



UNIVERSITÉ DE PROVENCE - AIX MARSEILLE I

THÈSE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE PROVENCE

Spécialité : Mécanique et physique des fluides

École doctorale : Physique, modélisation et sciences pour l'ingénieur

présentée par

Henri LHUISSIER

Nappes, trous, ligaments et gouttes

soutenue le 16 Février 2011 devant le jury composé de

Daniel	BONN	<i>rapporteur</i>
François	CHARRU	
Christophe	CLANET	
Yves	COUDER	<i>rapporteur</i>
Hamid	KELLAY	
Detlef	LOHSE	
Emmanuel	VILLERMAUX	<i>directeur de thèse</i>

Une thèse, vue au travers d'un manuscrit longuement réfléchi et plus ou moins conforme aux canons du pragmatisme scientifique, ça donne l'impression d'un long travail monacal, linéaire et sans surprises. . . alors qu'en fait c'est le résultat de l'influence hétéroclite de tout un tas de gens, au sein et autour d'un chouette laboratoire, avec qui j'ai passé beaucoup de bon temps ces dernières années.

Je tiens tout d'abord à remercier Emmanuel, scientifique plus que passionné, pour son optimisme sans bornes, son addiction à la compréhension et sa grande disponibilité. Je retiendrai particulièrement les discussions au tableau où l'on essaie de deviner avant la dernière ligne si l'empilement précaire d'hypothèses tous azimuts va s'écrouler ou non, l'absence de préjugés expérimentaux et la torture acharnée imposée aux manip jusqu'à ce qu'elles livrent une information.

Merci aux membres du jury et rapporteurs pour avoir pris la peine d'évaluer ce travail et de lire le manuscrit en détail.

Merci aussi à Jérôme, Nicolas, Benjamin, et Romain, expérimentateurs novateurs, qui étaient dans l'équipe à mon arrivée, m'ont appris les bases et m'ont aidé par la suite.

Merci à Jacky, Raymond, Mathieu, et Éric, les solutionneurs, pour la bonne humeur, pour avoir pris le temps de concevoir et réaliser les pièces nécessaires au fonctionnement des manip et pour leur expertise lorsqu'ils m'ont laissé l'opportunité de les réaliser moi-même. Sans l'éradiquer (à l'impossible nul n'est tenu), cela a sensiblement diminué l'utilisation du scotch.

Merci à Geoff pour sa stupéfiante efficacité et sa gentillesse à chaque fois que je l'ai dérangé pour un problème de logiciel.

Merci à Karine pour son zèle et sa bonne volonté à dénicher les plus anciennes et plus obscures publications.

Merci à Lucienne pour son accueil toujours sympa, qu'il s'agisse de missionner, réserver ou dépanner tout court.

Merci à Sophie, Saïda et Sarah qui m'ont beaucoup aidé pour le moment le plus important de la soutenance : le pot.

Merci à tous les autres sans qui le labo ne tournerait pas. J'en suis très conscient.

Merci à tous les permanents, thésards, stagiaires et postdocs passés ou présents que j'ai côtoyés et côtoie encore au jour le jour, que je ne citerai pas un à un car ils se reconnaîtront, mais à qui je suis très reconnaissant pour tous les moments vécus au labo ou ailleurs. Je garde un tas de très bon souvenirs de discussions de couloir, devant une manip, sur canapés, dans le bus ou autour d'une bière, de souvenirs de l'agréable routine des repas-café du midi et des séminaires, de souvenirs de pétanques, volley, footing dans la colline, ski, voile, escalade ou soirées. J'espère que ça n'est que le début.

Enfin comme une thèse ça déborde du labo, et que ça n'est surtout rendu possible que par tout ce qu'il y a autour, je profite de l'occasion pour remercier ceux qui sont en dehors de l'asile; les amis qui me ramènent fréquemment dans le même monde que tout le monde, la famille sans qui je ne serais pas arrivé jusque là et Vanessa à qui je dois tout le reste.

Table des matières

Introduction	7
1 Préambule : les films liquides	11
1.1 Sur le rôle des interfaces	12
1.2 Les ondes se propageant sur un film	13
1.3 Lorsqu'un <i>tensio-actif</i> est ajouté	15
1.3.1 Equilibres..	15
1.3.2 Rhéologie...	17
1.4 Formation et vieillissement des films	20
1.4.1 Formation	20
1.4.2 Drainage	20
1.4.3 Films noirs	22
1.4.4 Régénération marginale	23
1.5 Agitation et turbulence	23
1.6 Rupture	24
1.6.1 Nucléation d'un trou	24
1.6.2 Déstabilisation à grande échelle	25
I Déstabilisation du bord d'un film	27
2 Bord massif	31
2.1 Méthode expérimentale et observations	31
2.2 Récession du film	33
2.3 Déstabilisation du bord	35
2.4 <i>Rayleigh-Taylor</i> ou <i>Plateau-Rayleigh</i> ?	36
3 Battement d'un film, interaction avec le milieu environnant	39
3.1 Article paru dans les <i>Comptes Rendus de l'Académie des Sciences</i>	40
3.2 Article paru dans <i>Physical Review Letters</i>	53
II Déstabilisation d'une cloche liquide	59
4 Des cloches anguleuses	63
4.1 Les formes traditionnelles	63
4.1.1 Modélisation	63
4.1.2 Des formes simples.	66
4.1.3 . . . ou plus complexes	67

4.2	Les formes que l'on observe	69
4.2.1	Lorsque l'épaisseur entre en jeu	69
4.2.2	Un modèle simple d'inflexion	73
4.2.3	L'explication complète : un ressaut hydraulique libre	75
5	Des cloches nervurées	83
5.1	Observations	83
5.2	Croissance tout au long de la cloche	85
5.3	Croissance sur un pli	88
III	Vieillessement et fragmentation d'une bulle de surface	91
6	Vieillessement et fragmentation d'une bulle de surface	95
6.1	Article en attente de soumission	95
6.2	Article paru dans l'édition spéciale de <i>Physics of Fluids</i>	135
IV	Atomisation effervescente	139
7	Atomisation effervescente	143
7.1	Dispositif expérimental et ordres de grandeur	143
7.1.1	L'expérience	143
7.1.2	État de base de la nappe	144
7.1.3	Taille et densité des bulles	145
7.1.4	Tension de surface et vitesse d'ouverture des trous	146
7.2	Trous, ligaments et gouttes	147
7.2.1	Trous et surface de la nappe	147
7.2.2	Le réseau de ligaments	152
7.2.3	Les gouttes	155
	Conclusion	161
	Annexes	i
A	Rappels sur l'instabilité de <i>Rayleigh-Taylor</i> en couche mince	i
A.1	Développement historique	i
A.2	Cas d'une couche mince	ii
A.3	Discussion et limites	v
B	Méthodes expérimentales	vii
B.1	Mesure de la tension de surface : méthode de la goutte pendante	vii
B.2	Traitement des images	ix
C	Distribution des distances des ligaments aux lieux de nucléation	xi
	Références bibliographiques	xv

Introduction

Partout autour de nous des liquides sont mis en mouvement, se fragmentent et coalescent au gré des sollicitations qu'ils subissent pour former une population de volumes disjoints, ou *gouttes*, en constante évolution. Verser un verre d'eau, peindre, arroser, pulvériser, égoutter, injecter, brumiser, postillonner, imprimer, épandre... sont autant d'actions impliquant la fragmentation, ou *atomisation*, d'un volume liquide initialement connexe. Celle-ci nécessite qu'une déformation de l'interface avec le milieu environnant persiste jusqu'au changement de topologie du volume liquide. Elle réalise une dispersion de la matière et, dans le cas général, réduit les dimensions du volume et crée de l'interface, favorisant ainsi les transferts entre le liquide et l'atmosphère.

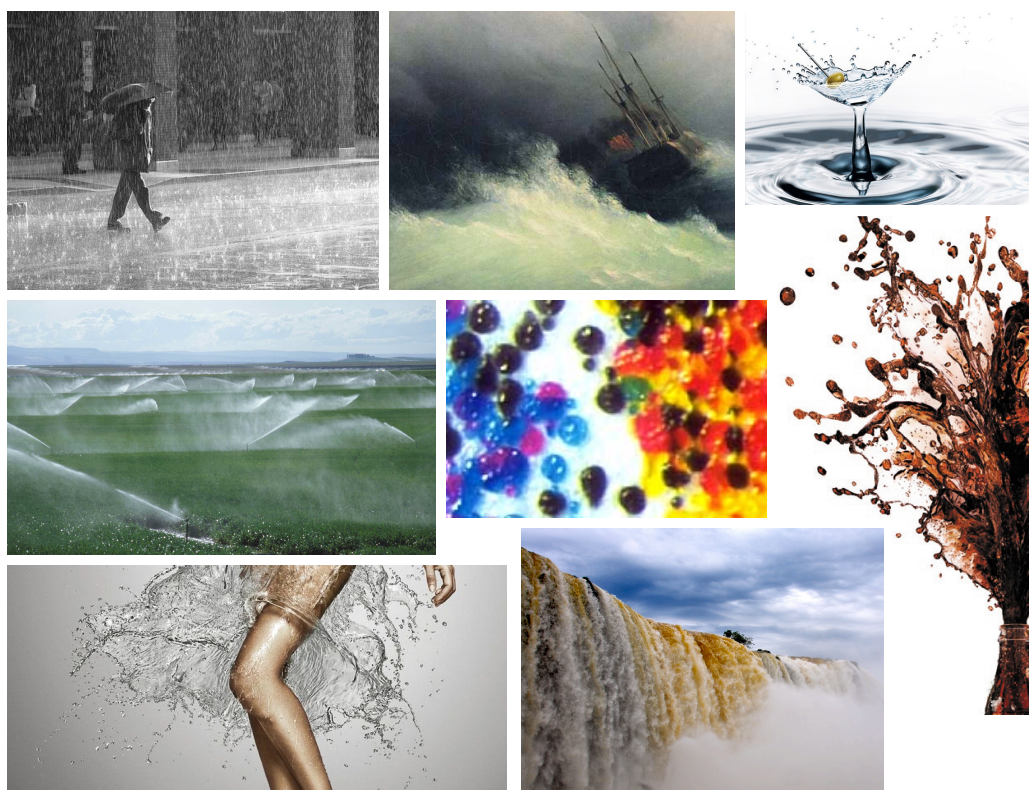


FIG. 1 – Partout, la fragmentation : la pluie se fragmente en l'air et au sol, les embruns marins se détachent de la mer, le jet des arroseurs se disperse sur un champ, des gouttes impriment séparément un papier, la bruine baigne le pied d'une cascade. Autour, les "structures liquides éphémères" accompagnant la fragmentation sont exploitées par la publicité pour leur esthétique.

Le phénomène est des plus courants comme chacun peut en faire l'expérience en constatant la fragmentation du jet issu d'un robinet par exemple. C'est aussi un thème récurrent de la communication, principalement de la communication par l'image car celle-ci permet de figer les formes habituellement inaccessibles à l'œil nu. Le côté esthétique des structures adoptées par les jets liquides lorsqu'ils se percutent et se fragmentent, révélé par la science depuis l'introduction de la photographie [125, 115, 193] et de ses évolutions [178], est ainsi largement exploité dans la publicité et la mode (voir figure 1). Ce nouveau point de vue modifie en retour notre perception de la dynamique des liquides en général.

Au delà de cet aspect familier, la maîtrise du processus de fragmentation est un défi technologique important. Il est au cœur d'un grand nombre d'applications couvrant des domaines d'activités variés. La demande est essentiellement celle d'une calibration des gouttes produites autour d'une taille optimale propre à chaque application. Que ce soit de façon désordonnée ou "au goutte à goutte", le caractère mono-disperse est souvent recherché. Depuis les utilisations les plus classiques jusqu'au plus novatrices citons : l'injection des carburants et éventuels comburants liquides des moteurs thermiques, l'application de peintures et revêtements, l'épandage, la fabrication des poudres métalliques, minérales et alimentaires (preuve de l'efficacité de l'atomisation liquide comparativement aux méthodes de broyage et concassage), les procédés d'impression classiques et leur évolution vers l'impression tri-dimensionnelle et celle des nano-circuits électriques pour palier aux limitations des méthodes par lithographie, l'encapsulation et le micro-dosage. . .

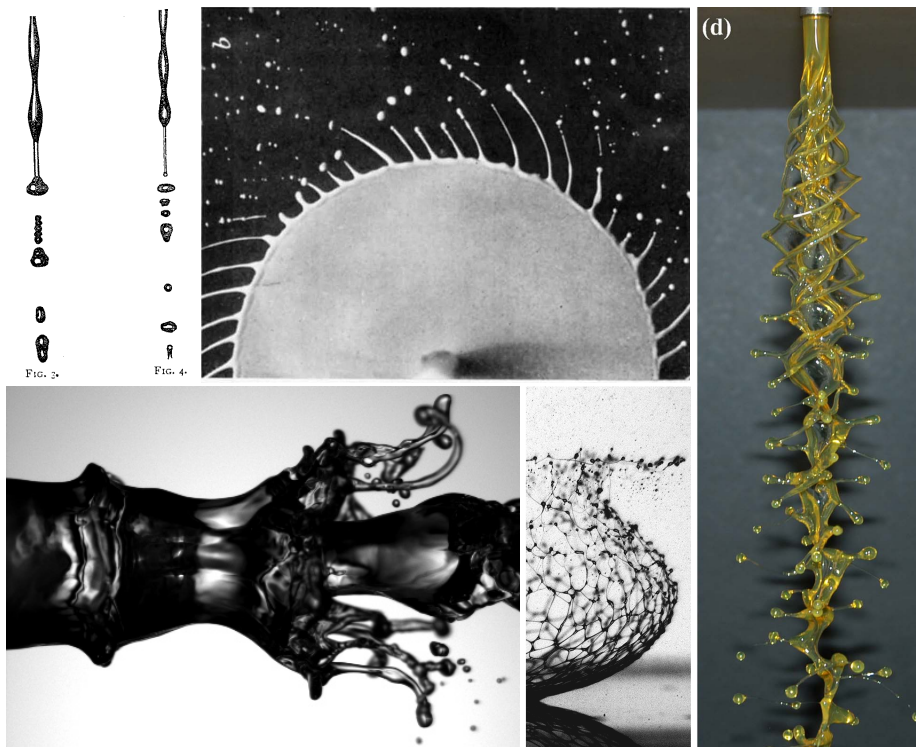


FIG. 2 – Quelques exemples de fragmentation d'un liquide issus de [115, 58, 127, 179, 97] illustrant la déformation et les changements de topologie des volumes liquides.



FIG. 3 – Des films liquides formés par... une cuillère placée sous un robinet (par les soins de Vanessa Gérard), l'insufflation d'air dans un mélange de savon et d'eau, la remontée d'une bulle de gaz dans un bain de magma, le sillage d'un skieur.

L'atomisation est bien sûr aussi à l'œuvre dans la nature où elle intervient lors de la formation des embruns et aérosols marins et sélectionne par exemple la taille des gouttes de pluie [187]. À d'autres échelles et sous l'impulsions d'autres forces (de gravitation), l'effondrement des nébuleuses gazeuses en amas éparses donnant naissance aux galaxies est aussi un phénomène de fragmentation fluide.

Indépendamment de ces motivations nombreuses, la fragmentation représente un problème physique à part entière qu'il est possible d'aborder depuis divers points de vue. Fragmenter c'est certes réduire la taille, mais c'est avant tout changer la topologie du volume occupé par le liquide. Ce changement ne s'opère pas en bloc mais plutôt de manière séquentielle. Les travaux de Plateau [144] et Rayleigh [111] à la fin du XIX^e siècle ont révélé le rôle particulier joué par les ligaments liquides, c'est-à-dire les objets cylindroïdes allongés. Pour cette géométrie particulière, la cohésion interne du liquide, qui tend à tout instant à réduire la surface, devient paradoxalement le moteur de la fragmentation : un ligament plus long que large se résout en une collection de gouttes. Cette dynamique ne requiert pas d'apport d'énergie puisqu'elle se fait avec réduction de la surface. Elle est la dernière étape de tout processus de fragmentation comme il apparaît sur la figure 2.

Comprendre la fragmentation d'un liquide c'est donc d'abord comprendre l'évolution depuis un volume globalement convexe vers une forme étirée présentant les digitations qui seront la sources des gouttes. Cette évolution peut passer par la formation d'un film liquide intermédiaire ; c'est-à-dire un volume liquide dont l'une des dimensions a été fortement réduite de façon à être sensiblement plus faible que les deux autres (quelques exemples sont présentés sur la figure 3). C'est ce vaste

ensemble de cas de figure qui est abordé dans cette thèse. Il autorise une atomisation en continu et est surtout caractéristique des processus de fragmentation fine. En effet, la configuration localement plane d'un film liquide est stable vis-à-vis des perturbations infinitésimales au sens de *Plateau*, si bien que les films sont aisément formés et affinés de manière à réaliser la réduction de taille du processus. Ils sont néanmoins fragiles. À l'important rapport surface sur volume qu'ils présentent est associé une énergie potentielle de surface élevée. Qu'une fluctuation suffisante vienne perturber l'état méta-stable du film et l'énergie stockée en surface se trouve libérée et contribue à la désintégration de celui-ci.

La présente thèse étudie la formation et la déstabilisation conduisant à la fragmentation de tels films liquides. L'étude est menée au travers de plusieurs expériences impliquant des configurations variées de films renouvelés continûment ou formés une fois pour toute. Un préambule introduit brièvement les concepts fondamentaux et certains résultats classiques relatifs aux films liquides que nous serons amenés à utiliser régulièrement au cours des quatre parties indépendantes présentant les résultats originaux. Chacune de ces parties aborde un problème particulier. Sont ainsi étudiés successivement : la désintégration des films de savons dans deux cas de figures distincts, les formes singulières adoptées par les cloches liquides et l'instabilité qui en résulte, le phénomène de production des aérosols marins par l'intermédiaire des bulles formées à la surface des océans, et enfin l'atomisation dite *effervescente*, un processus de fragmentation par ensemencement du liquide en fines bulles de gaz.

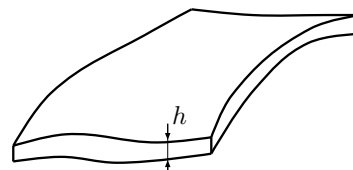
Chacun de ces thèmes est introduit plus avant au début de la partie s'y rapportant. Afin d'offrir plus de flexibilité à la lecture, celles-ci ont été écrites autant que possible de façon à pouvoir être abordées séparément. Elles utilisent cependant les mêmes outils expérimentaux et font intervenir les mêmes étapes de réflexion. Surtout, elles visent toutes à répondre à la même question : *Comment un film liquide évolue-t'il vers un ensemble de gouttes ?*

Chapitre 1

Préambule : les films liquides

Introduction

Les objets primaires auxquels cette thèse s'intéresse sont des films liquides suspendus dont l'épaisseur h varie entre 100 nm et 100 μm , et dont les deux autres dimensions sont sensiblement plus étendues. Il s'agit ainsi de "minces couches" de liquide, généralement stables sur des durées allant du $1/100^{\text{e}}$ de seconde à plusieurs heures, confinées entre deux milieux gazeux que l'on peut considérer semi-infinis.



L'évolution de ces objets fins est dominée par les effets de surface, au premier rang desquels figure la tension de surface, qui imposent les conditions aux frontières du liquide : *les interfaces*. Celles-ci sont disposées en vis-à-vis l'une de l'autre, et leurs dynamiques sont susceptibles de se coupler et de mouvoir le film dans toute son épaisseur. Les déformations de grande ampleur du liquide se font nécessairement selon les directions tangentes au film et celui-ci peut alors être vu comme un liquide ordinaire libre d'évoluer dans un espace réduit à deux dimensions. Inversement, de faibles déformations transverses d'ordre h suffisent à perturber profondément l'état du film. Ces perturbations peuvent se propager sous la forme d'une onde ou conduire au perçage du film si elles font se rejoindre les deux interfaces ; ce qui entraîne généralement la désintégration du film. La pérennité des films dépend alors de l'occurrence de tels événements.

Dans ce chapitre nous présentons succinctement ces comportements. La plupart sont des résultats désormais classiques de la littérature. Ils sont introduits ici car nous les utiliserons tout au long de cette thèse comme outils de description, de comparaison ou servant à l'explication de phénomènes plus complexes. Le lecteur averti pourra certainement survoler quelques sections. Nous verrons néanmoins que de nombreuses avancées restent à réaliser, notamment sur les questions du drainage, de l'agitation turbulente et du perçage des films. Ces derniers thèmes seront une préoccupation récurrente des parties suivantes, où débute l'exposition du travail original.

1.1 Sur le rôle des interfaces

Pour un liquide pur, les interfaces réalisent une transition continue entre les conditions régnant respectivement dans le liquide et dans le gaz. En dehors des conditions singulières de pression et de température, cette transition s'opère sur une longueur caractéristique d'une dizaine d'atomes [11] c'est-à-dire d'environ 1 nm et se réorganise sur un temps de l'ordre de 10^{-9} s [21]. Néanmoins, lorsqu'un point de vue macroscopique est adopté et que cette faible longueur n'est pas résolue, la transition apparaît discrète et les gradients de densité intégrés sur la zone de transition confèrent à l'interface des propriétés que l'on peut considérer localisées dans le plan de l'interface.

La principale de ces propriétés est la tension de surface notée σ . Elle manifeste à l'interface la cohésion interne du liquide comme Segner l'a suggéré le premier dès 1751 [163], inspiré par ses propres travaux et ceux de ses prédécesseurs [77, 88]. Son action est celle d'une force contractive : elle tend à tout instant à réduire la surface du liquide. Elle a pour dimension le $\text{kg}\cdot\text{s}^{-2}$ ou $\text{J}\cdot\text{m}^{-2}$ et représente l'énergie libre du système par unité de surface. Si l'on traduit le fait que cette énergie correspond au travail qu'il faut fournir pour augmenter la surface de l'interface d'une unité, toute chose demeurant égale par ailleurs, il apparaît que σ est aussi la force linéique exercée par une portion d'interface sur la portion voisine ; il est alors parlant de l'exprimer en unités de $\text{N}\cdot\text{m}^{-1}$. Cette force est contenue dans le plan tangent à l'interface et orientée de la portion voisine vers la portion considérée, d'où le nom de *tension* de surface. Elle peut être mise directement en évidence en formant un film d'eau savonneuse à l'intérieur d'un cadre dont l'un des bord est constitué d'un cheveux ou d'un fin fil ; ce dernier s'incurvera alors sous la tension exercée par le film comme sur la figure 1.1. Nous verrons par la suite que dans certains cas une interface peut exhiber une rhéologie plus complète que celle d'une simple tension de surface constante.

Lorsque l'interface est courbée, la tension de surface engendre une différence de pression de part et d'autre de celle-ci, de la même façon que la tension de la membrane d'un ballon de baudruche maintient l'air emprisonné à l'intérieur sous pression. L'équilibre mécanique selon la normale à l'interface impose alors la relation suivante nommée équation de *Young-Laplace* en hommage à Thomas Young et Pierre-Simon de Laplace qui l'ont établie au tout début du XIX^e siècle [197, 101, 102, 100] :

$$(\kappa_1 + \kappa_2) \sigma + p_g - p_l = 0 \quad (1.1)$$

où p_l et p_g sont les pressions respectivement dans le liquide et dans le gaz, et κ_1 et κ_2 sont les courbures principales de l'interface comptées positivement lorsque la concavité est tournée vers le liquide. À l'intérieur d'une goutte de liquide, la pression est ainsi plus élevée que dans l'atmosphère environnante, et ce d'autant plus que la goutte est petite. La tension de surface joue donc généralement un rôle de plus en plus important à mesure que l'on diminue les dimensions des objets sur laquelle elle opère.

