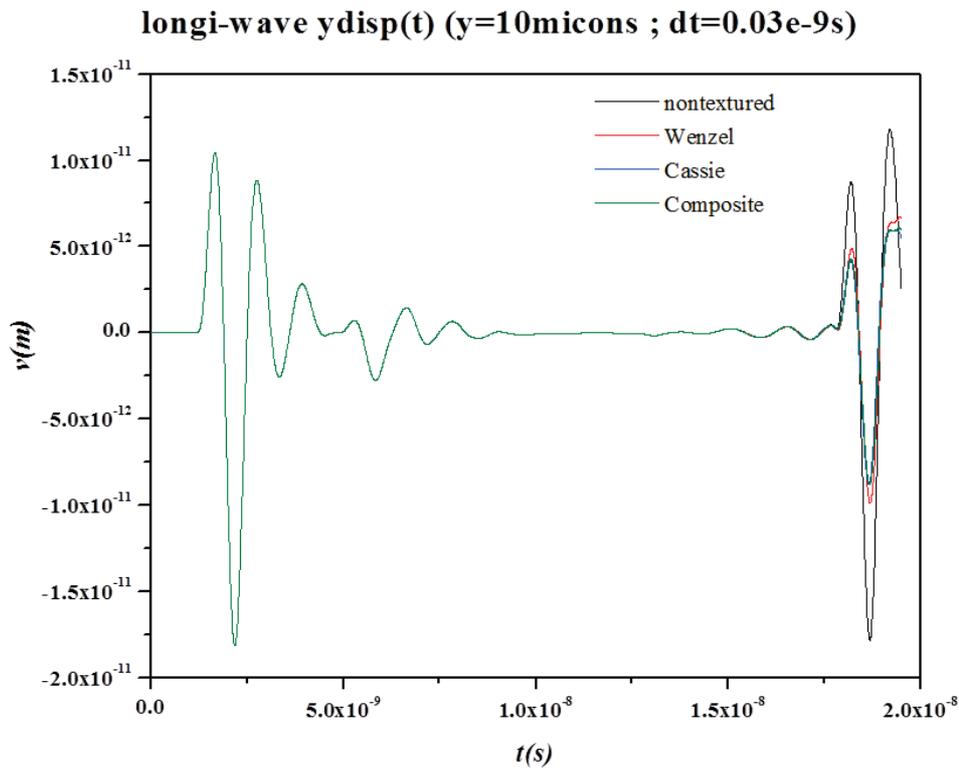


FIGURE A.14 – Déplacement suivant l'axe y en fonction du temps au point  $(0, 10\mu m)$  pour un pas de calcul 30 fois plus petit.

Par ailleurs, vu la complexité de la mise en œuvre du modèle par éléments finis dans le cas d'une configuration qui nécessite un maillage ultra fin, une mémoire et un temps de calcul prohibitifs, nous nous sommes orientés vers une étude par différences finies. Basée sur la résolution des équations différentielles de propagation dans le domaine temporel, cette approche est apparue beaucoup plus prometteuse.