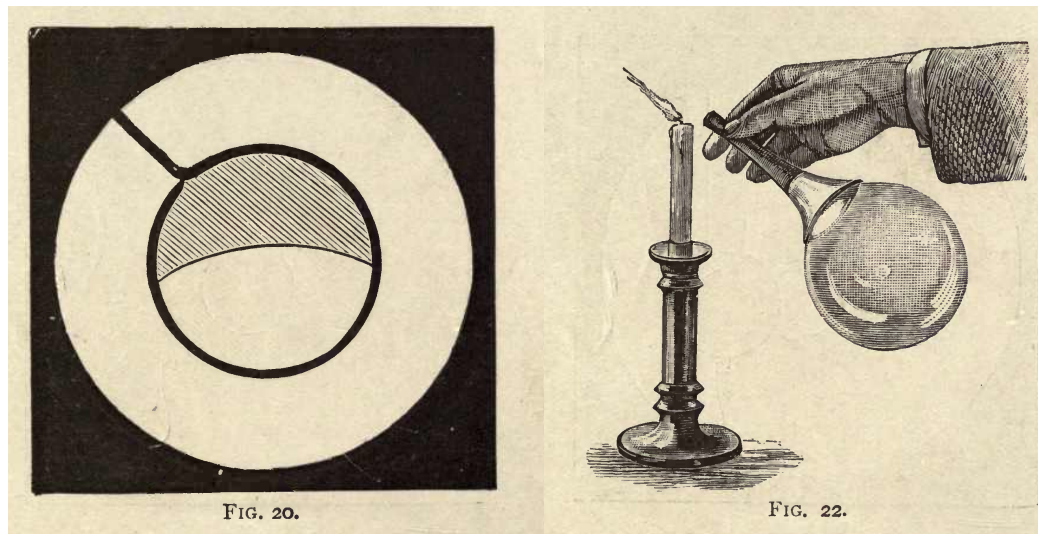


FIG. 1.1 – Mise en évidence de la tension exercée par un film de savon sur le fil qui le délimite et de la surpression régnant à l'intérieur d'une bulle de savon. Illustrations tirées de [26].

Son ordre de grandeur peut être obtenu en considérant qu'elle est une manifestation de la cohésion du liquide; c'est-à-dire la résultante des actions de liaison exercées sur une particule par l'ensemble des autres, qui maintient la phase liquide sous sa forme condensée. Pour un liquide pur, la différence ΔE d'énergie de liaison entre une particule entourée de ses consœurs et une autre à l'interface est de l'ordre de la chaleur latente de vaporisation¹. Pour une interface eau/air plane, à pression et température T ambiante, on peut l'assimiler en première approximation à l'énergie d'agitation thermique $k_B T$, où k_B est la constante de *Boltzmann*, puisque les fluctuations thermiques assurent une évaporation rapide des particules condensées dès que l'on diminue la pression de l'air. Si l'on rapporte cette énergie à la surface moyenne d'ordre d_a^2 occupée par une particule à l'interface, où d_a est la distance inter-atomique moyenne qui vaut approximativement 3×10^{-10} m, on obtient alors l'estimation suivante où l'on a supposé $\sigma \sim \Delta E/d_a^2$:

$$\sigma \sim \frac{k_B T}{d_a^2} \sim \frac{1.38 \cdot 10^{-23} \times 300}{(3 \times 10^{-10})^2} \text{ N.m}^{-1} \sim 50 \text{ mN.m}^{-1} \quad (1.2)$$

Estimation étonnamment précise au vu de la mesure à 25°C sous une atmosphère de la tension de surface de l'eau $\sigma_{H_2O} = 72 \text{ mN.m}^{-1}$ [109].

1.2 Les ondes se propageant sur un film

La tension de surface stabilise localement les interfaces sur les distances typiquement inférieures à leurs rayons de courbure². Elle tend ainsi à ramener les films

¹ En l'absence d'effets d'orientation des particules à l'interface, on attend un facteur 2 entre les deux quantités. En effet, par symétrie l'énergie d'interaction d'une particule avec un milieu semi-infini est la moitié de celle d'interaction avec un milieu infini, et la libération d'une particule du milieu requiert donc un travail double de celui nécessaire à sa simple migration en surface.

² Sur des distances plus grandes, la tension de surface peut en revanche être motrice de la déstabilisation comme c'est le cas pour la fragmentation d'un jet décrite par l'instabilité de *Plateau*-

vers leur configuration d'équilibre et fournit donc la force de rappel nécessaire à la propagation d'ondes de surface inertielles. Ces ondes sont de même nature que les ondes capillaires que l'on rencontre à la surface de l'eau d'une flaque ou d'un océan. Cependant la configuration en couche mince d'un film, où les deux interfaces sont libres et séparées d'une épaisseur h finie, autorise deux modes de propagations distincts selon que les interfaces évoluent en phase ou en opposition de phase. Toute perturbation peut être considérée comme une superposition de ces deux modes, étudiés pour la première fois par Taylor [175] en 1959 et ayant depuis été généralisés [119].

Le premier mode, pour lequel les interfaces évoluent en phase, est asymétrique vis-à-vis de la nappe médiane du film. On le nomme mode sinueux. La viscosité η joue un rôle négligeable, car le liquide se déplaçant essentiellement en bloc, les gradients de vitesse sont faibles. Pour un nombre d'onde k , la vitesse de phase³ vaut :

$$c_s = \frac{kh}{2} \tanh\left(\frac{kh}{2}\right) \sqrt{\frac{2\sigma}{\rho h}} \quad (1.3)$$

Pour les longueurs d'onde grandes devant l'épaisseur, c'est-à-dire $kh \ll 1$, on retrouve le cas d'une corde vibrante de tension 2σ (par unité de profondeur) et de masse linéique ρh (par unité de profondeur). À savoir des ondes non dispersives de célérité $\sqrt{2\sigma/\rho h}$, ce qui pour un film d'eau typique de $1 \mu\text{m}$ d'épaisseur correspond à $c_s \sim 10 \text{ m.s}^{-1}$. Les films étant néanmoins très fins, pour les grandes longueurs d'onde, l'inertie de la colonne d'air mise en mouvement ne peut plus être négligée. On définit alors une masse linéique équivalente [46] :

$$(\rho h)_{eq} = \rho h + \frac{2\pi\rho_a}{k} \quad (1.4)$$

pour le calcul de la célérité. Nous verrons dans le chapitre 3 comment l'excitation de ce mode peut conduire à la désintégration du film.

Le second mode, pour lequel les interfaces évoluent en opposition de phase, est symétrique. On le nomme mode variqueux ou péristaltique, par ressemblance avec les contractions de l'œsophage responsables du transit. Il est semblable à la propagation d'ondes capillaires en eau peu profonde, à la différence près que la symétrie atmosphère/film/atmosphère n'impose pas l'annulation de la vitesse longitudinale au "fond". Ces ondes sont dispersives, elles se propagent d'autant plus vite que la longueur d'onde est petite. Pour un nombre d'onde k , la vitesse de phase s'écrit :

$$c_v = \frac{kh}{2} \coth\left(\frac{kh}{2}\right) \sqrt{\frac{2\sigma}{\rho h}} \quad (1.5)$$

Dans la limite $kh \rightarrow 0$, cette vitesse devient $(kh/2) \sqrt{2\sigma/\rho h}$, négligeable devant c_s .

L'ajout, d'un tensio-actif autorise la propagations d'ondes élastiques que nous introduirons plus loin, et l'on notera enfin que pour les films formés de cristaux

Rayleigh [144, 111, 116, 117].

³ Ré-établie à la fin de l'annexe A.

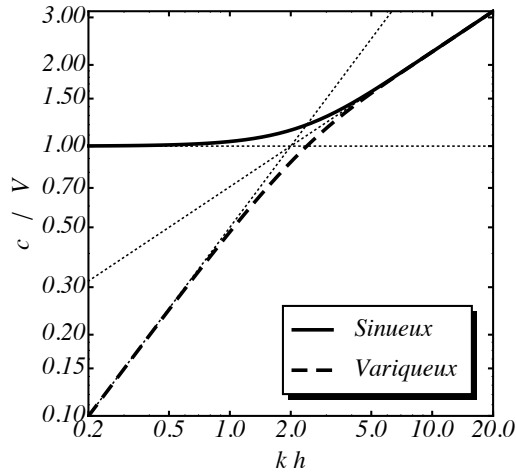


FIG. 1.2 – Vitesse de phase des ondes se propageant sur un film d'épaisseur h adimensionnée par $V = \sqrt{2\sigma/\rho h}$.

liquides par exemple, ou de tout autre liquide présentant une orientation préférentielle, l'anisotropie liée à l'orientation des composants autorise d'autres types d'ondes [135].

1.3 Lorsqu'un *tensio-actif* est ajouté

Il est possible de modifier drastiquement les propriétés d'un film en ajoutant seulement quelques dizaines de parties par million d'un composé au liquide dont il est formé, si ce dernier s'adsorbe⁴ naturellement en surface tel du savon dans de l'eau. On appelle alors ce composé *tensio-actif* ou *surfactant*, car il agit directement sur la tension de surface. Adsorbé en grande quantité il forme une mono-couche en surface qui confine et stabilise le film. Cette stabilité est certes très utile pour la réalisation d'expériences sur les films minces, mais elle n'est pas neutre vis-à-vis de leur rhéologie, loin s'en faut. Ainsi à la différence de l'interface liquide/vapeur d'un liquide pur, des contraintes tangentielles à la surface sont susceptibles d'exister en l'absence de mouvement. Enfin, la composition, et donc les propriétés de cette couche, peuvent varier par échange de matière avec la solution. Le tout, associé au comportement du liquide interstitiel, donne au film une rhéologie d'ensemble particulièrement riche. On est ainsi amené à s'intéresser, d'une part à la rhéologie propre de chaque couche, et d'autre part à l'influence du couplage entre ces couches via les échanges de matière et de quantité de mouvement.

1.3.1 Equilibres..

Un composé soluble ajouté au liquide d'un film se disperse dans le volume mais s'adsorbe aussi en surface jusqu'à éventuellement atteindre l'équilibre thermodynamique entre concentration volumique c et concentration surfacique Γ . Cet équilibre

⁴ C'est-à-dire vient occuper un des lieux de la "couche" de molécules condensées la plus externe.

dépend de l'affinité du soluté envers la solution et notamment très fortement de l'éventuelle anisotropie de la molécule de soluté. Il est vérifié en première approximation sur l'isotherme de *Langmuir* [99], valide lorsque l'interaction entre molécules adsorbées peut être négligée⁵, qui prend la forme d'une loi de *Henry* dans la limite $Kc \rightarrow 0$ des faibles concentrations :

$$\Gamma = \frac{Kc}{1 + Kc} \Gamma_\infty \simeq K\Gamma_\infty \times c \quad (1.6)$$

où K est une constante d'adsorption et Γ_∞ la concentration surfacique à la compaction maximale. La longueur $K\Gamma_\infty$ traduit ainsi l'égalité des potentiels chimiques entre les phases adsorbée et dissoute. Elle est de l'ordre du micromètre pour le *Sodium-dodecyl-sulfate* (SDS) [154], un tensio-actif massivement utilisé dans l'industrie et similaire à celui que nous utilisons dans les expériences⁶. Pour les concentrations surfaciques typiques d'ordre $\Gamma \sim 10^{16} \text{ m}^{-2}$, les molécules de surfactant sont donc fortement concentrées en surface, dans le sens où la distance inter-molécule moyenne y vaut $1/\sqrt{\Gamma} \sim 10 \text{ nm} \ll K\Gamma_\infty$. Dans le cas d'un composé non soluble, l'équilibre est même réalisé à $c \simeq 0$.

Pour les fortes concentrations, la dépendance entre Γ et c n'est plus linéaire et une saturation apparaît à partir d'une concentration $c_{MC} = K^{-1}$ appelée concentration micellique critique à laquelle les molécules commencent à se rassembler en agrégats sphéroïdes : les micelles. Pour le *SDS* à 20°C, cette concentration vaut approximativement $c_{MC} = 8 \times 10^{-3} \text{ M.L}^{-1}$ [85]⁷. Pour le tensio-actif commercial que nous utilisons, la tension de surface à saturation mesurée par la méthode de la goutte pendante (dont le détail est donné dans l'annexe B) vaut $\sigma = 25 \pm 1 \text{ mN.m}^{-1}$.

Les molécules adsorbées à l'interface diminuent le coût énergétique qui lui est associé et réduisent ainsi la tension de surface selon la loi d'adsorption de *Gibbs* [73] :

$$d\sigma = -\Gamma d\mu \simeq -k_B T \Gamma \ln c \quad (1.7)$$

Dans la limite diluée où l'équation (1.6) est valide, c'est-à-dire pour $\Gamma \ll \Gamma_\infty$, la tension de surface suit alors une équation d'état analogue à celle des gaz parfaits :

$$\sigma = \sigma_0 - k_B T \Gamma \quad (1.8)$$

Cette équation est la même, en deux dimensions, que celle reliant la pression osmotique d'une solution à la concentration de son soluté lorsque celui-ci est dilué. Le terme $k_B T \Gamma$ peut donc à juste titre être interprété comme la pression "de ligne", en N.m^{-1} , exercée à la température T par les molécules adsorbées en surface. La différence $\sigma_0 - \sigma$ est d'ailleurs nommée pression d'étalement et notée Π .

⁵ Bien d'autres isothermes ont été proposées pour rendre compte des interactions entre molécules adsorbées. Citons entre autres celle de *Frumkin* [70] et celle de *Hill-de Boer* [78, 51] analogue bi-dimensionnel de l'équation de *van der Waals*.

⁶ Dans toutes nos expériences nous avons utilisé le même tensio-actif commercial : le produit vaisselle "Dreft Fraicheur Citron" de *Procter & Gamble* composé de 10 – 15% de *Sodium-lauryl-ether-sulfate* (*SLES*), un tensio-actif anionique qui possède le même groupe actif que le *SDS*, et de 1 – 5% de *Dodecyl-diméthyl-amine-oxyde* (*DDAO*) un tensio-actif cationique.

⁷ D'après [59] pour un produit vaisselle commercial semblable à celui que nous avons utilisé la c_{MC} estimée par la méthode de la goutte pendante est atteinte pour une dilution d'approximativement 0,1% en volume.

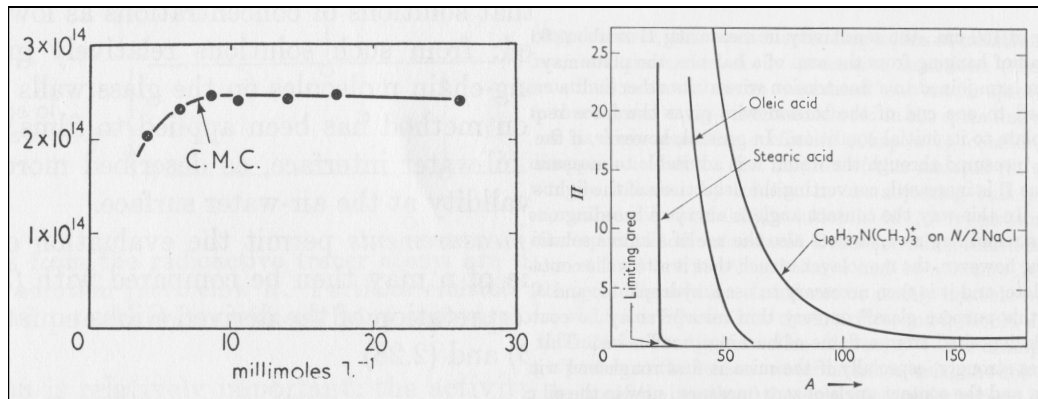


FIG. 1.3 – **Gauche** : Concentration surfacique Γ de SDS en cm^{-2} en fonction de la concentration en solution. **Droite** : Pression d'étalement $\Pi = \sigma_0 - \sigma$ en mN.m^{-1} en fonction de l'aire $1/\Gamma$ occupée en surface par chaque molécule en 10^{-20}m^2 pour des tensio-actifs courants. Données issues de [50].

1.3.2 Rhéologie...

L'ajout d'un tensio-actif ne modifie pas seulement la valeur statique de la tension de surface, mais autorise aussi sa variation lorsque le film est sollicité.

a/ ...d'une mono-couche

Au vu des rapports d'aspect d'une mono-couche, une rhéologie de surface s'impose. Nous considérerons uniquement les mono-couches "liquides" dont la viscosité propre est négligeable si bien que l'état de contrainte est isotrope et peut être entièrement décrit par le scalaire σ . L'élasticité de la mono-couche est alors définie par :

$$e = \frac{d\sigma}{d \ln d\Sigma} \quad (1.9)$$

où $d\Sigma$ est l'aire d'un élément de surface infinitésimal.

b/ ...de l'ensemble du film

Considérer le film dans son ensemble implique de prendre en compte l'élasticité des deux couches et celle éventuellement due au fluide interstitiel. On parle de module d'élasticité global du film, notée E . Pour un film plat uniforme [154] :

$$E \simeq 2e \quad (1.10)$$

Cette élasticité traduit la réponse du film à un étirement local par l'intermédiaire de l'adaptation de la tension de surface : un étirement local entraîne une diminution de la concentration surfacique tel qu'illustré sur le schéma 1.4, et avec, une augmentation de la tension de surface conformément à l'équation (1.8). Le mécanisme est ainsi localement stabilisant puisqu'une fluctuation de concentration engendre une force de rappel s'opposant à la sollicitation initiale.

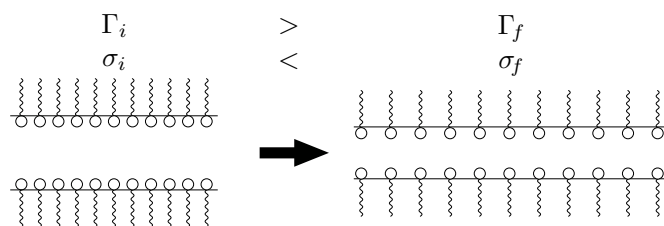


FIG. 1.4 – Origine de l'élasticité d'un film de savon.

Ce rôle stabilisant de l'élasticité peut aussi jouer sur de grandes échelles à travers la propagation d'ondes de fluctuation de la tension de surface que ce soit de détente ou de compression. Ces ondes élastiques, longitudinales et non dispersives se propagent à la vitesse :

$$c_{ve} = \sqrt{\frac{2e}{\rho h}} \quad (1.11)$$

Pour un film chargé en savon, ces ondes sont fréquemment plus rapides d'un facteur 2 ou 3 que les ondes capillaires classiques comme nous le verrons dans la partie I.

L'élasticité des interfaces autorise aussi la propagation d'un mode de flexion. Lorsque la rigidité flexionnelle propre des mono-couches peut être négligée, c'est-à-dire pour les films plus épais que quelques nanomètres [172], la rigidité flexionnelle du film, rapport de la courbure locale $\kappa \cdot \mathbf{e}_t$ au moment de flexion $\mathcal{M} \cdot \mathbf{e}_t$ qui lui est associé, vaut $2(h/2)^2 e$. Dans la limite $kh \ll 1$, l'équation de dispersion des ondes élastiques transverses conduit alors à :

$$c_{se} = \frac{kh}{2} \sqrt{\frac{2e}{\rho h}} \quad (1.12)$$

Ce mécanisme d'élasticité d'interface peut cependant être court-circuité, et donc amoindri, par un rééquilibrage des concentrations via la solution sous-jacente, ce qui suppose une désorption-diffusion-adsorption des molécules de surfactant à travers la solution.

Le taux d'étirement permet alors de distinguer deux cas limites selon que l'adsorption-diffusion a le temps de jouer ou non. Dans le premier cas, l'équilibre thermodynamique avec la solution est maintenu à tout instant, le module d'élasticité du film est minimal, et l'on parle d'élasticité de *Gibbs*, notée E_G [72]. Dans le second, il n'y a pas d'échange entre la solution et la mono-couche superficielle ; on parle alors d'élasticité de *Marangoni*, notée E_M ([121, 123, 122] et [161]). Le module d'élasticité d'un film vérifie donc toujours la relation :

$$E_G \leq E \leq E_M \quad (1.13)$$

E se réduit à E_M dans plusieurs cas de figure : lorsque les molécules de tensio-actif sont insolubles, que ce soit intrinsèquement ou parce que la solution est saturée, lorsque le temps caractéristique τ de la dynamique considérée est court devant ceux de diffusion-adsorption des molécules de tensio-actif⁸ ou encore lorsque le film est

⁸ Les temps de diffusion-adsorption varient grandement selon le type de tensio-actif utilisé et l'écoulement du liquide sous-jacent. Le coefficient de diffusion des grosses molécules de tensio-actif

tellement mince que la réserve de tensio-actif hc est négligeable devant Γ , ce qui équivaut à $h \ll K\Gamma_\infty$. Dans tous ces cas, la quantité de tensio-actif $\Gamma d\Sigma$ adsorbée à l'interface est conservée et l'élasticité peut alors s'exprimer en fonction de la concentration surfacique Γ selon $E = E_M = 2 d\sigma/d\ln d\Sigma = -2 d\sigma/d\ln \Gamma$. Dans la limite diluée elle prend ainsi la forme :

$$E_M = 2 k_B T \Gamma = 2 (\sigma_0 - \sigma) \quad (1.14)$$

déduite de l'équation (1.8). Le module d'élasticité est donc nul pour un liquide pur, conformément au fait que la tension de surface ne peut varier, et il est au maximum d'ordre σ pour les fortes concentrations, car la formation de micelles limite les valeurs de Γ .

Si de plus le temps de diffusion de la quantité de mouvement à travers la demi-épaisseur du film d'ordre $h^2/4\nu$ est court devant τ , le liquide interstitiel et la monocouche évoluent de concert à tout instant. Surface et épaisseur varient alors en rapport inverse, le quotient $d\Sigma/h$ est conservé et l'élasticité du film s'exprime directement en fonction de la variation de son épaisseur :

$$E_M = 2 \frac{d\sigma}{d\ln h} \quad (1.15)$$

La tension de surface ne dépend plus alors que des conditions h_i et σ_i avant sollicitation et de l'épaisseur courante h . Dans la limite diluée une expression explicite peut être obtenue à partir des équations (1.14) et (1.15) :

$$\frac{1}{(\sigma - \sigma_0)^2} - \frac{1}{(\sigma_i - \sigma_0)^2} = 2 \left[\frac{1}{h_i} - \frac{1}{h} \right] \quad (1.16)$$

Pour des tensio-actif ioniques, les interactions électrostatiques entre molécules adsorbées conduisent à une loi d'état qui dévie sensiblement de l'équation (1.8). L'équation (1.16), découlant de la précédente, n'est donc plus valide non plus. Néanmoins, tant que $h^2/4\nu \ll \tau$ et que l'adsorption-désorption peut être négligée, la tension de surface demeure une fonction de la seule épaisseur du film : $\sigma = \sigma(h)$. Ce cas de figure est notamment rencontré lors de la récession d'un film de savon comme nous le verrons au chapitre 3.

Il est important de noter ici que l'adsorption peut se faire aussi bien depuis le liquide, si un composé y est dissout, que depuis l'atmosphère lorsque celle-ci n'est pas purifiée. Pour un liquide tel que l'eau, possédant une tension de surface particulièrement élevée liée à la forte polarité de sa molécule⁹, le fait est loin d'être négligeable. La surface d'une eau pure se contamine ainsi très rapidement lorsqu'elle est au contact de l'air libre, ce que Hagen avait remarqué dès 1846 [75] : après quelques heures à l'air libre il mesure une tension de surface réduite d'un tiers par rapport à

⁹ $D \simeq 4 \times 10^{-10} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ [46] conduit à un temps de diffusion à travers une épaisseur micrométrique d'ordre 10^{-2} s . Les temps d'adsorption peuvent atteindre plus de 1 s en présence d'impuretés [46]. [114, 19].