# Bibliographie

- [1] J.W. McBAIN and D.G. HOPKINS. On adhesives and adhesive action. *Journal of Physical Chemistry*, 29 (2) :188–204, 1925.
- [2] S.S. Voyutskii. Autoadhesion and adhesion of high polymers. *Wiley-Interscience and Sons : New York*, 405 :53, 1963.
- [3] S.Buchan and W.D.Rae. Chemical nature of the rubber to glass bond. *Trans.Inst.Rubb.Ind.*, 20 :205–216, 1946.
- [4] K.L.Mittal. *Role of the molecular and electrostatic forces in the adhesion of polymers*. American Chemical Society, 1983.
- [5] H. Schonhorn and L.H. Sharpe. Surface tension of molten polypropylene. *Chemical and engineering news*, 15 :67, 1963.
- [6] David Quéré, José Bico, and Denis Richard. Le mouillage nul (ou presque). *Bulletin de la SFP*, 125 :8, 2000.
- [7] A.Nakajima, K.Hashimoto, and T.Watanabe. Recent studies on super-hydrophobic films. *Monatsh Chem*, 32 :31–41, 2001.
- [8] L.Feng, S.H.Li, Y.S.Li, H.J.Li, L.J.Zhang, J.Zhai, Y.L.Song, B.Q.Liu, L.Jiang, and D.B.Zhu. Super-hydrophobic surfaces : from natural to artificial. *Adv. Mater*, 14 :1857–1860, 2002.
- [9] R.Blossey. Self-cleaning surfaces-virtual realities. *Nature Materials*, 2(5) :301–306, 2003.
- [10] H.Y.Erbil, A.L.Demirel, Y.Avci, and O.Mert. Transformation of a simple plastic into a superhydrophobic surface. *Science*, 299(5611) :1377–1380, 2003.
- [11] R.Fürstner, W.Barthlott, C.Neinhuis, and P.Walzel. Wetting and self-cleaning properties of artificial superhydrophobic surfaces. *Langmuir*, 21 :956–961, 2005.
- [12] A.Hozumi and O.Takai. Preparation of ultra-water-repellent films by microwave plasma-enhanced cvd. *Thin Solid Films*, 303 :222–225, 1997.
- [13] M.Miwa, A.Nakajima, A.Fujishima, K.Hashimoto, and T.Watanabe. Effects of the surface roughness on sliding angles of water droplets on superhydrophobic surfaces. *Langmuir*, 16 :5754–5760, 2000.
- [14] A.Nakajima K.Abe K.Hashimoto T.Watanabe. Preparation of hard superhydrophobic films with visible light transmission. *T. Thin Solid Films*, 376 :140–143, 2000.
- [15] J.Bico, C.Marzolin, and D.Quéré. Pearl drops. *Europhys. Lett*, 47 :220, 1999.
- [16] Z.Yoshimitsu A.Nakajima T.Watanabe K.Hashimoto. Effects of surface structure on the hydrophobicity and sliding behavior of water droplets. *Langmuir*, 18(15) :5818–5822, 2002.

- [17] B.He, N.A.Patankar, and J.Lee. Multiple equilibrium droplet shapes and design criterion for rough hydrophobic surfaces. *Langmuir*, 19 :4999–5003, 2003.
- [18] A.Lafuma D.Quéré. Superhydrophobic states. *Nat. Mater*, 2 :457–460, 2003.
- [19] J.Jopp, H.Grüll, and R.Yeruslami-Rozen. Wetting behavior of water droplets on hydrophobic microtexturés of comparable size. *Langmuir*, 20 :10015–10019, 2004.
- [20] J.Ou, J.B.Perot, and J.P.Rothstein. Laminar drag reduction in microchannels using ultrahydrophobic surfaces. *P. Phys. Fluids*, 16 :4635, 2004.
- [21] M.Callies Y.Chen F.Marty A.Pépin D.Quéré. Microfabricated textured surfaces for super-hydrophobicity investigations. *Microelectron.Eng*, 100 :78–79, 2005.
- [22] R.D.Hazlett. Fractal applications : Wettability and contact angle. *J. Colloid Interface Sci*, 137 :527 – 533, 1990.
- [23] T.Onda S.Shibuichi N.Satoh and K.Tsujii. Super-water-repellent fractal surfaces. *Langmuir*, 12(9) :2125–2127, 1996.
- [24] H.E.Jeong, S.H.Lee, J.K.Kim, and K.Y.Suh. Nanoengineered multiscale hierarchical structures with tailored wetting properties. *Langmuir*, 22(4) :1640–1645, 2006.
- [25] H.Li, X.Wang, Y.Song, Y.Liu, Q.Li, L.Jiang, and D.B.Zhu. Super- amphiphobic aligned carbon nanotube films. *Angewandte. Chemie*, 113(9) :1793–1796, 2001.
- [26] K.K.S.Lau, J.Bico, K.B.K.Teo, M.Chhowalla, G.A.J.Amaratunga, W.I.Milne, G.H.McKinley, and K.K.Gleason. Superhydrophobic carbon nanotube forests. *Nano Lett.*, 3(12) :1701–1705, 2003.
- [27] J.-G.Fan, X.-J.Tang, and Y.-P.Zhao. Water contact angles of vertically aligned si nanorod arrays. *Nanotechnology*, 15 :501–504, 2004.
- [28] S.Tsoi, E.Fok, J.C.Sit, and J.G.C.Veinot. Preparation of alkyl-surface functionalized germanium quantum dots via thermally initiated hydrogermylation. *Langmuir*, 20 :10771–10774, 2004.
- [29] T.N.Krupenkin J.A.Taylor T.M.Schneider S.Yang. From rolling ball to complete wetting : The dynamic tuning of liquids on nanostructured surfaces. *Langmuir*, 20 :3824–3827, 2004.
- [30] Dossier olympiades de la physique 2006 " expériences autour de la goutte".
- [31] R.N.Wenzel. Resistance of solid surfaces to wetting by water. *Ind. Eng. Chem.*, 28 (8) :988–944, 1936.
- [32] A.B.D.Cassie and S.Baxter. Wettability of porous surfaces. *Trans. Faraday Soc*, 40 :546–551, 1944.
- [33] CASELLAS.Sébastien CLERE.Guillaume. Surfaces très hydrophobes ou très hydrophiles : Préparation et application. Master's thesis, Université Nice, 2006/2007.
- [34] W.Barthlott C.Neinhuis. Hydrophobic surface allows self-cleaning : sacred lotus. *Planta*, 202 :1–8, 1997.
- [35] J.Berthier, P.Dubois, P.Clementz, P.Claustre, C.Peponnet, and Y.Fouillet. Actuation potentials and capillary forces in electrowetting based microsystems. *Sens Actuators A*, 5346 :1–9, 2006.
- [36] Renaud.Dufour, Maxime.Harnois, Yannick.Coffinier, Vincent.Thomy, Rabah.Boukherroub, and Vincent.Senez. Engineering sticky superomniphobic surfaces on transparent and flexible pdms substrate. *Langmuir*, 26(22) :17242–7, 2010.

- [37] Y.Y.Yan, N.Gao, and W.Barthlott. Mimicking natural superhydrophobic surfaces and grasping the wetting process : A review on recent progress in preparing superhydrophobic surfaces. *Advances in Colloid and Interface Science*, 169 (2) :80–105, 2011.
- [38] C.W.Extrand. Model for contact angles and hysteresis on rough and ultraphobic surfaces. *Langmuir*, 18 (21) :7991–7999, 2002.
- [39] C.W.Extrand. Criteria of ultraphobic surfaces. *Langmuir*, 20 (12) :5013–5018, 2004.
- [40] Jiadao.Wang and Darong.Chen. Criteria for entrapped gas under a drop on an ultrahydrophobic surface. *Langmuir*, 24 (18) :10174–10180, 2008.
- [41] Laura.Barbieri, Estelle.Wagner, and Patrik.Hoffmann. Water wetting transition parameters of perfluorinated substrates with periodically distributed flat-top microscale obstacles. *Langmuir*, 23 (4) :1723–1734, 2007.
- [42] Neelesh.A. Patankar. Hysteresis with regard to cassie and wenzel states on superhydrophobic surfaces. *Langmuir*, 26 (10) :7498–7503, 2010.
- [43] Juan.C. Tuberquia, Won.S.Song, and G.Kane.Jennings. Investigating the superhydrophobic behavior for underwater surfaces using impedance-based methods. *Anal. Chem*, 83 :6184–6190, 2011.
- [44] S.Moulinet and D.Bartolo. Life and death of a fakir droplet : Impalement transitions on superhydrophobic surfaces. *Eur.Phys. J.E*, 24 :251–260, 2007.
- [45] Helmut.Rathgen and Frieder.Mugele. Microscopic shape and contact angle measurement at a superhydrophobic surface. *Faraday Discuss*, 146 :49–56, 2010.
- [46] G.McHale, P.Roach, C.R.Evans, N.J.Shirtcliffe, S.J.Elliott, and M.I.Newton. Sensor response of superhydrophobic quartz crystal resonators. *Frequency Control Symposium, IEEE International*, pages 698–704, 2008.
- [47] Mohammadi.Ouaftouh. *Modélisation de la propagation ultrasonore au niveau de joints collés : application au contrôle de la qualité d'adhérence*. PhD thesis, Université de Valenciennes et du Hainaut Cambrésis, 1990.
- [48] Dalmas.Davy, Benmedakhene.Salim, Richard.Caroline, Laksimi.Abdelouahed, Beranger.Gérard, and Gregorie.Thierry. Characterization of adherence and cracking within coated materials by an acoustic emission method : application to a wc-co coating on a steel substrate. *Serie Iic, chimie*, 4 (5) :345–350, 2001.
- [49] R.Piotrkowski, A.Gallego, E.Castro, M.T.Garca-Hernandez, and J.E.Ruzzante. Ti and cr nitride coating/steel adherence assessed by acoustic emission wavelet analysis. *NDT&E International*, 38 (4) :260–267, 2005.
- [50] A.R.Oskouei, M.Ahmadi, and M.Hajikhani. Wavelet-based acoustic emission characterization of damage mechanism in composite materials under mode i delamination at different interfaces. *eXPRESS Polymer Letters*, 3 (12) :804–813, 2009.
- [51] M.Eaton, M.May, C.Featherston, K.Holford, S.Hallet, and R.Pullin. Characterisation of damage in composite structures using acoustic emission. *Journal of Physics :ConferenceSeries*, 305 :012086, 2011.
- [52] N.Wang, O.I.Lobkis, and S.I.Rokhlin. Ultrasonic characterization of interfaces in composite bonds. *AIP Conference. Proceedings*, 1335 :1079–1086, 2010.