⁹ En comparaison la tension de surface de l'éthanol n'est que de $22 \text{ mN} \cdot \text{m}^{-1}$ dans les conditions standard de pression et de température [109].

la valeur de la surface fraîche. Cette diminution de la tension de surface est certes excessive et ne correspond pas à ce que l'on peut observer à l'air libre habituellement, mais la rapidité de la contamination est bien réelle. Comme nous le verrons dans la partie III, elle est perceptible après quelques secondes d'exposition à l'environnement seulement. Dans le sillage de Hagen, de nombreuses expériences ont été réalisées pour mesurer les taux de contamination [114, 19, 21, 128].

On remarquera enfin que modifier la composition du liquide n'est pas le seul moyen de faire varier la tension de surface. Si l'on augmente la température σ diminue jusqu'à s'annuler au point critique où la distinction entre liquide et gaz s'évanouit. De même pour un liquide chargé, la répulsion électrostatique des charges accumulées en surface peut réduire ou même annuler la tension de surface provoquant alors fragmentation spontanée et auto-émulsion [112, 177].

1.4 Formation et vieillissement des films

1.4.1 Formation

Former un film implique généralement de réduire fortement l'une des dimensions d'un volume liquide. Soit de façon continue pour un film dont le liquide est sans cesse renouvelé via un écoulement rapide ; le film possède alors un caractère de base permanent, telles les nappes ou les cloches liquides. Soit une fois pour toutes lorsque le liquide n'est pas ou peu renouvelé ; le film présente alors une dynamique plus ou moins lente de "vieillissement", tels les films formés en tirant un cadre hors d'un bain ou ceux constitutifs des bulles en général.

Les deux modes de formation sont présents aussi bien dans la nature que dans les procédés industriels. On remarquera néanmoins que les exemples de films permanents sont plus abondants dans le domaine industriel où les impératifs de productivité et de fonctionnement favorisent la génération en continu. Les films non renouvelés, eux, se rencontrent dans tous les systèmes incluant des mousses naturelles (écume de mer) ou synthétisées que celles-ci soient souhaitées (plastiques expansés, mousses métalliques, cosmétiques, agro-alimentaire) ou redoutées (fabrication de verre, moulages, détergents).

Dans les deux cas, les éléments de fluide doivent être étirés et leur surface considérablement augmentée. La réduction de la dimension qui deviendra l'épaisseur du film nécessite de créer les conditions d'un écoulement convergent selon cette dimension et divergent selon les deux autres. Cet écoulement peut résulter de l'inertie du liquide comme lorsqu'un jet percute un solide ou bien d'un entraînement visqueux comme lorsqu'un film est tiré d'un bain [138]. L'état de base ou initial, et par delà son évolution ultérieure, dépendent fortement du détail de cette étape de formation.

1.4.2 Drainage

Dans le cas d'un film non renouvelé le vieillissement, par drainage du liquide interstitiel, est inéluctable. Lorsque la gravité n'en est pas le moteur, et que l'évaporation ne joue pas, ce sont les bords de *Plateau* délimitant le film et en dépression

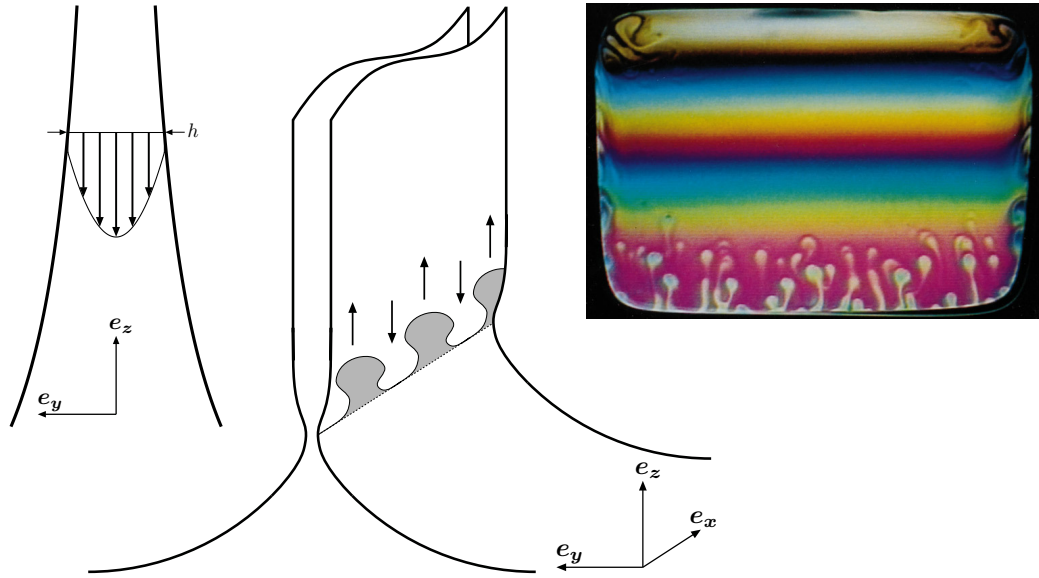


FIG. 1.5 – Plusieurs aspects du drainage d'un film liquide. **Gauche** : Écoulement du liquide interstitiel à travers l'épaisseur. **Milieu** : Striction du film, appelée striction marginale, apparaissant à la jonction avec le ménisque. Sa déstabilisation dans le plan du film conduit à l'émission et à l'ascension de cellules de convections fines remplaçant des portions de film plus épaisses. Ce mouvement de régénération marginale participe donc à l'amincissement du film. **Droite** : Image du phénomène de régénération marginale issue de [140].

de par la courbure de leurs interfaces, qui “pompe” le liquide et amincissent le film. Les seuls films pérennes sont ainsi les bulles de savon sphériques en absence de gravité et les *films noirs* dont l'épaisseur de l'ordre de 10 nm est telle que la répulsion des deux interfaces parvient à stabiliser le film et stopper leur affinement (voir section 1.4.3).

L'influence de l'extension du film apparaît clairement en considérant le cas simplifié d'un film plan, vertical et invariant selon la direction horizontale x , formé par exemple en retirant un large cadre d'un bain de solution sur une hauteur L grande devant la longueur capillaire $a = \sqrt{\sigma/\rho g}$. Après un transitoire très court, le film adopte éventuellement un état de quasi-équilibre où il s'affine lentement par drainage; si tel n'est pas le cas, c'est que le film a entièrement drainé en un temps de chute libre d'ordre $\sqrt{L/g}$. S'il y a équilibre, il n'est possible qu'en présence de viscosité et la dynamique de drainage dépend alors fortement des conditions aux interfaces.

Pour des interfaces chargées en tensio-actifs, les couches de tensio-actif peuvent être considérées incompressibles et leurs déplacements tangentiels négligés. Un écoulement de type *Couette* avec vitesse nulle aux parois s'installe alors à travers l'épaisseur du film, et l'évolution de celui-ci est bien décrite par une approximation de lubrification :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = \frac{\rho g}{12\eta} \frac{\partial h^3}{\partial z} \quad (1.17)$$

Cet état n'est possible qu'en présence d'un gradient vertical de tension de surface

équilibrant le poids du film :

$$2 \frac{\partial \sigma}{\partial z} = \rho g h \quad (1.18)$$

Cela implique bien sûr que des tensio-actifs soient présents à la surface du film, mais aussi que le temps de diffusion de la quantité de mouvement à travers l'épaisseur h^2/ν soit court devant le temps caractéristique de drainage afin que le poids du liquide puisse-t'être reporté sur les interfaces.

Un film d'épaisseur initiale uniforme h_0 en haut duquel (en $z = L$) une condition de débit nul est imposée voit alors son épaisseur déterminée à tout instant ultérieur par [53] :

$$h = \left(\frac{1 - \frac{z}{L}}{\frac{1}{h_0^2} + \frac{\rho g}{4\eta L} t} \right)^{1/2} \quad (1.19)$$

Au bout d'un temps caractéristique $\eta L / \rho g h_0^2$, les conditions initiales sont oubliées et l'épaisseur évolue selon $h \sim \sqrt{\nu L / g t}$.

Dans le cas extrême inverse, lorsque le liquide est pur et que les interfaces sont libres, l'écoulement est typiquement uniforme sur une section transverse du film et l'échelle de variation des vitesses est alors l'extension du film. Pour un film de forme hémisphérique, telle la calotte d'une bulle de gaz à la surface d'un bain de solution, l'amincissement est exponentiel avec un temps caractéristique $\eta / \rho g R$ où R est le rayon de la calotte [55, 47] (ce résultat est établi dans le détail en fin de partie III).

1.4.3 Films noirs

L'amincissement d'un film ne se poursuit pas indéfiniment selon les lois de drainage visqueux que nous venons de voir. Si le film n'a pas éclaté avant, lorsque son épaisseur atteint environ 100 nm, les deux interfaces interagissent et les conditions diffèrent alors de celles d'un volume liquide infini. La pression ne dépend plus uniquement de la courbure locale mais de la forme globale du volume liquide considéré¹⁰ et l'épaisseur du film peut être stabilisée par répulsion des molécules adsorbées à chacune des interfaces.

Selon que les forces attractives de *van der Waals* sont équilibrées par les interactions répulsives entre molécules adsorbées d'origine électrostatiques ou stériques deux épaisseurs d'équilibre peuvent être atteintes. Les films sont alors qualifiés de *film noir commun* et *film noir de Newton* et leurs épaisseurs respectives valent typiquement 10 – 30 nm et 4 nm [57, 12].

Pour un film liquide plan d'épaisseur uniforme, les différentes forces sus-citées sont généralement supposées additives. Leur influence est souvent exprimée sous la forme d'une *pression de disjonction* notée Π_d qui représente la différence de pression à imposer entre le liquide interstitiel et l'atmosphère pour stabiliser l'épaisseur.

¹⁰ Il faut bien remarquer que la pression de disjonction prend des valeurs non négligeables (à l'échelle du Pa) dès que des épaisseurs de l'ordre de 100 nm sont atteintes alors que la tension de surface $\sigma \sim \sigma_0 - \Pi_d h/2$ ne commence à varier sensiblement qu'à partir d'épaisseurs de l'ordre de 1 nm [182, 92, 11].

1.4.4 Régénération marginale

Dans la description précédente nous n'avons pas considéré les frontières du film. Pourtant, la vitesse de drainage du film tout entier est souvent déterminée par les conditions qui y règnent. En effet la courbure du ménisque reliant le film au bain engendre une succion du liquide et conduit à la formation d'un pincement localisé au pied du film [160, 81, 4, 82] comme schématisé sur la figure 1.5. Deux effets s'ajoutent alors pour déstabiliser cette ligne de sous-épaisseurs initialement horizontale.

- Premièrement la gravité, qui tend à remplacer les portions de films de l'étranglement, minces et donc légères, par les portions de films plus épaisses situées immédiatement au dessus.
- Et deuxièmement l'accumulation à la surface du ménisque de molécules de tensio-actif qui ne peuvent "franchir" le pincement à contre courant du liquide, car les contraintes visqueuses à travers l'épaisseur seraient alors trop importantes. Le flux de tensio-actifs nécessaire au repeuplement de la surface du film et à la diminution de sa tension de surface à mesure qu'il s'affine s'en trouve ainsi bloqué et une différence de pression d'étalement Π déstabilisatrice s'instaure de part et d'autre de la striction.

Ces deux effets brisent l'invariance par translation du film et déclenchent un écoulement de convection nommé *régénération marginale* par Mysels [138] car il intervient au bord du film et le renouvelle par échange de matière avec le bord de *Plateau* : des cellules de film fines et à concentration surfacique élevée se forment au niveau de la ligne d'étranglement et s'élèvent dans le film [32, 140]. Les flux respectivement ascendant et descendant des tensio-actifs et du liquide s'en trouvent accélérés et par là même le drainage du film.

1.5 Agitation et turbulence

Lorsque la viscosité de surface est suffisamment faible, c'est-à-dire pour des films épais et peu chargés en tensioactifs, la régénération marginale engendre une agitation intense du film ayant des propriétés turbulentes. Au vu des valeurs micrométriques de h , la viscosité impose un mouvement d'ensemble sur l'épaisseur du film et le mouvement du liquide, confiné dans le plan tangent au film, est alors très proche de celui d'une turbulence bi-dimensionnelle.

Depuis les travaux pionniers de Couder [45], le sujet a été étudié expérimentalement, principalement sur des films de savon [89, 151, 191, 74, 183] mais aussi sur des minces couches de liquide magnétique [164].

La principale différence avec la turbulence tri-dimensionnelle tient à ce que dans le régime inertiel, en plus de l'énergie cinétique $\langle \mathbf{u}^2 \rangle$ de l'écoulement, le carré de la vorticité $\langle (\nabla \times \mathbf{u})^2 \rangle$, appelé enstrophie, est aussi une grandeur conservée (résultat équivalent au théorème de *Kelvin*). Pour un écoulement établi et entretenu par l'injection de structures de taille caractéristique k_{inj}^{-1} , cela conduit à l'existence de deux "cascades" répartissant l'énergie cinétique entre les différentes tailles k^{-1} des structures de l'écoulement de part et d'autre de k_{inj}^{-1} :

- une cascade directe vers les grands nombres d'onde $k > k_{inj}$, où le flux d'enstrophie β organise le spectre d'énergie selon $E(k) \sim \beta^{2/3} k^{-3}$ [96],

- une cascade inverse vers les petits nombres d’onde $k < k_{inj}$, où le taux de transfert d’énergie ε organise le spectre d’énergie selon $E(k) \sim \varepsilon^{2/3} k^{-5/3}$. La loi est la même que pour la turbulence tri-dimensionnelle [94], mais le sens du flux d’énergie est ici inversé.

Ces notions seront utilisées dans la partie III pour caractériser la turbulence dans la calotte d’une bulle et son influence sur la durée de vie de celle-ci.

1.6 Rupture

Les films possèdent, de par leur rapport d’aspect, un ratio surface/volume très important et stockent ainsi une énergie potentielle de surface considérable. La plupart du temps, ils sont néanmoins étonnement pérennes comme on peut le constater en regardant une bulle de savon vieillir lentement. Dans une atmosphère saturée en vapeur les films noirs mentionnés dans la section précédente sont même communément conservés intègres durant plusieurs heures [138, 37].

1.6.1 Nucléation d’un trou

La raison de cette stabilité tient à ce que la formation d’un petit trou à travers le film augmente transitoirement la surface de celui-ci d’une quantité finie $\Delta\Sigma$ et requiert donc un apport d’énergie $\sigma\Delta\Sigma$. Pour que le trou formé s’étende et conduise à la désintégration du film, il faut par ailleurs que son diamètre initial $2r$ soit typiquement plus grand que l’épaisseur h du film. En effet, le bord du film au contact du trou, schématisé sur la figure 1.6, présente deux courbures de signes opposés telle la portion d’un tore la plus proche de son axe de révolution. La première courbure autour de l’axe de révolution est d’ordre r^{-1} . Elle tend à refermer le trou et cicatrifier le film. La seconde, dans la direction perpendiculaire, est négative, d’ordre $-h^{-1}$ et tend à ouvrir le trou. Le trou ne s’ouvre ainsi que si la seconde courbure domine la première, c’est-à-dire si $r \gtrsim h$. Il y a donc une énergie minimale, ou énergie d’activation, d’ordre σh^2 à fournir localement au système pour qu’un trou nucléé à travers le film.

Le problème de l’apparition d’un trou est donc analogue à celui de l’apparition d’un noyau de taille critique dans un système hors équilibre dont le traitement est désormais classique. Pour un tel phénomène de *nucléation* dont la fréquence d’essai est f , la probabilité p d’observer un événement de percage d’un film soumis à un bain de fluctuation d’énergie caractéristique E sur une durée Δt s’exprime à l’aide du facteur de *Boltzmann* selon :

$$p = f e^{-\frac{\sigma h^2}{E}} \Delta t \quad (1.20)$$

Lorsque les fluctuations sont d’origine thermique, elles ont pour amplitude caractéristique $k_B T \sim 10^{-21}$ J à température ambiante [23]. La fréquence d’essai f est, elle, extensive à la surface Σ considérée selon $\omega \times \Sigma/h^2$. Le facteur extensif Σ/h^2 représente le nombre de sites potentiels indépendants de nucléation et le facteur de fréquence élémentaire ω , exprimant la durée de dé-corrélation au bout de laquelle le système est dans un état microscopique indépendant de l’état initial, est un temps

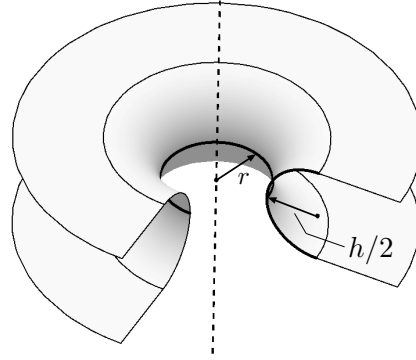


FIG. 1.6 – Les deux courbures opposées que l’interface d’un film adopte au voisinage d’un trou. La première d’ordre $1/h$ tend à agrandir le trou tandis que la seconde d’ordre $1/r$ tend à le refermer et à cicatrifier le film.

d’agitation moléculaire que l’on peut prendre en première approximation d’ordre $k_B T / \hbar$ où $\hbar \simeq 10^{-34}$ J.s est la constante de *Planck*¹¹.

Pour fixer les idées intéressons nous à une surface typique $\Sigma = 1$ cm² sur une durée $\Delta t = 1$ s. La probabilité de nucléation d’un trou devient d’ordre 1 pour $\sigma h^2 \sim 60 k_B T$ où le facteur $\ln f \simeq 60$ traduit le nombre considérable d’essais sur la période d’observation. L’épaisseur critique du film correspondante vaut alors $h \sim 1 - 10$ nm d’après l’équation (1.20). Les fluctuations thermiques permettent donc d’expliquer la nucléation d’un trou à travers les films noirs évoqués dans la section précédente [168, 169, 142, 37].

En revanche, la dépendance de p à l’épaisseur étant en e^{-h^2} , un film d’épaisseur micrométrique soumis aux mêmes conditions se verrait prédire une espérance de vie non physique. Inversement, pour un tel film une durée de vie de l’ordre de la seconde impliquerait¹² une fluctuation typique d’énergie de 10^{-15} à 10^{-14} J, avec la contrainte notable qu’elle soit concentrée sur un volume plus petit que h^3 . Ainsi, si l’on veut expliquer par l’approche précédente le perçage spontané de films de 1 à 100 μ m d’épaisseur que l’on observe pour des bulles à la surface de l’eau par exemple (voir partie III), il est nécessaire d’identifier une source de fluctuations sensiblement plus forte que l’agitation thermique. À moins que des “défauts” ou impuretés ne soient présents dans le film et offrent la possibilité d’une nucléation hétérogène réduisant sensiblement la barrière énergétique associée au perçage.

1.6.2 Déstabilisation à grande échelle

Le perçage d’un film ne résulte pas nécessairement uniquement d’une fluctuation localisée. D’autres modes de rupture jouant sur des échelles plus grandes que l’épaisseur peuvent conduire à la désintégration du film. Les effets *Marangoni* de différence de tension de surface peuvent amincir le film sur une région étendue et fa-

¹¹ Cette fréquence d’essai varie bien sûr avec la fréquence typique des fluctuations que l’on considère.

¹² Sous l’hypothèse d’un facteur de fréquence non nul quelconque dans la pratique, étant donnée la dépendance logarithmique de E au facteur de fréquence.

ciliter le perçage. On les trouve dans les films diphasiques [184, 180], ou en présence d'un gradient de température [162]¹³.

De même pour une solution de tensio-actif présentant des gradients de concentration un mécanisme auto-entretenu de convection nommé *turbulence d'interface* est souvent observé. Il résulte des contraintes de *Marangoni* induites par les gradients de concentration en soluté eux-mêmes pilotés par l'advection [170, 161, 162].

Enfin pour les films suffisamment fins pour que la pression de disjonction entre en jeu, des instabilités à grande échelle peuvent aussi se développer sous l'impulsion des forces de *van der Waals*, mais là encore ces effets ne peuvent expliquer le perçage de films de plus de 100 nm d'épaisseur [142, 12].

¹³ On remarquera avec Scriven [162] que dans les observations historiques des cellules de convection faites par Bénard en 1900 et 1901 [9, 10], c'est ce mécanisme de convection, dit de *Bénard-Marangoni*, et provoqué par les gradients de tension de surface induits par ceux de température, qui était à l'œuvre et non pas comme Bénard l'a cru lui-même la convection due à la dilatation thermique modélisée par Rayleigh [118] un peu plus tard, et avec laquelle elle a longtemps été confondue.

Première partie

**Déstabilisation du bord d'un
film**

Introduction

Lorsqu'on perce un film liquide, celui-ci éclate violemment et se résout en un spray de fines gouttelettes aisément observable puisqu'il reste en suspension dans l'air. La première mention du phénomène date de 1672 lorsque Robert Hooke note :

« Il est singulier aussi qu'après cela, quand la bulle éclate, sa rupture ait lieu avec une espèce d'explosion, en dispersant ses parties en une sorte de poussière ou de brouillard. » (cité et traduit par Plateau [144])

Dans le cas d'une bulle cette fragmentation est principalement liée au caractère courbe du film et nous l'expliquerons dans la partie III. Néanmoins la fragmentation a lieu même lorsque le film est plan. Joseph Plateau le vérifie en 1873 par une expérience astucieuse dans laquelle il place un papier juste au dessous d'un film de savon qu'il perce ensuite ; une fois le film percé il observe la trace des gouttelettes sur le papier [144].

L'ouverture du film a depuis été expliquée. L'*éclatement* d'une bulle ne doit son nom qu'à la rapidité du phénomène échappant à l'œil nu de l'observateur. En réalité, aux premiers instants suivant le perçage, un film se rétracte de façon régulière sous l'action de la tension de surface. La matière du film est collectée dans un bourrelet toroïdal bordant le trou à mesure que celui-ci s'étend à une vitesse $V = \sqrt{2\sigma/\rho h}$, déterminée historiquement par Taylor [176] et Culick [49], à laquelle la mise en mouvement du liquide équilibre la tension de surface.

En revanche, la fragmentation qui a lieu ensuite et qui accompagne la majeure partie de la récession n'a pas reçu d'explication satisfaisante bien que les ligaments qui se forment sur le bord du trou et qui sont les médiateurs de cette fragmentation aient été observés à maintes reprises, notamment par Marangoni [124], Mysels [129] et Evers [63]. Ils sont aussi clairement visibles sur les travaux de Lord Rayleigh [115] et de Ranz [148] bien qu'ils ne semblent pas avoir été remarqués ou jugés importants.

Cette partie présente deux expériences originales dans lesquelles le bord libre, et initialement lisse, d'un film liquide en train de se rétracter se plisse jusqu'à former des ligaments d'où se détachent des gouttes. La dynamique de déstabilisation du bord est observée et une prévision en accord quantitatif avec les mesures expérimentales est avancée pour chacune des deux expériences, expliquant ainsi la fragmentation observées par Plateau.

Chapitre 2

Bord massif

La première dynamique, présentée dans ce chapitre, concerne la déstabilisation d'un film s'ouvrant depuis l'une de ses frontières. Lorsqu'un film de savon tendu à l'intérieur d'un cadre démouille de ce dernier, sa configuration change soudainement. Il passe quasi-instantanément d'un état d'équilibre, où il était rattaché au montant du cadre par l'intermédiaire d'un ménisque, nommé bord de *Plateau*, à une configuration où il possède un bord libre qui prend la forme d'un bourrelet massif constitué du liquide anciennement situé dans le bord de *Plateau*.