- [53] Kar Abhijit, Palit Sagar S, and Ray Ajoy K. Characterization of the ceramic-metal brazed interface using ultrasonic technique. *Materials Letters*, 61 (19-20) :4169–4172, 2007.
- [54] LI.Ji-cheng, LIN.Li, LI.Xi-meng, LI.Guang, and LEI.Ming-kai. Ultrasonic characterization of modified cr2o3 coatings by reflection coefficient spectroscopy. *Trans. Nonferrous Met. Soc China*, 20 :418–424, 2010.
- [55] A.Baltazar, J-Y.Kim, and S.I.Rokhlin. Ultrasonic determination of real contact area of randomly rough surfaces in elastoplastic contact. *REVISTA MEXICANA DE FISICA*, 52 (1) :37–47, 2005.
- [56] W.B.Lawrence. Seismic waves and the slinky : A guide for teachers. <http://web.ics.purdue.edu/braile/edumod/slinky/slinky.htm>.
- [57] M.F.M.Osborne et S.D.Hart. Transmission, reflection, and guiding of an exponential pulse by a steel plate in water. *I.Theory., J.Acoust. Soc.Am.*, 17(1) :1–18, 1946.
- [58] Daniel.Royer and Eugène.Dieulesaint. *Ondes élastiques dans les solides, Tom1 Propagation libre et guidée*. 1996.
- [59] N.Guo J.Abdul B.S.Wong. Ultrasonic characterization of the interface between a die attach adhesive and a copper leadframe in ic packaging. *Journal of Adhesion Science and Technology*, 16( 9) :1261–1279(19), 2002.
- [60] J.K.Kim, D.Z.Wo, L.M.Zhou, H.T.Huang, K.T.Lau, and M.Wang. Characterization methodology of the interface in multilayer composites. *Key Engineering Materials*, 334 - 335 :1041–1044, 2007.
- [61] LIU.Songping, LIU.Feifei, GUO.Enming, LI.Legang, and CAO.Zhenghua. Ultrasonic imaging for bulk microstructure of carbon fiber woven composites. *Acta Materiae Compositae Sinica*, pages 2008–03, 2008.
- [62] E.P.Karabulut and M.I.Aksun. Characterization of finite photonic crystals with defects. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 47 (3) :406 – 413, 2011.
- [63] C. Chree. The equations of an isotropic elastic solid in polar and cylindrical coordinates, their solutions and applications. *Trans.Cambridge Phil. Soc.*, 14 :250–369, 1889.
- [64] J.Zemanek. An experimental and theoretical investigation of elastic wave propagation in a cylinder. *J.Acoust.Soc.Am*, 51 (1) :265–283, 1972.
- [65] Puckett. *An experimental and theoretical investigation of axially symmetric wave propagation in thick cylindrical waveguides*. PhD thesis, University of Maine, 2004.
- [66] D. Bancroft. The velocity of longitudinal waves in cylindrical bars. *Phys.Rev*, 59 :588–593, 1941.
- [67] K.Yee. Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell’s equations in isotropic media. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, 14 (3) :302–307, 1966.
- [68] M.Kafesaki, M.M.Sigalas, and N.Garcia. Photonic crystals and light localization in the 21st century. *ed C M Soukoulis (Dordrecht : Kluwer)*, page 69, 2001.
- [69] B.Merheb P.A.Deymier M.Jain M.Aloshyna-Lesuffleur S.Mohant A.Berker and R. W.Greger. Elastic and viscoelastic effects in rubber/air acoustic band gap structures : A theoretical and experimental study. *JOURNAL OF APPLIED PHYSICS*, 104 :064913, 2008.
- [70] B.Merheb, P.A.Deymier, K.Muralidharan, J.Bucay, M.Jain, M.Aloshyna-Lesuffleur, R.W.Greger, S.Mohanty, and A.Berker. Viscoelastic effect on acoustic band gaps in polymer-fluid composites. *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng*, 17 (7) :075013, 2009.