Le film se rétracte alors naturellement sous l'action de la tension de surface. L'accélération violente associée à la mise en mouvement du bourrelet massif provoque la déstabilisation puis ultérieurement la fragmentation de celui-ci.

2.1 Méthode expérimentale et observations

Le matériel utilisé consiste en un cadre rectangulaire en aluminium de $5 \times 10 \text{ cm}^2$. Les plus longs côtés sont percés par deux trous en vis-à-vis l'un de l'autre à travers lesquels est passé puis tendu un fil de tungstène de diamètre $d_f = 100 \mu\text{m}$ séparant ainsi le cadre principal en deux sous-cadres rectangulaires. Le fil est isolé électriquement du cadre d'aluminium et relié aux bornes d'un condensateur chargé à l'aide d'un transformateur haute tension dont on peut piloter la décharge par un interrupteur.

Le cadre, maintenu vertical, est immergé dans une solution d'eau et de "Dreft" en concentration supérieure à la concentration micellique critique¹. Il en est ensuite retiré lentement afin de former un film de savon dans le sous-cadre supérieur. Ce film est délimité par le fil sur son bord inférieur et par le cadre d'aluminium sur ses trois autres côtés. Afin de travailler dans des conditions proches de la pression de vapeur saturante et ainsi limiter l'évaporation, le cadre est maintenu juste au dessus du bain de solution. Une fois que le film a atteint l'épaisseur souhaitée, de quelques micromètres à quelques dizaines de micromètres, le condensateur est déchargé à travers le fil². Ce dernier chauffe brusquement par effet *Joule* ce qui provoque le détachement simultané du film sur toute la longueur du fil comme on peut le voir

¹ Voir note de bas de page 6 p. 16.

² L'utilisation d'un condensateur pour provoquer le détachement "net" du film est à mettre au crédit de Jérôme Duplat qui a judicieusement suggéré l'idée.

sur la figure 2.1. Le mécanisme conduisant à ce détachement tient probablement à la fois à la vaporisation du liquide au contact du fil et à l'impulsion communiquée au film lors de la dilatation brusque du fil. Quoi qu'il en soit, son détail ne nous intéresse guère, il permet seulement la configuration initiale souhaitée : un bord libre quasi-rectiligne dont la vitesse est faible devant la vitesse limite de récession du film comme nous le vérifierons par la suite.

Le bord est mis en évidence par absorption de la lumière issue d'un éclairage d'arrière plan homogène et observé à l'aide d'une caméra rapide³ fonctionnant à une cadence de 5000 à 15000 images par seconde et dont l'acquisition est synchronisée avec la décharge du condensateur.

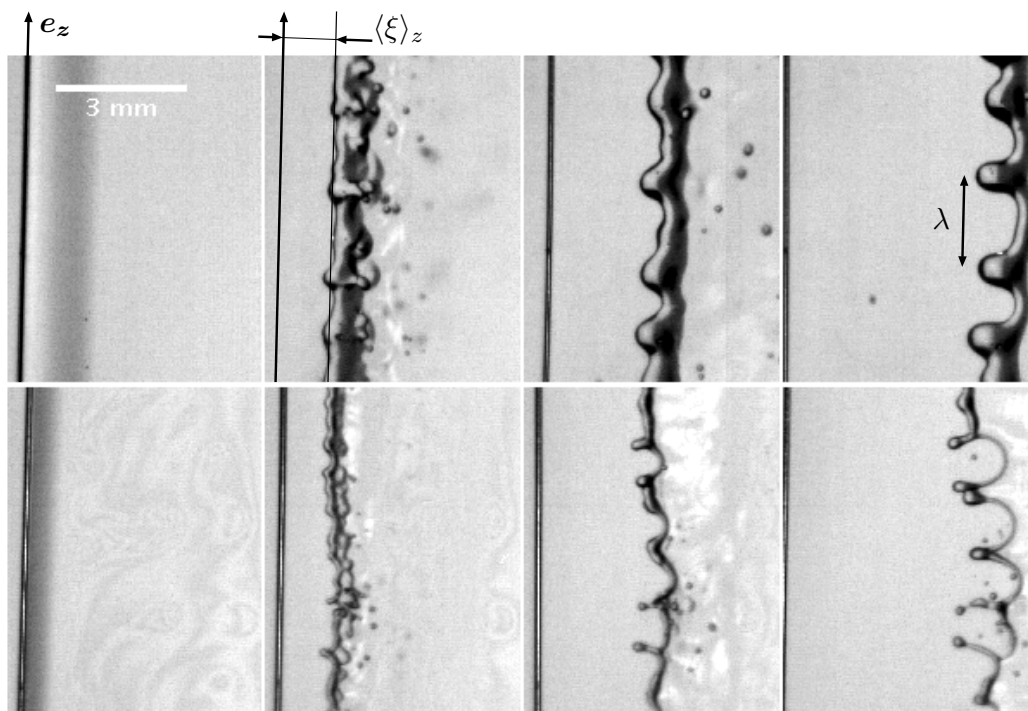


FIG. 2.1 – Déstabilisation du bord initialement rectiligne de deux films de savon en train de se rétracter. Les images sont séparées de 2.4 ms pour la séquence du haut et de 0.8 ms pour celle du bas. L'échelle spatiale est la même pour chacune d'elles. La verticale ascendante est orientée vers la droite.

Les images ainsi obtenues montrent qu'immédiatement après le détachement le film se rétracte et le bord initialement rectiligne se plisse. L'amplitude des plissements croît régulièrement pendant un transitoire de quelques millisecondes jusqu'à former des indentations prononcées présentant une périodicité spatiale bien définie. Ultérieurement les indentations se creusent et absorbent leurs voisins ou disparaissent. Nous n'aborderons pas cette dynamique à temps long et dans la suite nous nous concentrerons sur le premier transitoire.

³ Caméra numérique *Photron APX*.

2.2 Récession du film

Si l'on appelle z la coordonnée spatiale selon la direction du fil et $\xi = \xi(z, t)$ la distance du fil à l'extrémité du film, la position moyenne du bord $\langle \xi \rangle_z$ s'affranchit naturellement des plissements. Une évolution typique de $\langle \xi \rangle_z$ est représentée sur la figure 2.2. Contrairement à ce que l'on observe lorsqu'on perce un petit trou au milieu d'un film de savon, la vitesse de récession n'est pas constante⁴. Ici, le bord est accéléré tout au long de la mesure, d'abord violemment puis de moins en moins fort ; conséquence de l'inertie importante du bourrelet qui doit être accéléré jusqu'à la vitesse limite de récession. En effet, le film est rattaché au fil par l'intermédiaire d'un ménisque nommé bord de *Plateau* dont la section est d'ordre $ad_f \gg h^2$, où $a = \sqrt{\sigma/\rho g}$ est la longueur capillaire. En se détachant il emporte avec lui une portion non négligeable de ce bord de *Plateau* et l'incorpore à son bourrelet.

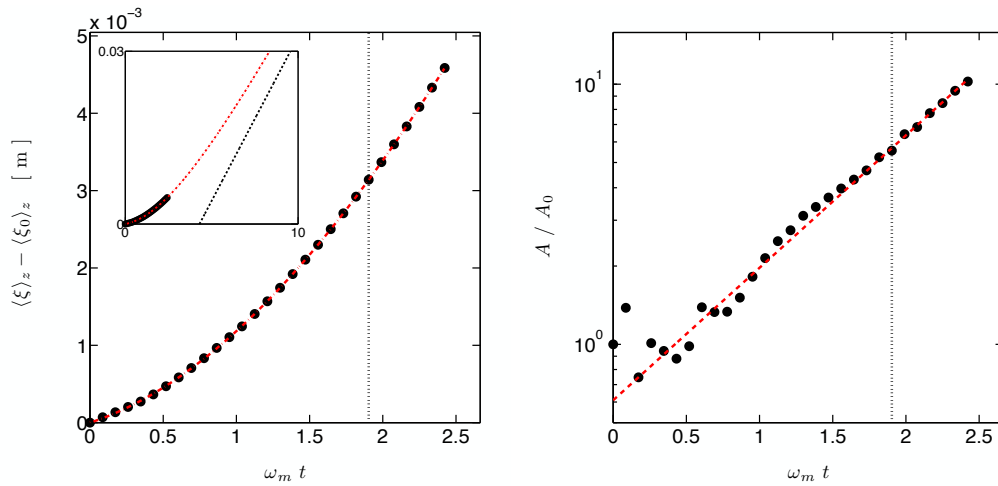


FIG. 2.2 – **Gauche** : Trajectoire caractéristique du bord libre (●) et son fit par la loi (2.2) (---). Le temps est adimensionné par la durée ω_m^{-1} de développement de l'instabilité. **Insert** : Idem que précédemment sauf que les bornes ont été modifiées pour laisser apparaître la trajectoire asymptotique à temps long (—). **Droite** : Évolution relative de l'amplitude $A = \sqrt{\langle (\xi - \langle \xi \rangle_z)^2 \rangle_z}$ des plissements du même bord (●) et son fit (---) par une loi exponentielle $C e^{t/\tau}$.

La trajectoire d'un tel bourrelet est aisément prévisible si l'on connaît les conditions initiales au moment du lâcher. Considérons un film d'épaisseur uniforme h et invariant par translation selon la direction z tangente au bord. En ne s'intéressant pas au détail de la forme du bourrelet et en supposant, comme Taylor et Culick l'ont fait, qu'il est peu étendu, la dynamique de l'ouverture du trou s'établit à partir de bilans sur le bourrelet. Les conservations de la matière et de la quantité de mouvement conduisent ainsi au système suivant :

$$\frac{d}{dt} \left(\rho h x \frac{dx}{dt} \right) = 2\sigma, \quad x(0) = x_0, \quad \frac{dx}{dt}(0) = V_0 \quad (2.1)$$

où x est la position du centre de masse du bourrelet, x_0 pilote sa masse initiale $\rho h x_0$

⁴ Nous mettons ici de côté les effets visqueux qui peuvent aussi conduire à un transitoire long [56, 30, 159].

et V_0 représente sa vitesse initiale. La solution de (4.29) est donnée par :

$$x = \sqrt{x_0^2 + 2x_0V_0t + V^2t^2} \quad \text{avec} \quad V = \sqrt{\frac{2\sigma}{\rho h}} \quad (2.2)$$

où V est la vitesse limite du bourrelet déterminée historiquement par Taylor [176] et Culick [49]⁵. Elle est identique à la vitesse de propagation des ondes sinueses longues (voir section 1.2) et peut devenir conséquente lorsque l'épaisseur du film est faible; elle vaut par exemple 7 m.s^{-1} pour un film de savon de $1 \mu\text{m}$ d'épaisseur. L'accélération initiale, qui est l'accélération maximale subie par la bourrelet, vaut $\gamma_0 = (V^2 - V_0^2)/x_0$ et elle dure typiquement x_0/V lorsque $V_0 \neq V$. Ainsi lorsqu'un film éclate spontanément ou lorsqu'on le perce avec un objet suffisamment petit pour que le bourrelet initial au bord du trou de perçage soit d'un diamètre comparable à h , V_0 est nul et la vitesse limite est atteinte au bout d'une durée de l'ordre du temps capillaire $\tau_c = \sqrt{\rho h^3/\sigma}$ qui est en général négligeable. C'est pourquoi le trou s'ouvre à une vitesse uniforme sur la figure 2.3.

Dans le calcul précédent nous avons considéré un bourrelet concentré, c'est-à-dire dont l'extension selon la direction de propagation est faible devant la dimension du trou, $x - x_0$. Cette condition est vérifiée pour un liquide pur dont la tension de surface est constante, mais pas pour les solutions à forte concentration en tensio-actif tel que les films de savon. Dans ce dernier cas, l'onde de détente élastique se propage plus vite que le bord du film (voir préambule) et le bourrelet prend une forme étendue comme nous le verrons dans le chapitre suivant. Le détail de la dynamique d'ouverture du trou est donc en réalité plus complexe que dans notre caricature mais les corrections aux équations (2.1) et (2.2) ne sont que du second ordre. Les modifications à la vitesse limite V induites par l'extension du bourrelet sont ainsi de l'ordre de $1/100$ [137]. C'est d'ailleurs pour cette raison que sa dérivation théorique a pu être validée expérimentalement [129] sur des films... de savon développant un tel bourrelet étendu!

La trajectoire du bord est bien décrite par cet argument de masse initiale ajoutée. En assimilant l'extrémité du film $\langle \xi \rangle_z$ au centre de masse du bourrelet x (la différence étant de l'ordre du diamètre du bourrelet d'ordre $\sqrt{hx} \ll x$) on vérifie que la trajectoire suit une loi (2.2) (voir figure 2.2). La masse initiale x_0 et la vitesse limite V peuvent alors être déduites de la comparaison. Pour les neufs films observés la masse initiale $\rho h x_0$ estimée de cette façon est comprise entre 0.1 et 1 fois l'ordre de grandeur de la masse attendue pour le bord de *Plateau pad_f*.

⁵ On remarquera que si l'on essaye de déterminer la vitesse limite d'ouverture comme l'ont fait Dupré [60] puis Rayleigh [115], en traduisant que l'énergie initialement stockée à la surface $2\sigma\Sigma_t$, où Σ_t est l'aire du trou à l'instant considéré, est intégralement transformée en l'énergie cinétique $\rho h \Sigma_t V^2/2$, on calcule une vitesse plus grande d'un facteur $\sqrt{2}$. Ceci indique qu'exactement la moitié de l'énergie stockée est restituée sous forme d'énergie cinétique, l'autre étant dissipée par le travail des forces visqueuses. Il faut donc garder en tête que même si la vitesse limite peut être déterminée sans tenir explicitement compte des forces visqueuses, celles-ci jouent un rôle prépondérant, et d'ailleurs toujours mal compris, dans la dynamique de récession d'un bourrelet.

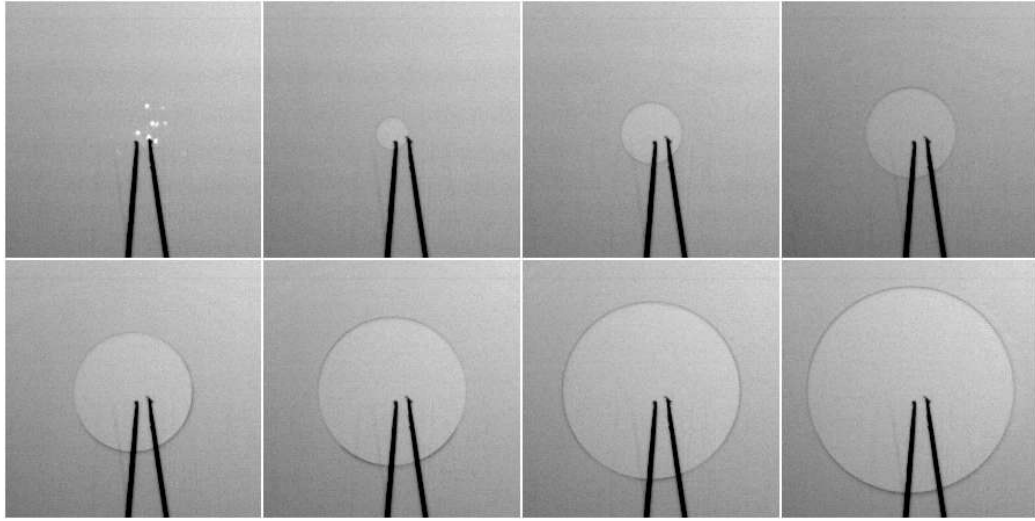


FIG. 2.3 – Ouverture d'un trou dans une nappe liquide. Le trou est provoqué par la projection à travers le film d'un éclat incandescent issu d'une des deux électrodes entre lesquelles une étincelle a été générée. Le champ d'une image est de $4,1 \times 4,1 \text{ cm}^2$ et $860 \mu\text{s}$ séparent chacune d'elles.

2.3 Déstabilisation du bord

De même que l'on a défini une position moyenne du bord, une amplitude des plissements $A = \langle (\xi - \langle \xi \rangle_z)^2 \rangle_z$ peut être mesurée sur chaque image. Une évolution temporelle typique de A est présentée sur la figure 2.2. Mis à part les tous premiers instants qui voient encore les perturbations liées au détachement du film, l'amplitude croît exponentiellement et il est possible de lui associer un taux de croissance effectif τ^{-1} .

Ces plissements du bord découlent directement de la dynamique de récession que nous avons établie précédemment : l'accélération du bourrelet entraîne une déstabilisation inertielle de celui-ci. En considérant le film comme un milieu semi-infini soumis à l'accélération constante γ_0 dirigée vers la phase dense, le taux de croissance maximal ω_m de l'instabilité de *Rayleigh-Taylor* et la longueur d'onde associée λ_m s'écrivent (voir l'annexe A) :

$$\begin{cases} \omega_m = \left(\frac{4}{27} \frac{\rho \gamma_0^3}{\sigma} \right)^{1/4} \\ \lambda_m = 2\pi \sqrt{\frac{3\sigma}{\rho \gamma_0}} \end{cases} \quad (2.3)$$

Dans tous les cas observés, la vitesse initiale V_0 est faible devant la vitesse limite V . L'accélération vaut donc $\gamma_0 \simeq V^2/x_0$. Et ω_m se réduit alors à :

$$\omega_m \sim \left(\frac{\rho V^6}{\sigma x_0^3} \right)^{1/4} \sim \frac{V}{x_0} \left(\frac{x_0}{h} \right)^{1/4} \sim \frac{V}{x_0} \left(\frac{ad_f}{h^2} \right)^{1/4} \quad (2.4)$$

Ainsi tant que $h^2 \ll ad_f$, ce qui est le cas ici, le temps de croissance est faible devant la durée de l'accélération x_0/V et les plissements ont le temps de se développer.

La comparaison des prédictions de (2.3) avec d'une part les temps de croissance τ mesurés sur l'évolution de l'amplitude A , et d'autre part une mesure des longueurs d'onde λ effectuée indépendamment sur les images, est menée sur la figure 2.4. On y voit que la magnitude et la variation de ces deux grandeurs sont en accord avec la théorie et confirment ainsi le mécanisme de déstabilisation inertielle.

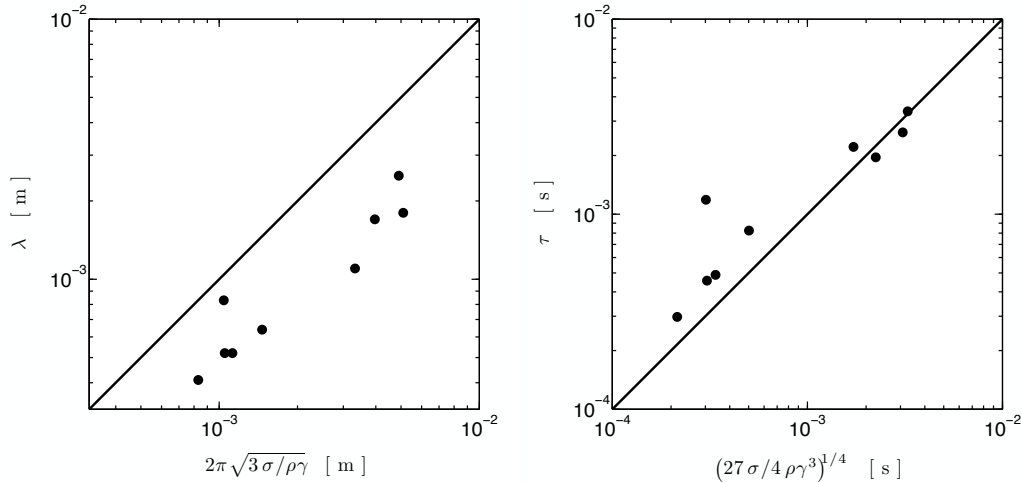


FIG. 2.4 – **Gauche** : Longueurs d'ondes λ mesurées sur les images, tel que sur la figure 2.1, en fonction des valeurs prédites par l'équation (2.3) (•). **Droite** : Temps de croissance de l'instabilité $\tau = 1/\omega$ mesurés comme sur la figure 2.2 en fonction des valeurs attendues de l'équation (2.3) (•).

2.4 Rayleigh-Taylor ou Plateau-Rayleigh ?

La forme adoptée par le bourrelet, où les portions les plus épaisses sont “à la traîne” des portions les plus fines, ainsi que l'accord relatif entre les observations et les lois (2.3) semblent tous deux confirmer le scénario d'une instabilité inertielle. Au vu de la forme cylindroïde du bourrelet, on pourrait néanmoins invoquer un autre mécanisme de déstabilisation conduisant à une accumulation périodique de matière : celui de *Plateau-Rayleigh* responsable de la modulation du diamètre d'un cylindre liquide.

Cette discussion sur le mécanisme responsable de la déstabilisation du bord d'un film liquide n'est pas nouvelle. Qu'il s'agisse d'une nappe formée par l'impact d'un ou plusieurs jets [42, 36, 29], par celui d'une goutte sur un solide, sur un bain liquide ou contre un courant gazeux [153, 198, 188] ou de façon plus générale qu'il s'agisse d'un bord libre rectiligne [71, 152], les mécanismes de *Rayleigh-Taylor* et *Plateau-Rayleigh* sont à chaque fois mis en compétition, et l'un des deux, plus instable que l'autre, est considéré responsable de la déstabilisation.

Dans le cas présent, en revanche, nous allons voir que la distinction entre les deux mécanismes est illusoire et ne peut en tous les cas être faite sur la base des mesures de la figure 2.4. L'explication en est immédiate : dans la limite d'un bourrelet massif initialement au repos que nous considérons (c'est-à-dire $x_0/h \gg 1$

et $V_0/V \ll 1$), l'épaisseur h ne fait plus partie du problème à temps court. En assimilant le bourrelet à un cylindre de rayon r_0 , ce dernier peut en effet être vu comme celui d'une masse linéique $\rho\pi r_0^2$ essentiellement constante, accélérée sous l'action de la force linéique constante 2σ . Les seules grandeurs physiques du problème sont alors ρ , σ et r_0 à partir desquelles on ne peut former qu'un temps T et une longueur L ; à savoir :

$$\begin{cases} \frac{1}{T} = \sqrt{\frac{\sigma}{\rho r_0^3}} \\ L = r_0 \end{cases} \quad (2.5)$$

On reconnaît là les lois d'échelle de l'instabilité de *Plateau-Rayleigh* [111], qui sont aussi celles de la déstabilisation inertielle comme on peut le vérifier en considérant $\gamma_0 = V^2/x_0$ et en réécrivant $hx_0 = \pi r_0^2$ dans l'équation (2.3).

En résumé, la géométrie du bord du film est celle d'un bourrelet massif, compact et initialement au repos, relié à un mince film du même liquide. La configuration n'est exactement ni celle d'un milieu semi-infini accéléré normalement à sa surface, ni celle d'un cylindre isolé et au repos, mais elle peut certainement être vue comme une "composition" des deux, où sont à l'œuvre deux types de déstabilisations : *Rayleigh-Taylor* et *Plateau-Rayleigh*. Les forces et les dimensions étant les mêmes pour chacune, les périodes spatiales sélectionnées et les temps de développement associés sont identiques d'un cas à l'autre. Il est alors peu surprenant que le résultat expérimental soit en accord avec les prévisions *concordantes* des deux mécanismes idéalisés, qui sont donc ici *intrinsèquement indiscernables*.