- [71] A.Montaser and D.W.Golightly (Eds.). Inductively coupled plasmas in analytical atomic spectrometry. *VCH Publishers Inc. New York*, page 1017 pages, 1992.
- [72] P.J.Hesketch, C.Ju, S.Gowda, E.Zanoria, and S.Danyluk. Surface free energy model of silicon anisotropic etching. *J. Electrochem. Soc.*, 140 :1080, 1993.
- [73] P.H.Nussbaum, R.Volkel, H.P.Herzig, M.Eisner, and S.Haselbeck. Design, fabrication and testing of microlens arrays for sensors and microsystems. *Pure appl. Opt.*, 6 :617–636, 1997.
- [74] R.A.Lemons and C.F.Quate. Acoustic microscopy-scanning version. *Appl.Phys. Lett*, 24 (4) :163–165, 1974.
- [75] K.Yamada, H.Shimizu, and M.Minakata. Planer structure focusing lens for operation at 200 mhz and its application to the reflection-mode acoustic microscope. *IEEE Trans. Ultrason. Symp.*, pages 745–748, 1986.
- [76] B.T.Khuri-Yacoub. Scanning accoustic microscopy. *Ultrasonics*, 31 (5) :361–372, 1993.
- [77] Y.Deblock, P.Campistron, M.Lippert, and C.Bruneel. Electrical characterization of plate piezoelectric transducers bonded to a finite substrate. *J. Acoust. Soc. Am.*, 111 (6) :2681–2685, 2002.
- [78] P.Campistron, J.Carlier, N.Saad, J.Gao M.Toubal, L.Dupont, G.Nassar, and B.Nongaillard. High frequency ultrasound, a tool for elastic properties measurement of thin films fabricated on silicon. *Advanced Materials Research*, 324 :277–281, 2011.
- [79] F.Mugele, A.Klingner, J.Buehrle, D.Steinhauser, and S.Herminghaus. Electrowetting : a convenient way to switchable wettability patterns. *J. Phys. : Condensed Matter*, 17 (9) :S559, 2005.
- [80] Vaibhav.Bahadur and Suresh.V.Garimella. Electrowetting-based control of static droplet states on rough surfaces. *Langmuir*, 23 (9) :4918–4924, 2007.
- [81] Vaibhav.Bahadur and Suresh.V.Garimella. Electrowetting-based control of droplet transition and morphology on artificially microstructured surfaces. *Langmuir*, 24 (15) :8338–8345, 2008.
- [82] G.Manukyan J.M.Oh D.van den ende R.G.H.Lammertink and F.Mugele. Electrical switching of wetting states on superhydrophobic surfaces : a route towards reversible cassie-to-wenzel transitions. *Physical Review Letters*, 106 (1) :014501, 2011.
- [83] R.J.Vrancken H.Kusumaatmaji K.Hermans O.Pierre-Louis C.W.M.Bastiaansen D.J.Broer. Fully reversible transition from wenzel to cassie-baxter states on corrugated superhydrophobic surfaces. *The Acs Journal Of Surfaces And Colloids*, 26(5) :3335–3341, 2010.
- [84] Comsol Multiphysics User’s guide Version 3.5a. Novembre 2008.
- [85] Inc. www.matlab.com The Mathworks.
- [86] Hakim.BENSAIDANE. Modélisation de systèmes micro-électromécaniques (mems) en régime dynamique par la méthode des éléments finis. Master’s thesis, Université MOULOUD MAMMERI, 2006.
- [87] Assane.NDIGUENE. *Contribution Au Développement de Microcomposants Pour La Caractérisation Ultrasonore En Canal Microfluidique Sur Silicium : Modélisation De La Propagation*. PhD thesis, Université de Valenciennes et du Hainaut Cambrésis, 2010.