Chapitre 3

Battement d'un film, interaction avec le milieu environnant

Ce chapitre est lui aussi consacré à la fragmentation du bord d'un film qui se rétracte mais dans le cas plus général où le film est percé en un endroit quelconque. Les rayons de perçages sont inférieurs à $100h$ et la déstabilisation intervient cette fois-ci au bout d'une durée de l'ordre de 10^4 temps capillaires longue devant le temps d'accélération du bourrelet qui peut alors être négligé. Le mécanisme de déstabilisation repose sur deux ingrédients :

- le tensio-actif adsorbé en surface. Il provoque la mise en mouvement du film sur une couronne étendue, appelée *auréole* par McEntee & Mysels [129], et comprise entre le bord du trou et le front de l'onde de détente élastique se propageant plus rapidement (voir préambule section 1.2). On peut la voir comme un bourrelet étendu d'épaisseur comparable à h , et non plus concentré comme nous l'avons caricaturé précédemment, le long duquel le liquide est mis en mouvement progressivement. Cette auréole est aussi présente dans l'expérience du chapitre 2 mais n'y joue pas de rôle particulier car la déstabilisation est localisée au bord. Ici en revanche, elle représente l'écoulement de base sur lequel se développe l'instabilité.
- le milieu environnant, ici l'atmosphère. Il est essentiel puisqu'il participe à la déstabilisation par cisaillement du film de type *Kelvin-Helmoltz* dont la sélection de mode est l'effet de la tension de surface et non pas de l'épaisseur de la couche limite comme c'est le cas en pratique pour l'atomisation par co-courant gazeux [127].

L'apparition des indentations du bord du film est alors expliquée par une seconde instabilité, de type *Rayleigh-Taylor* en couche mince, asservie à la première car induite par les accélérations transverses au film associées à la propagation des ondes excitées par le cisaillement.

L'étude a fait l'objet de deux publications [107, 106] dans lesquelles les expériences et la théorie de la déstabilisation sont présentées. La première détaille l'écoulement de base de l'auréole et développe rapidement la fragmentation. La seconde se concentre sur la dynamique conduisant à la fragmentation qui est la contribution originale de cette étude. Leur présentation du travail effectué étant relativement

complète, ce chapitre se résumera à leur reproduction. On les introduira seulement en citant une référence historique qu'ils oublient à savoir l'observation par Joseph Plateau en 1873 [144] de la fragmentation d'un film plan qui éclate, au travers des gouttes récoltées sur un papier juxtaposé au film :

« Aussitôt la lame brisée, on enlevait l'anneau pour mieux observer les traces des gouttelettes; or, à travers les irrégularités qu'elles présentaient, on a nettement reconnu leur disposition en plusieurs séries distinctes, placées les unes derrière les autres par rapport au point de rupture. »

3.1 Article paru dans les *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences* [107]

Author's personal copy



Available online at www.sciencedirect.com



C. R. Mécanique 337 (2009) 469–480



Combustion for aerospace propulsion

Destabilization of flapping sheets: The surprising analogue of soap films

H. Lhuissier^a, E. Villermaux^{a,b,*}^a Aix-Marseille Université, IRPHE, 13384 Marseille cedex 13, France^b Institut Universitaire de France

Available online 22 July 2009

Abstract

When punctured, a uniform liquid sheet is known, since Taylor and Culick, to recess at a constant speed, balancing surface tension and inertia. For planar soap films, this steady solution holds until the initially smooth receding rim is violently destabilized, exhibiting deep indentations from which droplets are ejected. A surprising new three-dimensional mechanism explaining this destabilization and resulting wavelength has been demonstrated: because of the shear between the still outer medium and the receding liquid, the film flaps through a Kelvin–Helmholtz instability, itself inducing an acceleration perpendicular to the film, which intensifies with the flapping amplitude. To this acceleration is associated a classical Rayleigh–Taylor mechanism, promoting the rim indentations. **To cite this article:** H. Lhuissier, E. Villermaux, *C. R. Mécanique* 337 (2009).

© 2009 Published by Elsevier Masson SAS on behalf of Académie des sciences.

Keywords: Liquid films; Shear instability; Flapping; Rayleigh–Taylor instability; Atomization; Drops

1. Introduction

The transition from a compact macroscopic liquid volume to a set of dispersed smaller drops often involves as a transient stage the change of the liquid topology into a sheet shape. This transition is sometimes enforced by specific man-made devices, and also occurs spontaneously as a result of various impacts and blow-ups. An easy way to produce a spray, widely used in the context of liquid propulsion engines, is to form a liquid sheet by letting a jet impact a solid surface, or a facing alike jet (see Fig. 1).

The sheet, when the liquid is a uniform phase exempt from nucleation sites, disintegrates into drops by the destabilization of its edges. Pioneer works of Savart (1833) [2–4], and later Taylor (1959) [5,6] and Huang (1970) [7] essentially focused on the resulting sheet shape and its spatial extension. These depend on the impact Weber We formed from the ratio of the liquid inertia in a Galilean frame ρu^2 to the capillary restoring pressure σ/d where u is the velocity difference of the liquid stream with its surroundings, ρ its density, σ its surface tension and d some injection size

$$We = \frac{\rho u^2 d}{\sigma} \quad (1)$$

* Corresponding author.

E-mail addresses: lhuissier@irphe.univ-mrs.fr (H. Lhuissier), villermaux@irphe.univ-mrs.fr (E. Villermaux).

Author's personal copy

470

H. Lhuissier, E. Villermaux / C. R. Mecanique 337 (2009) 469–480

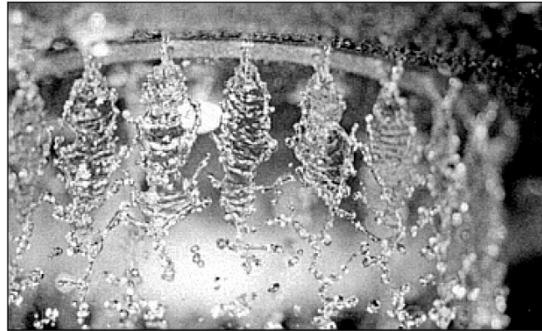


Fig. 1. Impacting jets in the combustion chamber of the gas generator of an industrial propulsion engine from SNECMA (see also [1]).

The sheet radial extension is either solely dependent on We , or depends both on We and on the ratio of the liquid to ambient gas densities $\alpha = \rho_a / \rho$. The transition occurs for [8]

$$We = \mathcal{O}(\alpha^{-1/2}) \quad (2)$$

Below this limit, the sheet is smooth, and above, it sustains a shear, flag-like Kelvin–Helmholtz type of instability resulting from a global coupling between the liquid and its environment, usually a gas phase (see Squire (1953) [9], also [10–13] and Fig. 2). The onset of this instability alters dramatically the fragmentation process of the sheet, leading to comparatively much finer drops whose ultimate formation process is still under debate [14].

The study of soap films has been conducted by a different school of thought, not immediately motivated by particular applications, and its experimental facet has really emerged with Ranz [16] and Mysels [17,18]. Much effort has been paid at understanding the different kind of waves a film can sustain [19] and at the hole opening dynamics, when the film is punctured. At the hole rim, surface tension forces are no longer balanced, driving a flow from the hole edge to the bulk of the film which is limited by liquid inertia. The long standing question of the exact value of the opening velocity was solved by Taylor [6] and Culick [20], after attempts by Dupré [21] and Rayleigh [22] using a flawed energy conservation approach.

Yet, if the question of the rim receding velocity is settled, the question of its stability is still unsolved. However, its ultimate destabilization is an obvious feature of the overall opening dynamics, as illustrated in Fig. 3, but its analysis has to date resisted a convincing representation, despite several attempts in related contexts aiming at describing a capillary instability of a Plateau–Rayleigh type of a thick cylindrical-like rim attached to a thin sheet.

We report in this article on novel observations suggesting that the phenomenology of flapping sheets from fan spray nozzles familiar in agricultural sewage or combustion chambers is, as surprising as it may be, the same as that of spontaneously bursting soap films.

2. Edge receding velocity

When an initially quiet liquid film is punctured, the equilibrium of surface tension forces in the plane of the film is broken. If the hole diameter is big enough (i.e. larger than the film thickness typically), the hole opens and the liquid constitutive of the film is collected in a growing rim at the border of the hole (Fig. 4).

Disregarding the details of the rim shape and assuming that it is sufficiently compact so that its center of mass can be confused with its edge, the opening dynamics of the hole derives from global mass and momentum conservations applied to the rim, following the classical description of Taylor (1959) [6] and Culick (1960) [20]. For a film of uniform thickness h , uniform surface tension σ , and liquid density ρ , these amount to

$$\frac{d}{dt}(x(t)\dot{x}(t)) = \frac{2\sigma}{\rho h} \quad (3)$$

where $x(t)$ stands for the location of the center of mass of the rim and for $x(0) = 0$ (i.e. with a vanishingly small initial mass). The factor 2 in Eq. (3) comes from the two sides of the film. The solution of (3) is a *constant* velocity

Author's personal copy

H. Lhuissier, E. Villermaux / C. R. Mecanique 337 (2009) 469–480

471

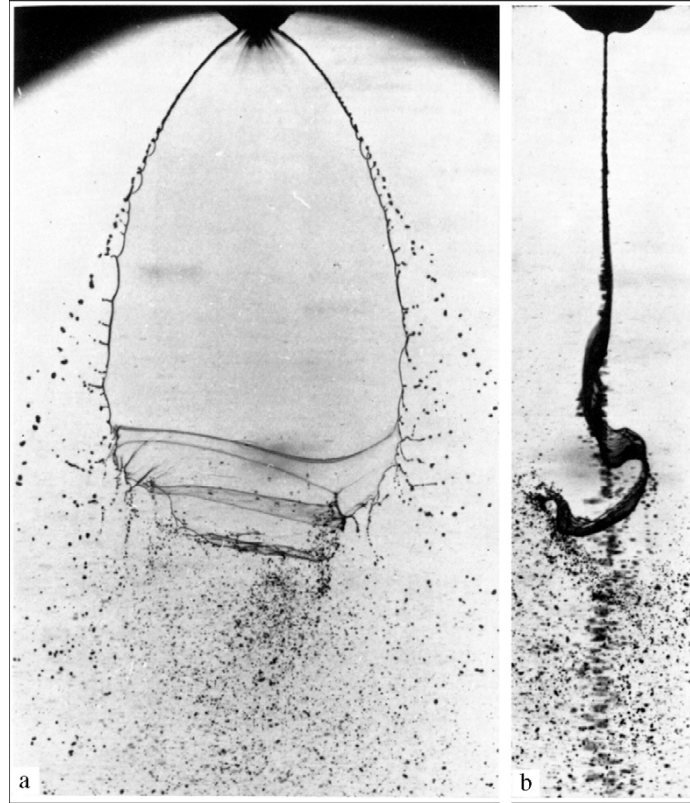


Fig. 2. Liquid sheet issuing from a fan spray nozzle ((a) front and (b) side views, reproduced from [15]) showing the flag instability characteristic of liquid sheets moving rapidly with respect to their environment (see also [8]).

$$V = \frac{x(t)}{t} = \sqrt{\frac{2\sigma}{\rho h}} \quad (4)$$

known as the *Taylor–Culick* velocity expressing a balance between a constant force 2σ applied to a growing mass $\rho hx(t)$. The relevance of this result for soap films was confirmed experimentally by McEntee and Mysels (1969) [17]. That velocity is considerable for thin films. For instance, a typical soap film is $h = 1 \mu\text{m}$ thick and recedes at $V = 6 \text{ m/s}$.

The time it takes for the rim to accelerate up to its limit speed V is of the order of several times h/V . In the experiment shown in Fig. 4, the film was pierced by a spark of typical size $10h$. As seen in Fig. 4, the rim has traveled by much more than 10 times the film thickness h while remaining smooth, so that this short acceleration period is actually negligible if one is interested in the later stages of the rim destabilization.

3. The picture *with* surfactant

The simple sketch recalled above consisting of a concentrated mass at the rim pulled by a constant force is relevant for pure liquids like water sheets [6,23]. However, when it is formed from a soap solution, the layer of surfactant at its surface confers to the sheet an original surface rheology which modifies drastically the rim shape, without altering the global mass and momentum balances, and therefore the limit receding velocity. The reason is that local surface tension on the film depends on the local surfactant concentration Γ [24]. Precisely, σ decreases typically when Γ increases: a compressed area of the film $\Gamma' > \Gamma$, as those close to the rim will thus have a tension σ' smaller that

Author's personal copy

472

H. Lhuissier, E. Villermaux / C. R. Mecanique 337 (2009) 469–480

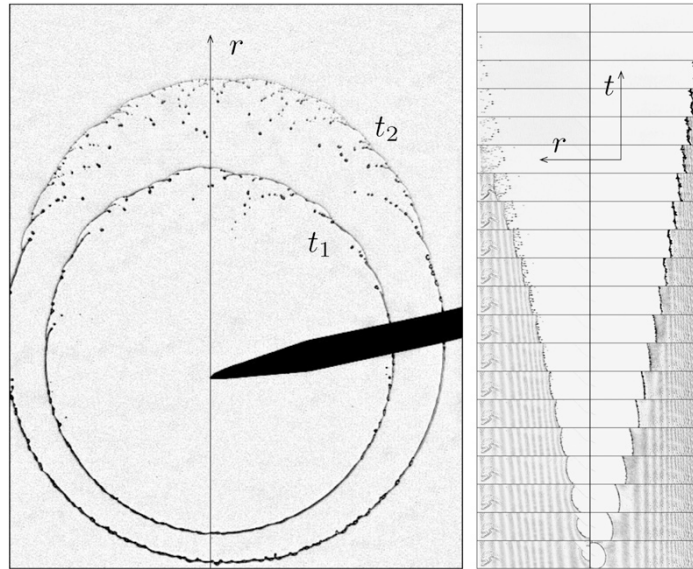


Fig. 3. Opening dynamics of a soap film standing vertically and punctured by a sharp object. Left: Front view showing how the hole has opened at two consecutive instants of time t_1 and t_2 , and how its rim progressively destabilizes. Right: Space time diagrams in the vertical direction towards the top and the bottom of the film evidencing acceleration of the rim towards the thinner regions of the film, and deceleration towards the thicker regions.

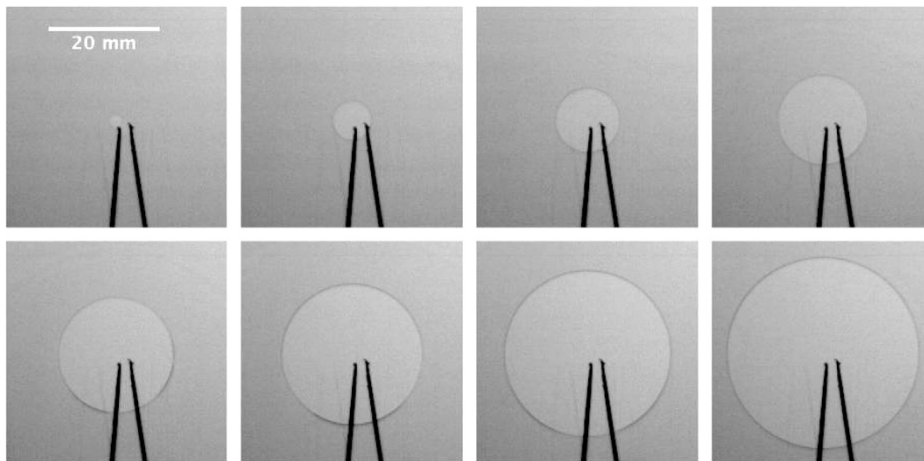


Fig. 4. Early stage of the opening of a soap film. Images are sampled every 200 μs.

those far from the rim σ given by the equilibrium concentration Γ . A net force $\sigma - \sigma'$ thus appears from the rim recession, which contributes to the liquid rearrangement in the rim.

The result is an *extended rim*, with fluid particles moving far ahead from the hole edge and a marching rim shape. The phenomenon can be quantified by an interferometric method as described below.

3.1. Experiments and observations

A solution of commercial surfactant (Dreft by Procter & Gamble, a mixture of non-ionic and anionic molecules) is diluted in tap water. The concentration in surfactant is always larger than the critical micelle concentration, a

Author's personal copy

H. Lhuissier, E. Villermaux / C. R. Mecanique 337 (2009) 469–480

473

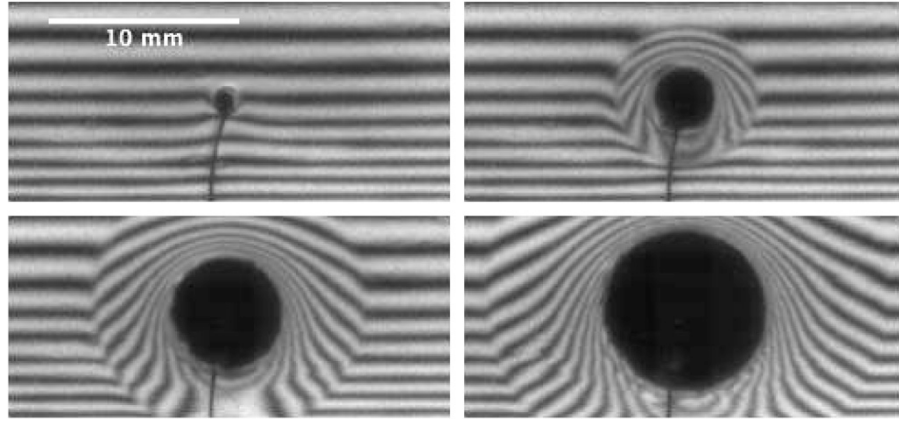


Fig. 5. Evidence of the aureole surrounding an opening hole in a flat soap film. The initial parallel interference fringes are perpendicular to gravity. Images are sampled every 320 μ s.

concentration above which aggregates (micelles) form and surface tension saturates. This ensure surface tension of the solution to have at saturation value $\sigma = 32 \times 10^{-3}$ N/m.

A 10×20 cm² aluminum frame is immersed into the solution and is pulled out slowly to form a flat rectangular soap film standing vertically in the gravity field. For the whole experiment, the frame supporting the film is kept in a vapor saturated atmosphere to prevent liquid evaporation.

The film is lit by a diffuse monochromatic source coming from a mono mode argon laser operating at wavelength $\lambda_l = 488$ nm. The beam is scattered by a lens to form a spot on a diffuser. Fringes are observed by reflexion over the film (see Fig. 5 and also [25]). They are either constructive or destructive interference fringes between rays that reflect on the upper film interface and those that are reflected by the rear interface. The difference of path length between the reflected rays depend on the local thickness h and thus a fringe traces locations of constant thickness. For a film lit under a weak incidence angle, the difference of film thickness between two consecutive black fringes is [26]

$$\Delta h = \frac{\lambda_l}{2n \cos r} \simeq \frac{\lambda_l}{2n} \quad (5)$$

where n is the refraction index of water and r is the refraction angle. The distance between two consecutive fringes is thus a direct measure of the local thickness gradient.

A sequence of the opening of such a soap film is shown in Fig. 5 taken with a Photron APX digital fast camera operating at 25 000 frames/s. The initial interference pattern in Fig. 5 shows that h is uniform along horizontal lines but varies with altitude (i.e. the direction where gravity points). Higher locations correspond to weaker gradients. This “Eiffel tower”-like thickness profile is a consequence of liquid drainage under gravity. The corresponding equilibrating surface tension gradient is however much weaker that the one generated by the hole opening, as Fig. 5 demonstrates also.

The film is punctured by an electric arc generated by a potential difference of several kVolts applied to two electrodes facing each other, one above and one behind the film. The hole nucleated by the arc grows with time, keeping a disk shape characteristic of an isotropic opening velocity V . Around the disk, a region of typical radial extent $L(t) \sim Vt$ develops, where the fringes pattern is modified. McEntee and Mysels (1969) [17] observed this region for the first time and called it the “aureole”, a crystal-clear term to depict Fig. 5.

A way to extract information from these movies is to focus on the horizontal segment starting at the puncture point which corresponds to an initially thick-uniform film section. A spatio-temporal diagram of the brightness pattern along this segment is shown on Fig. 6. On this diagram, horizontal distances from the left-hand border represent the spatial distance r from the piercing point, whereas vertical distances from the top border represent the time elapsed since the piercing instant.

Author's personal copy

474

H. Lhuissier, E. Villermaux / C. R. Mecanique 337 (2009) 469–480

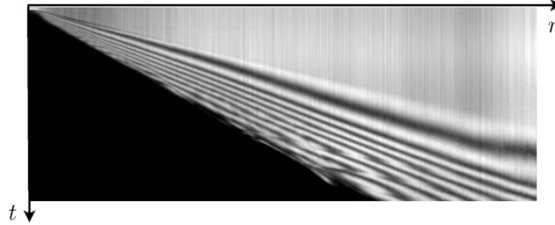


Fig. 6. Spatio-temporal diagram showing the evolution of an initially uniform film section. The top left corner is the piercing point. The width of the picture represents 4.5 cm and its height corresponds to 6.5 ms.

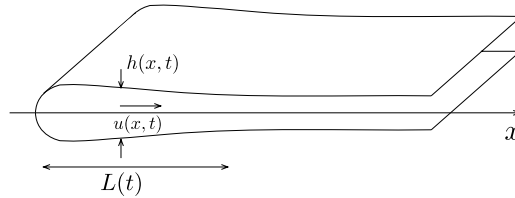


Fig. 7. Sketch of the rim shape, or aureole. The width $L(t)$ is proportional to the distance traveled by the edge Vt .

It is immediately clear on this (r, t) diagram that the trajectory of any iso-thickness path is straight. This means that their velocities in the laboratory frame of reference are constant in time. Each of those velocities is in addition easy to measure with a good accuracy.

From the disk opening velocity V given by Eq. (4), the value of the initial thickness h is measured. Since interference fringes provide an information on the relative thickness between different portions of the film only, this absolute thickness measurement is mandatory to reconstruct the thickness profile of the whole film from the complete interference pattern.

3.2. Driving forces and rim shape

The aureole has its origin in the surface tension gradients generated by the hole motion itself that surfactant solutions authorize, in contrast with pure liquids for which surface tension is a constant (albeit thermal effects which are absent here).

We will discuss the equations governing the base state of thickness and liquid velocity fields in the aureole in the one dimensional approximation (corresponding to the case of a rupture of the film along a straight line instead at in a point). This does not change the ingredients of the problem, but makes its exposition simpler.

At constant thickness, the problem presents a translation invariance along the rim direction (Fig. 7). That invariance is eventually broken by the development of the rim instability, which we will consider next. The physical scales of the problem are: $h \sim 1 \mu\text{m}$ (thickness), $L > 1 \text{ mm}$ (radial extent), $\rho = 10^3 \text{ kg m}^{-3}$ (liquid density), $\sigma = 32 \times 10^{-3} \text{ N m}^{-1}$ (surface tension of the soap solution at equilibrium), $\mu = 10^{-3} \text{ N m}^{-2} \text{ s}$ (liquid viscosity).

The starting point is that thickness gradients in the aureole, $h_x \sim h/L < 10^{-3}$ are weak. This legitimates a slender slope description, where averaged thickness $h(x, t)$ and velocity $u(x, t)$ profiles are seek for, with no explicit representation of the motion in the (small) direction perpendicular to the film (see e.g. [27]). For an incompressible liquid, the conservations laws are

$$h_t + (uh)_x = 0 \quad (6)$$

$$\rho h(u_t + uu_x) = f \quad (7)$$

where f stands for the resultant forces (by unit of length) applying to a film section. An order of magnitude estimate of the different forces involved in f is as follows:

Author's personal copy

H. Lhuissier, E. Villermaux / C. R. Mecanique 337 (2009) 469–480

475

- Surface tension itself (independently of its gradient) contributes through Laplace law (κ is the interface curvature) as

$$\sigma(h\kappa)_x \sim \frac{1}{2}\sigma(hh_{xx})_x \sim \frac{1}{2}\left(\frac{h}{L}\right)^3 \frac{\sigma}{h} \quad (8)$$

- Viscous effects, assuming a Newtonian viscous response, integrated over the film thickness arise through a Trouton term [27]

$$4\mu(hu_x)_x \sim \frac{8h_0}{L^2} \frac{\mu}{\sqrt{2\sigma\rho h_0}} \sigma \sim 8Oh\left(\frac{h}{L}\right)^2 \frac{\sigma}{h} \quad (9)$$

where the Ohnesorge number $Oh = \mu/(\sqrt{2\sigma\rho h})$ is the ratio of surface tension forces to viscous dissipation forces and is of the order of 10^{-1} to 1 in the present case.