## Abstract

Surfaces functionalization can change the wetting properties of the surface depending on the physico-chemical properties of fluids. We restricted our study to the characterization by acoustic method of microstructured silicon-fluid interfaces for which a physical etching of a network of small pillars was achieved. The properties of these interfaces depend on the geometry of the etched microtextures, the fluid properties and the interaction between the fluid and the surface. Our objective was to compare modeling and measurements of reflection coefficients of ultrasonic waves at these interfaces. A first stage of work was to model the reflection coefficient of an ultrasonic wave incident on a microtextured surface depending on the state of the liquid on the surface. Two specific physical states have been studied: The state where the liquid remains at the top of the pillars (Cassie state) and when the liquid penetrates in the network of pillars (Wenzel state). Two numerical models were developed: one based on finite element modeling using COMSOL Multiphysics and the second numerical model uses an explicit finite difference method.

The experimental technique is based on a method measuring the electrical reflection coefficient of an ultrasonic transducer according to the frequency using a high frequency network analyzer. Signal processing allows deducing the reflection coefficient at the interface.

The original results obtained demonstrate that an acoustic compression wave is sensitive to the state of a liquid on a surface microtextured.

Keywords: Acoustics, ultrasonic microsystems, wettability, interfaces, microtexturization.

## Résumé

La fonctionnalisation des surfaces permet d'en modifier leur comportement vis-à-vis des propriétés physico-chimiques de fluides. Nous avons restreint notre étude à la caractérisation par méthode acoustique des interfaces microstructurées silicium-fluide pour lesquelles une gravure physique d'un réseau de piliers de petites dimensions a été réalisée. Les propriétés de ces interfaces vis-à-vis des liquides dépendent de la géométrie des gravures, des propriétés du fluide et des conditions d'interaction du fluide avec la surface. Notre objectif a été de confronter des modèles de comportement en terme de mouillabilité de ces surfaces aux mesures des coefficients de réflexion des ondes ultrasonores. Une première étape du travail a consisté à modéliser le coefficient de réflexion d'une onde ultrasonore incidente sur une surface microtexturée en fonction de l'état du liquide sur la surface. Deux états physiques caractéristiques ont été étudiés : l'état où le liquide reste au sommet des piliers (état Cassie) et celui où le liquide pénètre dans le réseau de piliers (état Wenzel). Deux modèles numériques ont été développés : le premier repose sur la modélisation par éléments finis utilisant COMSOL MULTIPHYSICS et le second modèle numérique utilise une méthode explicite aux différences finies. La technique expérimentale est fondée sur une méthode de mesure du coefficient de réflexion électrique d'un transducteur ultrasonore haute fréquence à l'aide d'un analyseur de réseau, qui permet après traitement d'en déduire le coefficient de réflexion à l'interface. Les résultats originaux obtenus démontrent qu'une onde acoustique de compression est sensible à l'état d'un liquide sur une surface microtexturée.

Mots clés : Acoustique, microsystèmes ultrasonores, mouillabilité, interfaces, microtexturation.