- Lastly, the stress resulting from the gradient of surfactant concentration, sometimes referred to as a Marangoni stress gives a contribution

$$\left(\frac{2\sigma}{\sqrt{1+h_x^2}}\right)_x \sim 2\left(\frac{h}{L}\right) \frac{\sigma}{h} \quad (10)$$

With $h/L < 10^{-3}$, it is clear that the last term dominates over the others. If one moreover assumes that surfactant molecules have no time to reorganize at the interface and are advected in a passive way with the fluid (see e.g. [28]), one has $d \ln \Gamma = d \ln h$. This provides a new set of equations in place of (6) and (7)

$$h_t + uh_x = -hu_x \quad (11)$$

$$u_t + uu_x = \frac{2\sigma_x}{\rho h} \quad (12)$$

with

$$\frac{2\sigma_x}{\rho h} = -\left(\frac{E}{\rho h^3}\right)hh_x \quad (13)$$

where E , possibly depending on h , is a Marangoni elasticity module

$$E = -2\frac{d\sigma}{d \ln \Gamma} = -2\frac{d\sigma}{d \ln h} \quad (14)$$

The origin of this surface elasticity is that surface tension σ decreases as the surface concentration of surfactant Γ increases. Rim recession induces a contraction of area in the film plane, and thus a local decrease of σ , hence the net force in (12) which appears to be, owing to the order of magnitude estimates made above, the dominant driving force. The system of Eqs. (11) and (12) was solved by Frankel and Mysels (1969) [18] using the methods of characteristics.

The first result is that for unidimensional receding aureoles, solutions depend on the law $\sigma(h)$ only. They have the self-similar form

$$\begin{cases} h(x, t) = h\mathcal{F}\left(\frac{x}{Vt}\right) \\ u(x, t) = V\mathcal{G}\left(\frac{x}{Vt}\right) \end{cases} \quad (15)$$

where \mathcal{F} and \mathcal{G} are functions depending on the details of the $\sigma(h)$ dependence. Although technically more complex in the axi-symmetrical coordinates relevant to a punctual piercing with radial expansion along r , the solutions are also self similar in r/Vt , consistently with the measurements shown in the next section.

The second result is that the rim receding velocity V is almost not affected by the dependence $\sigma(h)$, which nevertheless is responsible for the existence of an aureole. This was checked by McEntee and Mysels [17] since their empirical confirmation of the Taylor–Culick prediction for V was carried out on soap films.

Author's personal copy

476

H. Lhuissier, E. Villermaux / C. R. Mecanique 337 (2009) 469–480

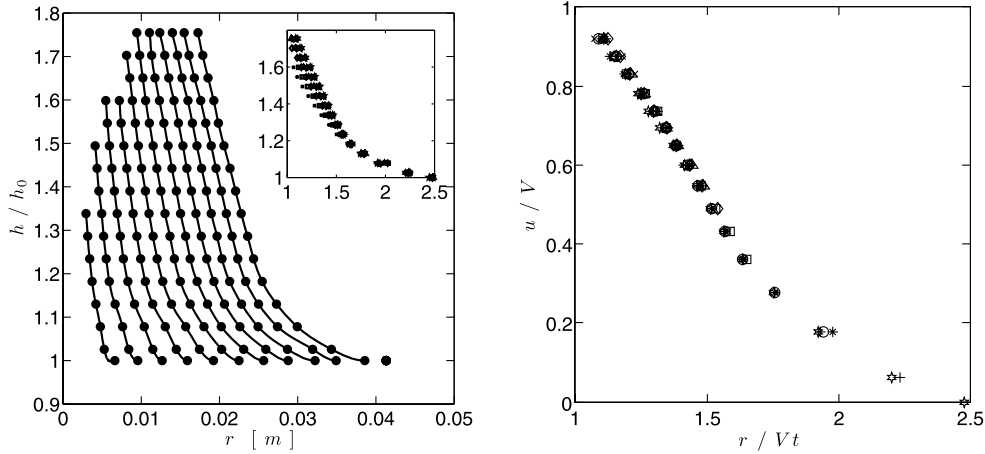


Fig. 8. Left: Thickness profiles of the aureole at successive instants of the bursting sampled every 320 μ s. Dots represent measurements and lines are meant to guide the eyes. Insert: the same profiles plotted versus r/Vt . Right: Liquid velocity profiles of the aureole at successive instants of the bursting versus radius r scaled by the current edge position Vt sampled every 320 μ s.

3.3. Measurements

Radial thickness profiles of the aureole $h(r, t)$ were computed from fringes patterns at distinct times t and are plotted in Fig. 8. They exhibit the expected similar shape (hence giving a direct measurement of the function \mathcal{F}) as well as a saturation of the maximal thickness we were able to measure close to the rim edge at $h(0) \approx 2h$. This may be indicative of the maximal compression ratio the sheet is able to sustain.

The liquid velocity can also be reconstructed, using mass conservation in the axi-symmetrical case

$$u(r, t) = \frac{1}{hr} \int_r^{r_0} \frac{\partial h}{\partial t} r \, dr \quad (16)$$

where r_0 is a radial location far from the rim, in the unperturbed region of the film. The obtained velocity profiles are shown in Fig. 8. They are plotted versus r scaled by the current edge position Vt . Their superposition on a same curve is a direct proof of their self similarity, defining experimentally the function \mathcal{G} introduced in Eq. (15). From the film edge moving at V to the limit of the aureole moving 2.5 times faster, the liquid velocity u has decreased from V to 0, since the unperturbed portion of the film is not, by definition, set into motion yet.

4. Flapping

The existence of an extended rim, or aureole, genuine to soap films as described above has a direct consequence on their stability. Precisely, the liquid is set into motion far ahead from the rim edge, and thus sustains a shear with the surrounding medium for an ever longer radial distance, of the order of $L(t)$ as time elapses. This shear, as it is known since Squire (1953) [9], potentially leads to an instability. This remark, illustrated below is, to our knowledge, new in the context of soap films.

That shear instability, of a standard Kelvin–Helmholtz type, sustains two different modes, a varicose mode in which both interfaces move in phase opposition and a sinuous mode (flapping) in which they move in phase. The latter is the most amplified [8].

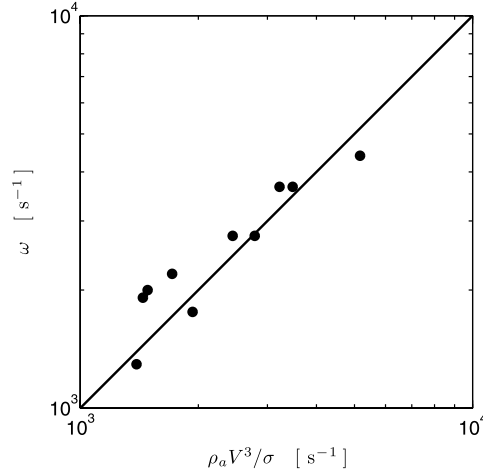
A fundamental difference with the pure Kelvin–Helmholtz instability between two infinite phases is related to the finite thickness h of the film, sandwiched between two lighter infinite phases, since instability can only develop in that case above a threshold given by

$$We = \frac{\rho u(x, t)^2 h(x, t)}{\sigma(h)} > 2 \quad (17)$$

Author's personal copy

H. Lhuissier, E. Villermaux / C. R. Mecanique 337 (2009) 469–480

477

Fig. 9. Flapping pulsation ω versus $\rho_a V^3 / \sigma$.

where $u(x, t)$ is the velocity difference between the film and the outer light (in the present case air) still phase. This threshold simply expresses that the local velocity difference $u(x, t)$ should be at least equal to $\sqrt{2\sigma(h)/\rho h}$ for instability to occur.

Obviously, there is a region close to the rim edge where this condition is likely to be satisfied. There, the film thickness is larger than h and the local surface tension $\sigma(h)$ is lower than σ , while $u(x, t)$ is of the order of V (see Fig. 8). This region defines the unstable zone, in the sense of Squire according to the criterion in Eq. (17).

Experiments clearly show that the edge of a receding soap film flaps (see Fig. 10) in a way reminiscent of the well known flapping sheets of uniform velocity, and surface tension (see Fig. 2). Two flapping waves also appear in Fig. 6 as a perturbation of the self similar pattern. They birth in the unperturbed region of the film, and their amplitude peaks at the edge. Assuming, for simplicity, an infinite, uniform film of thickness h in relative motion at velocity $u(x, t) \approx V$ with an air environment of density ρ_a , the most amplified wavelength and the pulsation scales are [8]

$$\begin{cases} \lambda \sim \frac{\sigma}{\rho_a V^2} \sim \frac{\rho}{\rho_a} h \\ \omega \sim \frac{V}{\lambda} \sim \frac{\rho_a V^3}{\sigma} \end{cases} \quad (18)$$

Measurements of the flapping pulsation in air under standard temperature and pressure conditions for which $\rho_a = 1.2 \text{ kg m}^{-3}$ are shown in Fig. 9. The pulsation (or flapping) frequency follows the anticipated trend in Eq. (18) in law, and in absolute value, thus supporting the scenario rooted on a shear instability we have proposed.

5. Rim indentations

When observed over a longer time period than the one in Fig. 4, a bursting soap film will be seen to suddenly destabilize. Indentations pointing toward the center of the hole appear on the formerly smooth edge, becoming the ejection sites of liquid ligaments which later pinch off to form the final spray. A sequence of this phenomenon is presented on Fig. 10. The phenomenon has been known for a while, and the flapping mechanism provides a clue to understanding it. The scenario for the formation of the indentations transverse to the rim derives from the “wavy corridor” mechanism imagined by Bremond et al. [14] for the destabilization of undulating Savart sheets. The wavy pattern consecutive of the flapping instability propagates at a group velocity proportional to V on the film. A fluid particle in the flapping region thus experiences transient accelerations perpendicular to the film plane (whose intensity is $\gamma = a\omega^2$ for a flapping amplitude a) as the wave propagates. This, in turn, initiates a *Rayleigh–Taylor* instability of the film which causes film thickness modulations at a transverse wavelength λ_{\perp} , precursors of the rim indentations visible in Fig. 10. The full mechanism is thus a succession of two destabilizations of the film. The first shear instability

Author's personal copy

478

H. Lhuissier, E. Villermaux / C. R. Mecanique 337 (2009) 469–480

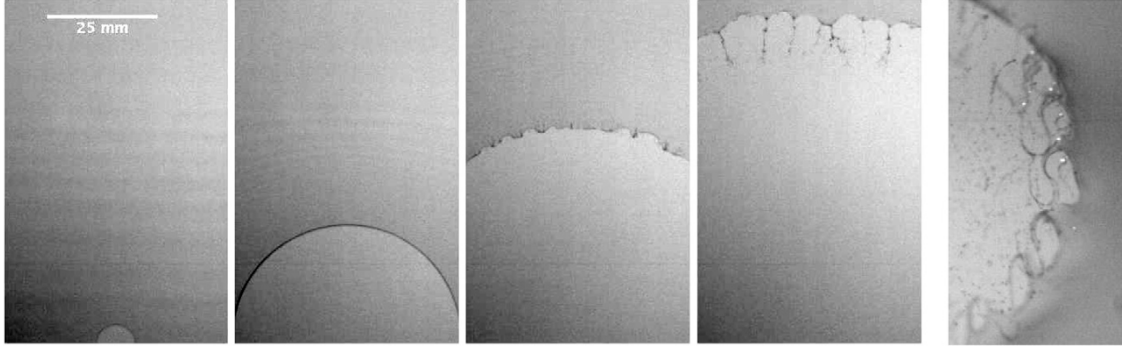


Fig. 10. Left: Evidence of the rim destabilization in a soap film. Images are sampled every 6.7 ms. Right: Snapshot emphasizing on indentations. Note the arabesques, ligaments detaching from the rim as they flap like a whip.

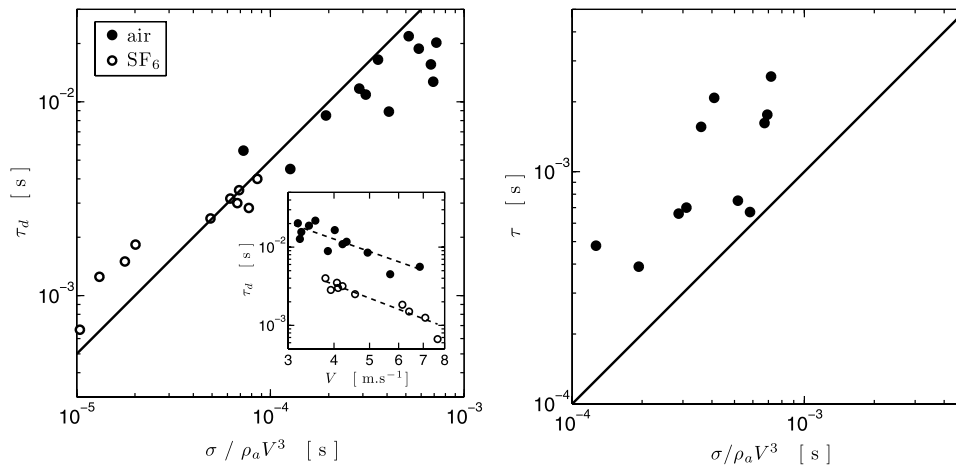


Fig. 11. Left: Delay time τ_d before destabilization occurs versus $\sigma/\rho_a V^3$. Insert: the same data plotted versus V . Right: Characteristic indentations growth time τ versus $\sigma/\rho_a V^3$.

breaks the symmetry with respect to the film median plane, and a second inertial instability of the undulating substrate breaks the axial-symmetry by forming indentations.

Let s be the growth rate of the transverse, Rayleigh–Taylor instability for a given flapping pulsation, wave amplitude, and film thickness. The transverse indentation will onset as soon as the permanence time of the acceleration perpendicular to the film ω^{-1} will be at least equal to the instability development time s^{-1} . The transverse instability criterion is thus [8,14]

$$\omega = s \quad (19)$$

also providing an estimate for the *delay time* before the onset of indentations τ_d , and for the time of growth of the indentation amplitude τ which are both expected to scale like ω^{-1} i.e.

$$\tau_d \sim \tau \sim \omega^{-1} \quad (20)$$

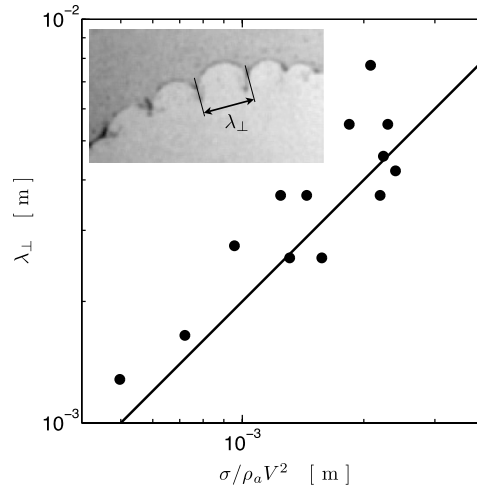
These expectations have been tested experimentally using two different surrounding atmospheres in order to check the role of the density ratio ρ_a/ρ . We bursted soap films both into air and into hexafluorosulfur (SF_6), whose density under standard conditions is 5 times that of air.

Films receding at a same given velocity were seen to develop indentations after a shorter delay τ_d when bursting into SF_6 than when bursting into air, as expected according to Eq. (18). This fundamental observation demonstrates

Author's personal copy

H. Lhuissier, E. Villermaux / C. R. Mecanique 337 (2009) 469–480

479

Fig. 12. Indentations transverse wavelength λ_{\perp} as defined in the insert, versus $\sigma/\rho_a V^2$.

that the rim instability is directly influenced by the outer medium. Measurements are presented on Fig. 11. Both τ_d and τ are increasing functions of $\sigma/\rho_a V^3$, with however a somewhat weaker trend than the one anticipated from Eq. (18).

The transverse Rayleigh–Taylor instability of the rim is rooted in the transient accelerations experienced by the liquid as it flows through the primary wavy pattern of the sheet. Let γ be the intensity of this acceleration. The cut-off wavenumber of the instability is $k_c = \sqrt{\rho\gamma/\sigma}$. If $k_c h \gg 1$, the instability growth rate is $s \sim \sqrt{\gamma/\lambda_{\perp}}$ with $\lambda_{\perp} \sim \sqrt{\sigma/\rho\gamma}$. In the opposite limit i.e. when $k_c h \ll 1$, the growth rate s as well as λ_{\perp} now depend on the film thickness as [14]

$$s = \sqrt{\frac{\gamma}{\lambda_{\perp}}} \sim \sqrt{\frac{\rho\gamma^2 h}{\sigma}} \quad \text{and} \quad \lambda_{\perp} \sim (k_c^2 h)^{-1} \quad (21)$$

This limit is by far the relevant one here (see Figs. 10 and 12) so that $\lambda_{\perp}^2 h \sim \sigma/\rho s^2$ providing, with $s \sim \omega \sim \rho_a V^3/\sigma$ and $h \sim \sigma/\rho V^2$

$$\lambda_{\perp} \sim \lambda \quad (22)$$

The primary undulation and secondary indentation patterns have alike lengthscales, representing a strong dependence of λ_{\perp} on V indeed observed experimentally in trend, and absolute values as seen in Fig. 12.

6. Conclusion

The set of observations reported here have demonstrated the direct coupling between the destabilization of a receding rim in a soap film, and the medium in which it bursts. That observation is original in the context of soap films and is a consequence of a flapping instability of the extended aureole that forms as a punctured hole opens. That flapping induces a secondary Rayleigh–Taylor type of instability of the rim, explaining the birth of its transverse indentations. The phenomenon is surprisingly analogue to the well known flapping regime of liquid sheets, and has been analyzed along the same lines.

The flapping mechanism, discovered and documented here, also answers the unsolved question of the *ejection angle* of the drops released by the rim. De Gennes (1996) [29] has proposed that the drops are ejected at an angle with respect to the film plane because the rim edge is a stagnation point the drops avoid while keeping their kinetic energy. The present vision rather suggests that drops are ejected by ligaments which flap like whips (this is obvious in Fig. 10), spreading out the drops out of the film plane.

The structure of the spray and resulting drop size distribution is left for future work.

Author's personal copy

480

H. Lhuissier, E. Villermaux / C. R. Mecanique 337 (2009) 469–480

References

- [1] N. Bremond, E. Villermaux, Atomization by jet impact, *J. Fluid Mech.* 549 (2006) 273–306.
- [2] F. Savart, Mémoire sur le choc de deux veines liquides animées de mouvements directement opposés, *Ann. Chim.* 55 (1833) 257–310.
- [3] F. Savart, Mémoire sur le choc d'une veine liquide lancée sur un plan circulaire, *Ann. Chim.* 54 (1833) 56–87.
- [4] F. Savart, Suite du mémoire sur le choc d'une veine liquide lancée sur un plan circulaire, *Ann. Chim.* 54 (1833) 113–145.
- [5] G.I. Taylor, The dynamics of thin sheets of fluid. ii. Waves on fluid sheets, *Proc. R. Soc. London* 253 (1959) 296–312.
- [6] G.I. Taylor, The dynamics of thin sheets of fluid. iii. Disintegration of fluid sheets, *Proc. R. Soc. London* 253 (1959) 313–321.
- [7] J.C.P. Huang, The break-up of axisymmetric liquid sheets, *J. Fluid Mech.* 43 (1970) 305–319.
- [8] E. Villermaux, C. Clanet, Life of a flapping liquid sheet, *J. Fluid Mech.* 462 (2002) 341–363.
- [9] H.B. Squire, Investigation of the stability of a moving liquid film, *British J. Appl. Phys.* 4 (1953) 167–169.
- [10] J.L. York, H.E. Stubbs, M.R. Tek, The mechanism of disintegration of liquid sheets, *Trans. ASME* (1953) 1279–1286.
- [11] W.W. Hagerty, J.F. Shea, A study of the stability of plane fluid sheets, *J. Appl. Mech.* 22 (1955) 509–514.
- [12] G.I. Taylor, Formation of thin flat sheets of water, *Proc. R. Soc. London* 259 (1960) 1–17.
- [13] S.P. Lin, *Breakup of Liquid Sheets and Jets*, Cambridge University Press, 2003.
- [14] N. Bremond, C. Clanet, E. Villermaux, Atomization of undulated liquid sheets, *J. Fluid Mech.* 585 (2007) 421–456.
- [15] G.D. Crapper, N. Dombrowski, W.P. Jepson, G.A.D. Pyott, A note on the growth of Kelvin–Helmholtz waves on thin liquid sheets, *J. Fluid Mech.* 57 (1973) 671–672.
- [16] W.E. Ranz, Some experiments on the dynamics of liquid films, *J. Appl. Phys.* 30 (1959) 1950.
- [17] W.R. McEntee, K.J. Mysels, The bursting of soap films. i. An experimental study, *J. Phys. Chem.* 73 (1969) 3018–3028.
- [18] S. Frankel, K.J. Mysels, The bursting of soap films. ii. Theoretical considerations, *J. Phys. Chem.* 73 (1969) 3028–3038.
- [19] E.H. Lucassen-Reynders, J. Lucassen, Properties of capillary waves, *Adv. Colloid Interface Sci.* 2 (1969) 347–395.
- [20] F.E.C. Culick, Comments on a ruptured soap film, *J. Appl. Phys.* 31 (1960) 1128.
- [21] A. Dupré, Théorie mécanique de la chaleur, *Ann. Chim. Phys.* 11 (1868) 194.
- [22] L. Rayleigh, Some applications of photography, *Nature XLIV* (1891) 249–254.
- [23] C. Clanet, E. Villermaux, Life of a smooth liquid sheet, *J. Fluid Mech.* 462 (2002) 307–340.
- [24] R. Fowler, E.A. Guggenheim, *Statistical Thermodynamics*, Cambridge University Press, UK, 1952.
- [25] N.Y. Liang, C.K. Chan, H.J. Choi, Dynamics of the formation of an aureole in the bursting of soap films, *Phys. Rev. E* 54 (4) (1996) R3117–R3120.
- [26] C. Isenberg, *The Science of Soap Films and Soap Bubbles*, Dover, 1992.
- [27] J. Eggers, E. Villermaux, Physics of liquid jets, *Rep. Prog. Phys.* 71 (2008) 036601.
- [28] P. Marmottant, E. Villermaux, C. Clanet, Transient surface tension of an expanding liquid sheet, *J. Colloid Interface* 230 (2000) 29–40.
- [29] P.G. de Gennes, Mechanics of soft interfaces, *Faraday Discuss.* 104 (1996) 1–8.

3.2 Article paru dans *Physical Review Letters* [106]

Soap Films Burst Like Flapping Flags

Henri Lhuissier and Emmanuel Villermaux*

Aix-Marseille Université, IRPHE, 13384 Marseille Cedex 13, France

(Received 4 February 2009; published 28 July 2009)

When punctured, a flat soap film bursts by opening a hole driven by liquid surface tension. The hole rim does not, however, remain smooth but soon develops indentations at the tip of which ligaments form, ultimately breaking and leaving the initially connex film into a mist of disjointed drops. We report on original observations showing that these indentations result from a flaglike instability between the film and the surrounding atmosphere inducing an oscillatory motion out of its plane. Just like a flag edge flaps in the wind, the film is successively accelerated on both sides perpendicularly to its plane, inducing film thickness modulations and centrifuging liquid ligaments that finally pinch off to form the observed spray. This effect exemplifies how the dynamics of fragile objects such as thin liquid films is sensitive to their embedding medium.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.103.054501

PACS numbers: 47.55.nm, 47.20.Dr, 47.20.Ft, 47.20.Ma

The speed at which a hole opens in a punctured soap film has been the subject of an interesting debate starting with Dupré (1868) [1] and Rayleigh (1891) [2] and ending with Taylor (1959) [3] and Culick (1960) [4]: Unbalanced surface tension forces at the hole edge set into motion the interstitial liquid within the film, and the constant receding velocity results from mass and momentum balances. However, most of the early contemplators of soap films [5,6] paid little attention to the fragmentation of the film itself, which resolves into a mist of fine droplets which one can see as they remain suspended in the air after bursting. The fact that the film rim does not remain smooth as it recedes but becomes indented was already visible in pictures by Rayleigh [2] and Ranz [7], but it is McEntee and Mysels [8] who really identified these “fingers” as the objects responsible for the ejection of drops from the rim.

When an initially quiet soap film is punctured, the equilibrium of surface tension forces in the plane of the film is broken. Soap films are formed by pulling a rigid frame out of a solution of commercial detergent “Dreft” by Procter & Gamble into tap water at a concentration above the critical micellar concentration with $\sigma_0 \approx 0.032 \text{ N m}^{-1}$, and addition of disodium fluorescein when liquid fluorescence is needed. Bursting is performed into a vapor saturated atmosphere, recorded by a Photron digital camera with framing rate between 12 500 and 25 000 s^{-1} . Film thicknesses h_0 at bursting range from 1 to 10 μm . If the initial hole diameter is typically larger than the film thickness, the hole opens, collecting the liquid constitutive of the film into a growing rim at its border, as seen in Fig. 1. For a film of thickness h_0 , surface tension σ_0 , and density ρ , the receding velocity is known as the Taylor-Culick velocity [3,4] $V = \sqrt{2\sigma_0/\rho h_0}$. This sketch, which assumes a compact rim whose mass is concentrated at the edge, is relevant to pure water films [9–11] and predicts an accurate receding velocity for both pure water films [3] and soap films [8], the effect of the environment drag being sensitive

for very thin films ($h_0 < 0.1 \mu\text{m}$) only [12,13]. When observed on a longer time period, the rim is seen to indent spontaneously, a phenomenon which has been thought to result from some instability intrinsic to the recession kinetics itself [8,14]. However, if the phenomenon is contemplated from a different perspective than the traditional frontal point of view, namely, if one looks at an angle, one discovers the existence of motions of the film perpendicular to its plane in an oscillatory, flappinglike fashion. The flapping motion is obvious in the detailed lateral view of Fig. 1 and in Fig. 2. The striking similarity of Fig. 2 with flags and sails flapping in the wind strongly suggests that an interaction with the surrounding atmosphere has to be considered at the root of the phenomenon [15]. The similarity with the flapping of rapidly moving liquid sheets in a quiet gaseous phase, familiar in the liquid atomization context [16–18], is even stronger.

The origin of the soap film flapping is indeed a shear instability with the outer medium and results from the velocity difference between the moving film and the atmosphere at rest. The tangential velocity difference between both phases amplifies crest and trough amplitudes on both liquid-gas interfaces of the film. This coupling, of a Kelvin-Helmholtz type [16], allows for two distinct modes: a varicose one, in which both interfaces are in phase opposition and the film thickness modulates, and a sinuous one, in which interfaces are in phase and oscillate the film at constant thickness—this is the *flapping mode*. For all wavelengths, the flapping mode is always dominant [16,19]. Its most amplified wavelength λ and pulsation ω can be inferred by assuming, for simplicity, an infinite, uniform film of thickness h_0 in relative motion at velocity V with an outer environment of density ρ_a (the relevance of these hypotheses is discussed below)

$$\lambda \sim \frac{\sigma_0}{\rho_a V^2} \quad \text{and} \quad \omega \sim \frac{V}{\lambda} \sim \frac{\rho_a V^3}{\sigma_0}. \quad (1)$$

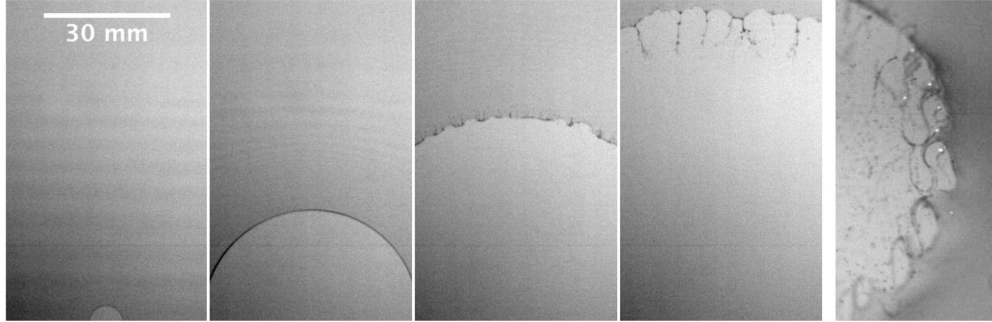


FIG. 1. Destabilization of a soap film receding edge. Left: Sequence of the opening of a soap film punctured by the projection of a spark. In the two first images, the film edge is smooth. Growing corrugations appear in the third image and reach a saturated size. Indentations (or fingers) obvious in the last image are ligaments draining the liquid and continually pinching off to form the resulting mist. Images are sampled every 6.7 ms. Right: Snapshot emphasizing on indentations. Note the arabesques, ligaments detaching from the rim as they flap like a whip.

Figure 2 shows experimental measurements of the flapping pulsation in ambient air. Both the trend and the absolute values follow the anticipated scaling law in Eq. (1), giving support to the shear instability scenario. A further confirmation of the role played by the outer medium is provided by the study of the delay time for the onset of rim indentations, that we conducted into two distinct atmospheres. We bursted soap films not only in air but also in sulfur hexafluoride (SF_6), a gas 5 times denser than air at atmospheric pressure, and we measured the delay time τ_d for the indentations depicted in Fig. 1 to appear. Figure 3 shows a plot of this delay time τ_d against the receding velocity V for both atmospheres. A fact immediately obvious is that the rim destabilization develops earlier in a denser atmosphere, everything else being identical since to one receding velocity V is associated a unique film thickness h_0 . A precise interpretation of the dependence of τ_d on ρ_a requires understanding how those indentations form. We suggest an analogy with the “wavy corridor” mechanism proposed in the context of liquid sheets fragmentation [19,20].

The wavy pattern consecutive of the flapping instability propagates at a group velocity proportional to V on the film. A fluid particle in the flapping region thus experiences transient accelerations perpendicular to the film plane (whose intensity is $\gamma = a\omega^2$ for a flapping amplitude a) as the wave propagates. This, in turn, initiates a Rayleigh-Taylor instability of the film which causes film thickness modulations at a transverse wavelength λ_\perp , precursors of the rim indentations visible in Fig. 1. The full mechanism is thus a succession of two destabilizations of the film. The first shear instability breaks the symmetry with respect to the film median plane, and a second inertial instability of the undulating substrate breaks the azimuthal invariance by forming indentations. This last destabilization is not instantaneous, as Fig. 1 clearly shows. The rim remains smooth during an initial transient (lasting τ_d), and it then

suddenly corrugates to form the fingers from which droplets are ejected. Flapping is, however, present almost since the beginning of the hole opening, but its amplitude a is not strong enough to trigger thickness modulations within the acceleration permanency time, of the order of ω^{-1} . The delay τ_d is scaling like the flapping instability growth time τ , itself given by ω^{-1} , as it is standard for all shear instabilities whose growth is controlled by the linear development stage before saturation. Assuming a plausible initial noise amplitude on the film of $a_0 \sim 10^{-8}$ m for a wavelength $\lambda \sim 1$ mm, the delay time required to reach the rupture amplitude $a \sim 10^{-3}$ m suggested by Fig. 2 is close to $5 \ln(10)\tau$. During this growth period, an unstable shear wave must have been traveling (with celerity of order V) within the unstable interval of the aureole, whose width is about $Vt/4$ [21]. Thus, $V \times 5 \ln(10)\tau = V\tau_d/4$, that is, $\tau_d \approx 20 \ln(10)\tau \approx 50\omega^{-1}$. As seen in Fig. 3, a good collapse is obtained for both atmospheres according to the expected trend when ρ_a has varied by a factor of 5, with a prefactor of the order of 50 between τ_d and ω^{-1} .

Once the nature of the rim destabilization is understood, a prediction on its azimuthal wavelength λ_\perp can be made. The transverse accelerations γ perpendicular to the film and associated capillary wave number $k_{\perp c} = \sqrt{\rho\gamma/\sigma}$ are such that $h_0 k_{\perp c} \ll 1$ (Figs. 1 and 4). In that case, the modified Rayleigh-Taylor instability accounting for the finite film thickness [22] leads to a most amplified wavelength λ_\perp and growth rate τ_\perp^{-1} given by

$$\frac{1}{\tau_\perp} = \sqrt{\frac{\gamma}{\lambda_\perp}} \sim \sqrt{\frac{\rho\gamma^2 h_0}{\sigma_0}} \quad \text{and} \quad \lambda_\perp \sim (k_{\perp c}^2 h_0)^{-1}. \quad (2)$$

The onset for the secondary wavy corridor mechanism occurs when $\tau_\perp \sim \omega^{-1}$, expressing that its growth time must match the permanence time of the acceleration imposed by the flapping motion [19], giving

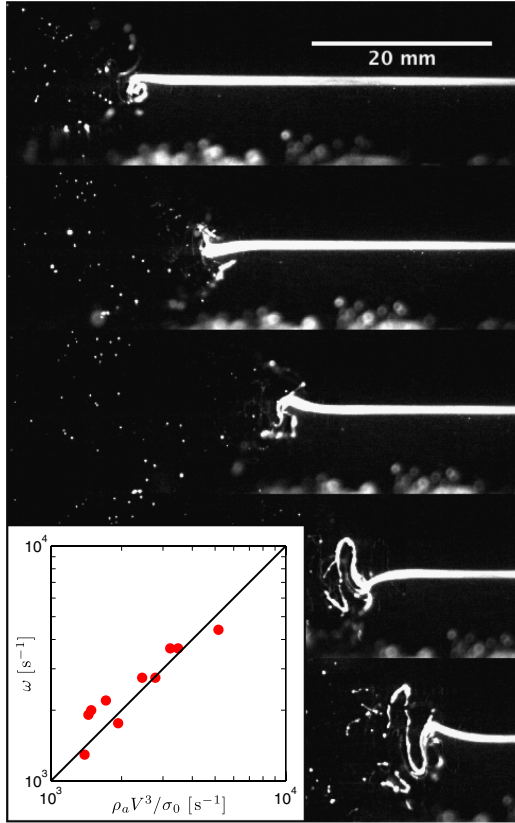


FIG. 2 (color online). Flapping motion. Main: Sequence of a flapping receding soap film from a lateral view. A laser sheet under normal incidence lights the fluorescent film emphasizing the out of plane motions. The initially flat film is punctured on the left-hand side and, as it recedes, initiates a characteristic flapping motion close to its edge which grows in amplitude. Images are sampled every 2.3 ms. Inset: Flapping pulsation ω versus $\rho_a V^3/\sigma_0$, where ρ_a is the outer medium density. The solid line is the expected scaling law in Eq. (1).

$$\lambda_{\perp} \sim \sqrt{\frac{\sigma_0 \tau_{\perp}^2}{\rho h_0}} = \frac{V}{\omega} = \lambda. \quad (3)$$

The experimental measurements of λ_{\perp} reported in Fig. 4 are, within some scatter, consistent with this trend.

The success of the vision that we have proposed to explain both film flapping and consecutive indentations must not hide the subtle discussion which legitimates its use in practice. By contrast with the classical Kelvin-Helmholtz waves developing at the interface between two infinite media with velocity difference u , the case of a film with finite thickness h moving at speed u and sandwiched between two infinite media presents a threshold above which destabilization can occur. That threshold

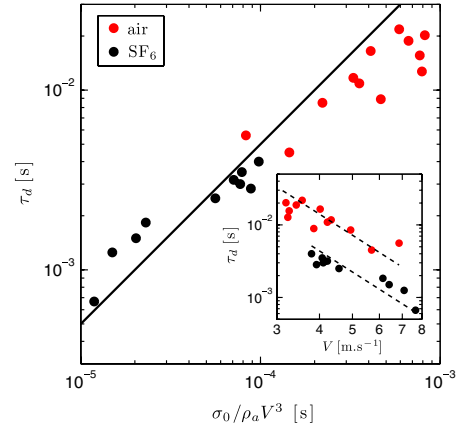


FIG. 3 (color online). Influence of the outer medium density. Inset: Delay time τ_d before rim destabilization versus receding velocity V for films bursting in air and in sulfur hexafluoride (SF_6). The dotted lines have a slope -3 . Main: Delay τ_d versus $\sigma_0/\rho_a V^3$; the solid line is the expected scaling law.

expresses [16,19] that the Weber number

$$\text{We} = \frac{\rho h u^2}{\sigma} \quad (4)$$

should be larger than 2. However, the sketch of a concentrated rim with $u = V$ and $\sigma = \sigma_0$ predicts exactly a marginally critical state of the film with respect to the flapping instability since $\text{We} = 2$ for that motion. As it is, the concentrated rim idealization thus fails at explaining the flapping destabilization of the film edge, nevertheless obvious in, e.g., Fig. 2. A more detailed study of the rim

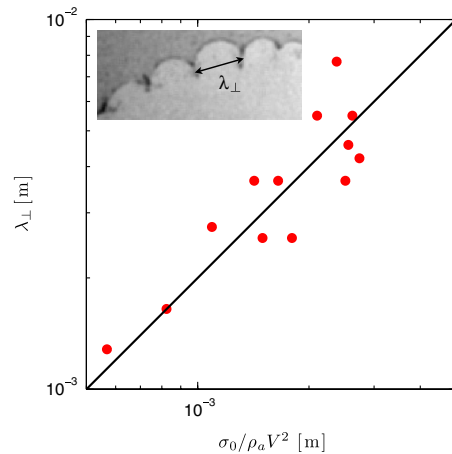


FIG. 4 (color online). Indentation size. Indentation transverse wavelength λ_{\perp} as defined in the inset versus $\sigma_0/\rho_a V^2$. The solid line is the expected scaling law.

shape and its interstitial flow field solves nevertheless this paradox.

A precise characterization of the flow ahead from an opening hole in a soap film was first made by Frankel and Mysels [23], motivated by the discovery by McEntee and Mysels [8], using interferometric methods, of an “aureole” surrounding the hole. This *extended* rim corresponds to a region preceding the film edge where the film thickens. Its origin lies in the special properties of surfactants at the interface. Surfactants, in addition to globally decreasing surface tension of an interface at equilibrium, can cause local variations in surface tension if they are not evenly concentrated at the surface and may thus give birth to large scale flows. When a soap film recedes, its interfacial area rapidly shrinks and its surfactant surface concentration locally increases. This, in turn, decreases locally surface tension and creates a surface tension gradient which sets the fluid into motion in what is referred to as a Marangoni flow. Those local variations in surface tension are likely to occur only because deformations are fast enough compared to surfactant molecule equilibration time with the liquid bulk [24,25]. They induce the spreading of an aureole where the film thickens and the fluid is gradually set into motion, far ahead from the film edge up to the unperturbed portion of the film. Its radial extension grows with time, scaling at any instant like the hole diameter.

A simple model can be built assuming that surfactant molecules at the interface are passively convected by the inner flow. Surface tension is thus locally linked to the interfacial area shrinking and then via mass conservation to the local film thickness. Frankel and Mysels [23] solved the corresponding system of continuity and momentum equations leading, with no surprise, to fluid velocity $u(r, t)$ and film thickness $h(r, t)$ fields (where r is the radial coordinate) which are self-similar functions of $r/(Vt)$. Experimental evidence for these aureoles confirming their quantitative properties was later provided [14,21,26]. The major conclusion is that, in the vicinity of the hole in the extended rim, the film velocity is $u \sim V$, the local thickness h is larger than the initial thickness h_0 , and the local surface tension σ is smaller than the initial surface tension σ_0 since film thickening implies surface shrinking and therefore surface tension decrease. This all together leads to a local Weber number We given in Eq. (4) larger than 2 over a broad region whose extension is typically a quarter of the current hole radius, which becomes rapidly larger than λ : This is the region that experiences flapping. Yet, flapping results from an interaction with the outer medium and is not an intrinsic oscillation due to the continuously decreasing tension along the aureole, as for flexible beams hanging in gravity [27].

The flapping phenomenon documented here is inherent to soap film recession. Every liquid film containing surfac-

tants and bursting in a nonvacuum atmosphere will flap and atomize into droplets under its own recession motion. The only condition is that the film extension has to be larger than the typical length over which flapping develops: $\lambda \sim (\rho/\rho_a)h_0$. The indentation phenomenon will be hastened if a curvature preexists on the film, such as for bubbles bursting spontaneously. In that case, the acceleration responsible for the rim destabilization will be set by the initial bubble radius of curvature, a crucial ingredient accounting for the production of aerosols at the sea surface.

*Also at Institut Universitaire de France, Paris, France.
villermaux@irphe.univ-mrs.fr

- [1] A. Dupré, Ann. Chim. Phys. **11**, 194 (1867).
- [2] L. Rayleigh, Nature (London) **44**, 249 (1891).
- [3] G. I. Taylor, Proc. R. Soc. A **253**, 313 (1959).
- [4] F. E. C. Culick, J. Appl. Phys. **31**, 1128 (1960).
- [5] H. Bouasse, *Capillarité* (Delagrave, Paris, 1924).
- [6] C. V. Boys, *Soap-Bubbles* (Dover, New York, 1959).
- [7] W. E. Ranz, J. Appl. Phys. **30**, 1950 (1959).
- [8] W. R. McEntee and K. Mysels, J. Phys. Chem. **73**, 3018 (1969).
- [9] J. B. Keller and M. Miksis, SIAM J. Appl. Math. **43**, 268 (1983).
- [10] M. Brenner and D. Gueyffier, Phys. Fluids **11**, 737 (1999).
- [11] G. Sünderrhauf, H. Raszillier, and F. Durst, Phys. Fluids **14**, 198 (2001).
- [12] K. Mysels and B. R. Vilayendran, J. Phys. Chem. **77**, 1692 (1973).
- [13] G. Frens, J. Phys. Chem. **78**, 1949 (1974).
- [14] N. Y. Liang, C. K. Chan, and H. J. Choi, Phys. Rev. E **54**, R3117 (1996).
- [15] L. Rayleigh, Proc. London Math. Soc. **s1-10**, 4 (1878).
- [16] H. B. Squire, Br. J. Appl. Phys. **4**, 167 (1953).
- [17] J. Lucassen, M. V. D. Tempel, A. Vrij, and F. T. Hesselink, J. Phys. Chem. B **73**, 109 (1970).
- [18] E. Villermaux, Annu. Rev. Fluid Mech. **39**, 419 (2007).
- [19] E. Villermaux and C. Clanet, J. Fluid Mech. **462**, 341 (2002).
- [20] N. Bremond, C. Clanet, and E. Villermaux, J. Fluid Mech. **585**, 421 (2007).
- [21] H. Lhuissier and E. Villermaux (to be published).
- [22] N. Bremond and E. Villermaux, J. Fluid Mech. **524**, 121 (2005).
- [23] S. Frankel and K. Mysels, J. Phys. Chem. **73**, 3028 (1969).
- [24] P. F. Mijnlief and R. Ditmarsch, Nature (London) **208**, 889 (1965).
- [25] A. Rusanov and V. Krotov, Prog. Surf. Sci. **13**, 415 (1979).
- [26] A. T. Florence and G. Frens, J. Phys. Chem. **76**, 3024 (1972).
- [27] D. Bernoulli, Comment. Acad. Scient. Imp. Petropolit. **6**, 108 (1738).

Deuxième partie

Déstabilisation d'une cloche liquide

Introduction

Cette partie est consacrée aux cloches liquides dites de *Savart* et plus particulièrement aux formes singulières, arborant angles et nervures, qu'elles peuvent adopter. Ces cloches permanentes et à symétrie de révolution sont formées en plaçant un obstacle solide sur la trajectoire d'un jet. L'impact produit une nappe liquide qui se courbe sous l'action de la tension de surface jusqu'à donner une cloche dont la cavité fermée peut être pressurisée à souhait. Lorsque la surpression interne dépasse une valeur limite



P_c que nous précisons, les cloches perdent leur caractère convexe et peuvent transiter vers la forme anguleuse et stable, quoique fragile, représentée ci-dessus.

Cette forme, jusqu'alors inexplicée, ne peut se comprendre qu'en considérant l'épaisseur finie de la nappe liquide. Il apparaît alors que pour des débits de matière et de quantité de mouvement donnés, plusieurs courbures locales de la nappe permettent d'équilibrer la surpression interne. Nous expliquons sur cette base l'inflexion de la cloche à son rayon maximal par un modèle original de ressaut hydraulique ayant lieu sur une lame liquide courbe dont les deux interfaces sont libres. Ce modèle rend compte quantitativement et en accord avec les expériences de la transition brusque d'un écoulement supercritique, à courbure négative, vers un écoulement subcritique, à courbure positive. De façon surprenante, le devenir d'une lame liquide divergente "libre" d'évoluer dans l'air peut n'être guère différent de celui d'une lame semblable contrainte de longer une paroi, dont on sait qu'il consiste en un ressaut hydraulique depuis les observations de Savart !

Dans un second chapitre, les nervures régulièrement espacées visibles en aval du ressaut sont étudiées. Elles résultent des courbures marquées que la nappe adopte au voisinage du ressaut et qui soumettent le liquide à une forte accélération centripète. Une déstabilisation inertielle de l'interface, analogue à celle responsable de la fragmentation des films du chapitre 3, développe alors les sur-épaisseurs observées. Celles-ci peuvent à leur tour influencer sur la forme globale de la nappe et causer un plissement de la cloche donnant lieu à la structure *nervurées et en drappés* visibles en haut de cette page.

Chapitre 4

Des cloches anguleuses

Les cloches liquides ont été étudiées pour la première fois par Félix Savart en 1833 dans son *Mémoire sur le Choc d'une Veine liquide lancée contre un plan circulaire* [157], [158]. Son but était de déduire de la trajectoire aisément observable des particules fluides les forces de cohésion auxquelles elles sont soumises. La figure 4.1 reproduit une partie des profils de cloche qu'il a observé. En faisant varier le diamètre et la vitesse du jet, ainsi que le diamètre du *plan circulaire* et la pression à l'intérieur de la cloche Savart obtient des cloches aux formes et aux dimensions très variées, dont certaines présentent des angles saillants particulièrement surprenants pour un liquide.

Les travaux de Savart en appellent de nombreux autres. Boussinesq met la forme des cloches en équations et obtient des solutions pour certaines formes conventionnelles, c'est-à-dire convexes. Bond et Puls [20, 146, 21], entre autres, utilisent les cloches pour mesurer des taux de contamination des interfaces à travers la dépendance de la forme à la tension de surface. Hopwood [80] puis Lance & Perry [98] obtiennent des cloches anguleuses et les assimilent à des solutions non physiques présentant un retournement du profil générateur. Taylor, [174] discute les effets de l'écoulement de l'air dans la cavité de la cloche et Parlanges [143] les utilise pour mettre fin à la controverse sur l'existence d'une tension de surface dite "dynamique", déduite de la forme des cloches et plus élevée que la tension de surface "statique". Buckingham & Bush [34] observent des cloches polygonales avec des liquides visqueux. Clanet décrit la stabilité des cloches [40] et forme des cloches subcritiques stables à l'aide d'un disque d'impact très large [33] dont nous verrons qu'elles partagent beaucoup avec les cloches anguleuses bien qu'elles ne puissent être expliquées par la modélisation classiquement adoptée qui fait l'hypothèse d'une épaisseur partout négligeable devant la courbure.

4.1 Les formes traditionnelles

4.1.1 Modélisation

Dans le cas le plus général, la forme d'une cloche résulte d'un équilibre entre inertie du liquide, tension de surface, gravité et différence de pression entre intérieur et extérieur. Considérons une cloche à symétrie axiale résultant du choc d'un jet cylindrique de diamètre d_0 sur un disque coaxial de diamètre d_d tel que schématisé

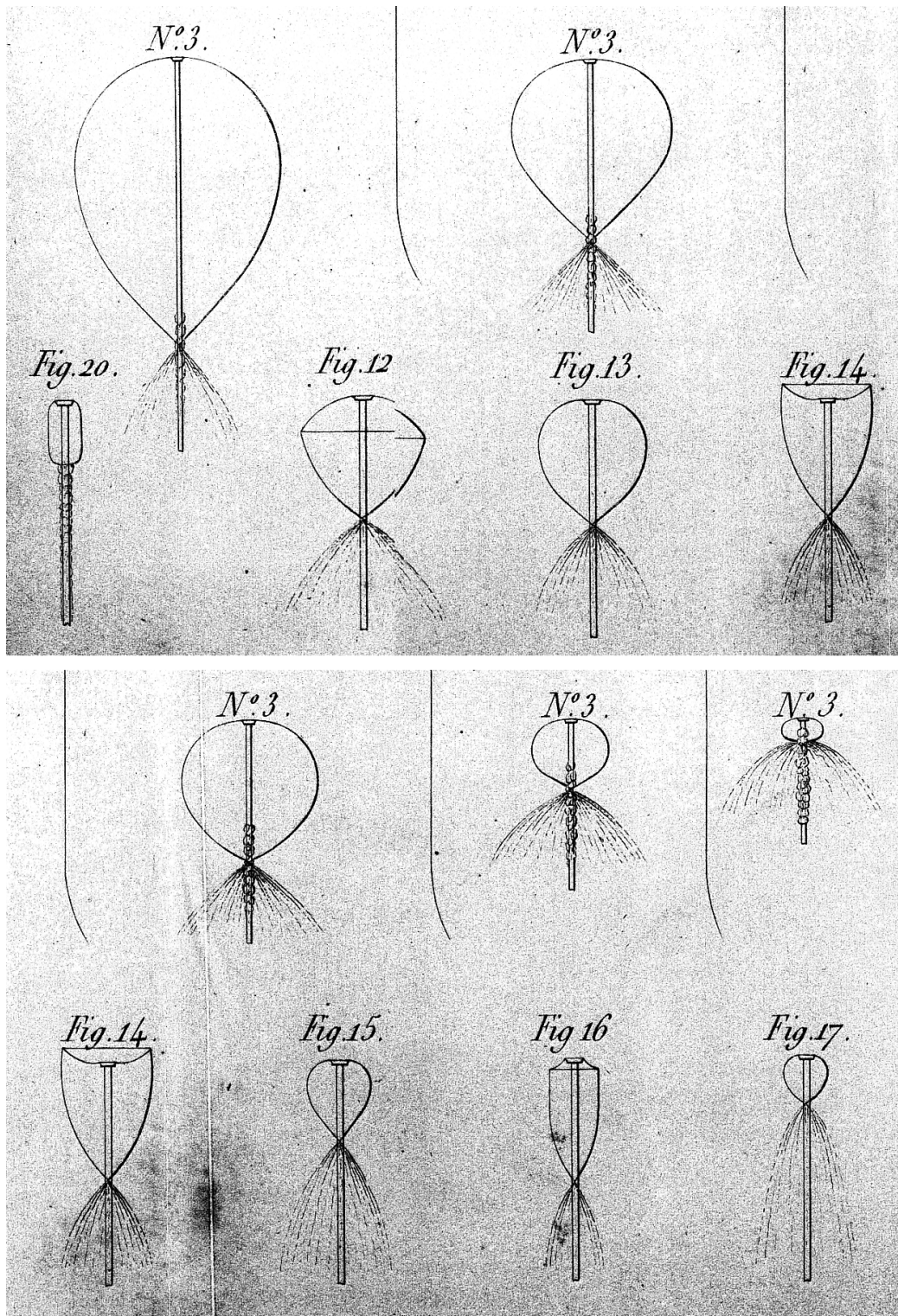


FIG. 4.1 – Profils de cloches extraits des planches de Savart [157].

sur la figure 4.2. La vitesse au sein du jet u_0 est supposée uniforme et constante dans le temps. Nous nous intéressons aux cloches dont l'extension L est grande devant d_0 . Sauf cas particuliers de formes anguleuses sur lesquels nous reviendrons, l'épaisseur h de la cloche est alors partout négligeable devant les rayons de courbure de l'ordre de L . Dans ce cas, l'écoulement est bien décrit par un modèle unidimensionnel dans lequel la vitesse \mathbf{u} est considérée uniforme sur l'épaisseur¹ :

$$\begin{cases} h = h(s) \\ \mathbf{u} = u(s) \mathbf{e}_\theta \end{cases} \quad (4.1)$$

Afin de permettre la description de cloches présentant des plissements ou retournements l'abscisse curviligne s est choisie comme paramètre du profil générateur de coordonnées $\{r(s), z(s)\}$, où r est la distance à l'axe et z la distance verticale depuis le disque d'impact.

Tant que l'épaisseur d'ordre $\sqrt{\nu d_d/u_0}$ de la couche limite se développant à la surface du disque est faible devant l'épaisseur de la couche liquide d'ordre d_0^2/d_d , la dissipation visqueuse au niveau du disque est négligeable. Cette condition peut s'écrire $Re (d_0/d_d)^3 \gg 1$, où $Re = u_0 d_0/\nu$ est le nombre de *Reynolds* associé au jet [40] et elle sera toujours vérifiée par la suite. La dissipation est à fortiori négligeable dans le reste de la cloche², si bien que l'énergie de l'écoulement se conserve. Dans le cas où la gravité $\mathbf{g} = g \mathbf{e}_z$ est orientée comme la vitesse du jet, et en utilisant la conservation de la matière, cette conservation permet de caractériser l'épaisseur et la vitesse partout sur la cloche :

$$\begin{cases} h = \frac{d_0^2}{8r} \frac{u_0}{u} \\ u = u_0 \sqrt{1 + \frac{2g}{u_0^2} z} \end{cases} \quad (4.2)$$

Traduisons maintenant l'équilibre d'une petite portion de cloche représentée sur la figure 4.2 selon sa normale \mathbf{e}_n et exprimons les différents termes sous forme de contraintes :

- lorsque la courbure κ_θ dans le plan $(\mathbf{e}_n, \mathbf{e}_\theta)$ est non nulle, le liquide en mouvement subit l'accélération centripète $\kappa_\theta u^2$. La masse surfacique ρh de la nappe conduit ainsi au terme $\rho h \kappa_\theta u^2$ pour l'inertie du liquide,
- l'action de la tension de surface sur le pourtour de la portion s'exprime en fonction des deux courbures locales de la cloche κ_θ et κ_ϕ pour donner le terme $-2\sigma(\kappa_\theta + \kappa_\phi)$, où le "2" rend compte des deux interfaces interne et externe,
- la différence de pression entre intérieur et extérieur donne le terme $\Delta p = p_i - p_e$,
- enfin, le poids surfacique $\rho g h$ une fois projeté sur la normale devient $-\rho g h \sin \theta$.

En appelant θ l'angle que forme la tangente au profil avec la verticale, les courbures principales s'écrivent $\kappa_\theta = -\partial_s \theta$ et $\kappa_\phi = \cos \theta/r$. L'échelle de longueur pertinente est l'extension radiale maximale de la cloche $L = We_0 d_0/16$ où le nombre

¹ Les différents profils de vitesse attendus et leur influence sur la forme de la cloche sont discutés section 4.2.1 (page 70).

² Excepté au niveau des singularités comme nous le montrerons.

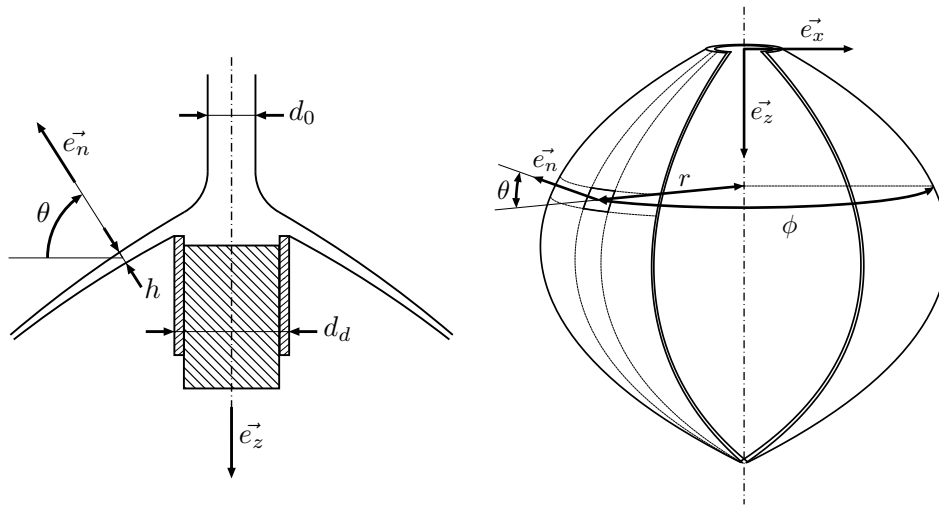


FIG. 4.2 – **Gauche** : Coupe de la zone d'impact. **Droite** : Schéma d'une cloche.

de Weber $We_0 = \sqrt{\rho d_0 u_0^2 / \sigma}$ compare l'inertie du liquide aux forces de tension de surface. L représente le rayon à partir duquel la tension de surface est capable de stopper l'écoulement, c'est ainsi le rayon d'une nappe plane formée en imposant un angle d'éjection $\theta_0 = \pi/2$. En adimensionnant les longueurs par L et les temps par la durée caractéristique de parcours de la cloche L/u_0 , l'équilibre de la cloche se traduit par l'équation suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \theta}{\partial s} \left(\sqrt{1 + \frac{Bo}{8} z} - r \right) = -\cos \theta + Pr - \frac{Bo}{16} \frac{\sin \theta}{\sqrt{1 + \frac{Bo}{8} z}} \\ \frac{\partial r}{\partial s} = \sin \theta \quad \text{et} \quad \frac{\partial z}{\partial s} = \cos \theta \end{array} \right. \quad (4.3)$$

où $P = (p_i - p_e) We_0 d_0 / 32 \sigma$ représente la différence de pression adimensionnée et le nombre de Bond, $Bo = \rho g d_0^2 / \sigma$ compare l'influence de la gravité à celle de la tension de surface.

En demeurant dans le domaine où la viscosité est sans effet, la forme de la cloche est pilotée par cinq paramètres : We_0 , Bo , P , d_d/d_0 et θ_0 l'orientation de la nappe à l'endroit où elle quitte le disque. Un sixième paramètre ρ_a/ρ intervient même si l'on considère le milieu extérieur, dont on a vu dans le chapitre précédent que l'influence peut être de premier ordre (voir aussi [189]). On comprend mieux la variété de formes relevée par Savart.

4.1.2 Des formes simples...

Pour les grandes vitesses d'injection la gravité ne joue pas et la vitesse du fluide est conservée tout au long de sa trajectoire. L'équation (4.3), prend alors la forme

simplifiée suivante, où l'on a considéré le nombre de *Bond* nul :

$$\begin{cases} \frac{\partial \theta}{\partial s}(1-r) = -\cos \theta + Pr \\ \frac{\partial r}{\partial s} = \sin \theta \end{cases} \quad (4.4)$$

Cette équation (4.4) possède une intégrale première et l'on obtient ainsi en tout point du profil l'égalité :

$$(1-r) \cos \theta + \frac{P}{2} r^2 = cte \quad (4.5)$$

Si de plus la pression est la même à l'intérieur qu'à l'extérieur de la cloche, c'est-à-dire si $P = 0$, l'équation (4.5) peut être intégrée à nouveau pour obtenir une expression explicite de l'altitude z du profil en fonction du rayon r :

$$z(r) = (1-r_m) \ln \left(\frac{\frac{1-r_m}{1-r}}{1 + \sqrt{1 - \left(\frac{1-r_m}{1-r}\right)^2}} \right) \quad (4.6)$$

où r_m , le rayon maximal atteint par la nappe, peut si on le souhaite être exprimé en fonction des conditions au détachement du disque d'impact r_0 et θ_0 à l'aide de l'équation (4.5). Cette solution est la solution obtenue par Boussinesq en 1869 [24, 25], il s'agit d'une caténoïde ou chaînette de révolution comme on le voit en réécrivant l'équation (4.6) sous la forme équivalente suivante :

$$\frac{1-r}{1-r_m} = \cosh \left(\frac{z-z_m}{r-r_m} \right) \quad (4.7)$$

z_m étant alors l'altitude à laquelle la nappe s'effondre sur l'axe.

4.1.3 . . . ou plus complexes

Lorsque les cloches sont fermées une différence de pression peut être imposée entre intérieur et extérieur. Les formes obtenues dans ce cas sont plus variées comme en témoigne la figure 4.1. Les profils sont susceptibles de s'infléchir et l'on peut observer des cloches qui ne soient plus intégralement convexes³. Ce comportement est d'ailleurs prédit par la modélisation résumée à l'équation (4.4) où le terme de pression peut éventuellement rendre le membre de droite positif et changer ainsi le signe de la courbure $\partial_s \theta$. La condition d'apparition d'un point d'inflexion peut donc s'écrire :

$$P \geq \frac{\cos \theta}{r} \quad (4.8)$$

Pour que la cloche demeure convexe, il est nécessaire et suffisant que l'inflexion ne se produise nulle part. L'inégalité opposée à (4.8) doit donc être vérifiée *globalement* en tout point du profil et non pas uniquement *localement* en $r = r_m$ comme l'a

³ Il est aussi possible d'obtenir des cloches non convexes lorsque $P = 0$, mais c'est alors en présence de gravité et ces cloches sont généralement instables vis-à-vis de toute fluctuation de la pression ou du volume emprisonné [40].

supposé Clanet [41, 40], ce qui l'a conduit à une expression trop restrictive et valable seulement sous certaines conditions. En exprimant la pression maximale $P = f(\cos \theta)$ assurant l'inégalité opposée à (4.8) pour chacun des points du profil (4.4) paramétré par $\cos \theta$, il est possible de déterminer le point où cette condition est la plus pénalisante, c'est-à-dire f est minimal. Tout calculs faits, et pour des conditions initiales r_0 et θ_0 fixées, ce point critique tel que $\partial_{\cos \theta} f = 0$ se résume à :

$$\cos \theta_c = \frac{2 \cos \theta_0}{1 + r_0} \quad (4.9)$$

Expression qui n'est valable que tant que $\theta_0 \geq \arccos[(1+r_0)/2]$. Dans ce cas, d'après l'équation (4.4), la pression limite P_c à partir de laquelle la condition d'inflexion est vérifiée pour la première fois sur l'ensemble du profil est alors :

$$\begin{cases} P_c = f(\cos \theta_c) = \frac{2 \cos \theta_0}{1 + r_0} \\ \text{pour } \theta_0 \geq \arccos\left(\frac{1 + r_0}{2}\right) \end{cases} \quad (4.10)$$

Dans le cas opposé des faibles angles de déflexion par le disque d'impact, c'est-à-dire lorsque $\theta_0 \leq \arccos[(1+r_0)/2]$, c'est au point d'extension maximale où $\theta = 0$ que la condition (4.8) est la plus pénalisante. On retrouve alors la condition suivante équivalente à celle déterminée par Clanet :

$$\begin{cases} P_c = \frac{1 - (1 - r_0) \cos \theta_0}{r_0^2} \left(1 - \sqrt{1 - \frac{r_0^2}{[(1 - r_0) \cos \theta_0 - 1]^2}} \right) \\ \text{pour } \theta_0 \leq \arccos\left(\frac{1 + r_0}{2}\right) \end{cases} \quad (4.11)$$

Les expressions (4.10) et (4.11) prédisent correctement l'apparition d'une inflexion sur les profils obtenus par intégration numérique de l'équation (4.4), c'est-à-dire lorsque $g = 0$, et ce pour tous les régimes. La figure 4.3 montre de tels profils, ainsi que leurs équivalents obtenus en présence de gravité, pour un nombre de *Bond* comparable à celui des expériences.

Ce qui importe le plus ici c'est que l'inflexion du profil (déterminé par la condition $P > P_c$) entraîne *immanquablement* le retournement de celui-ci. En effet, la variation de la courbure avec r s'écrit :

$$\frac{\partial}{\partial r} \frac{\partial \theta}{\partial s} = \frac{P + 2 \frac{\partial \theta}{\partial s}}{1 - r} \quad (4.12)$$

Lorsque $\partial_s \theta$ change de signe une première fois, c'est-à-dire devient positif dans notre cas, il ne peut ensuite changer à nouveau de signe avant l'extension maximale $r = r_m$ puisque $\partial_{r,s} \theta > 0$. Une boucle non physique, car elle impliquerait que la nappe liquide se traverse sans interagir avec elle-même, apparaît alors avant que le profil ne rejoigne l'axe de symétrie. Comme la figure 4.3 le montre, le comportement est le même que la gravité soit présente ou non. D'après l'équation (4.3), inflexion et retournement complet de la cloche ne peuvent donc être observés séparément l'un de l'autre.

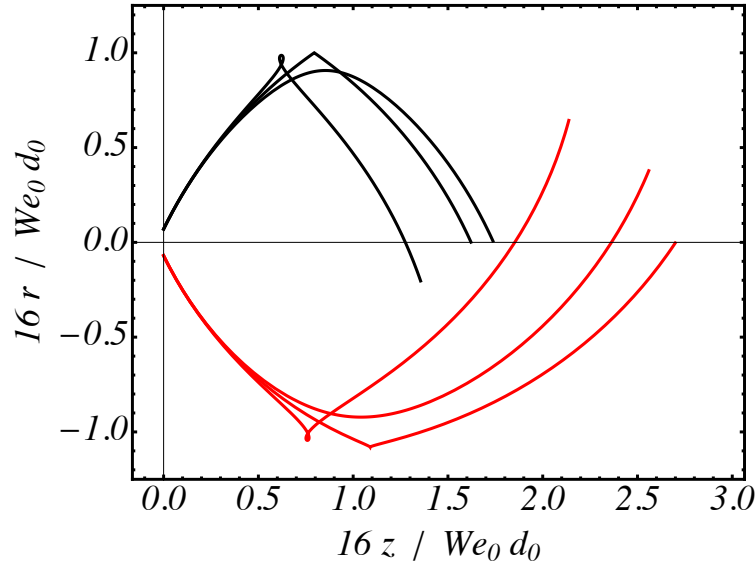


FIG. 4.3 – Profils de cloche au voisinage de la condition de retournement obtenus par intégration du système (4.3). Les conditions sont les mêmes que celles de la cloche expérimentale présentée à la figure 4.4, c’est-à-dire $We_0 = 230$, $r_0 = 0.07$ et $\theta_0 = 64^\circ$. Pour les profils rouges (—) $Bo = 13.8$ (la valeur expérimentale) et les surpressions sont successivement fixées à la valeur critique $P_{(-)}$ et à $P_{(-)} \pm 0.05$. Pour les profils noirs (—) le nombre de Bond est nul et les surpressions valent successivement $P_c = 0.82$, déterminée selon l’équation (4.10), et $P_c \pm 0.05$.

4.2 Les formes que l’on observe

Ainsi parmi toutes les formes stables observées par Savart, il en est une qui ne peut être expliquée à partir de l’équation (4.3) et qui n’a d’ailleurs, à notre connaissance, jamais été expliquée nulle part. Il s’agit de la cloche, notée “Fig 16” sur la figure 4.1, qui est concave sur une première portion puis transite de façon abrupte, par l’intermédiaire d’un “pli” que Savart schématise par une ligne, vers une portion convexe. Cette forme a été observée à nouveau depuis Savart notamment par Hopwood [80] puis Clanet [40, 41] et elle est représentée en introduction.

4.2.1 Lorsque l’épaisseur entre en jeu

Pour expliquer la seconde inflexion du profil que l’on observe au voisinage du pli sur les cloches que nous avons formées, il est nécessaire de prendre en compte leur épaisseur h finie, que l’équation (4.3) néglige, lorsqu’elle devient comparable au rayon de courbure $R = 1/\kappa_\theta$. En supposant les deux interfaces localement parallèles et en appelant R_m la courbure de la ligne médiane, l’équilibre selon leur normale commune \mathbf{e}_n s’écrit :

$$p_i - \frac{\sigma}{R_m - \frac{h}{2}} + \int_{R_m - \frac{h}{2}}^{R_m + \frac{h}{2}} \frac{\rho u^2}{R} dR - \frac{\sigma}{R_m + \frac{h}{2}} = p_e \quad (4.13)$$

où l’on a négligé l’influence de la courbure azimutale $\kappa_\phi \ll \kappa_\theta$ et celle de la gravité. Cette approximation tient à ce que l’on souhaite adopter une approche locale. Elle

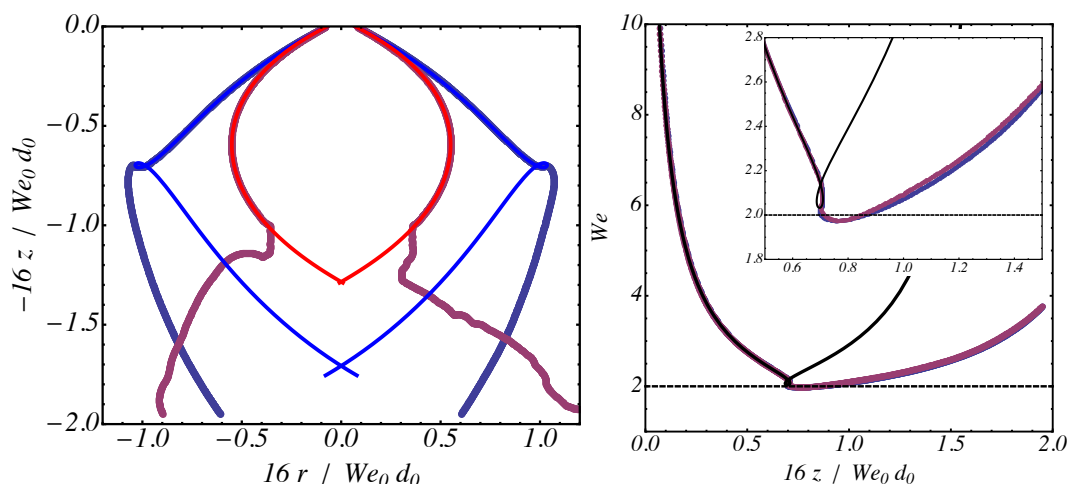


FIG. 4.4 – **Gauche** : Profils expérimental (•) et résultant de l'intégration numérique de l'équation (4.3) (—) d'une cloche présentant un pli. Le diamètre et le nombre de Weber du jet valent respectivement $d_0 = 3$ mm et $We_0 = 230$. Profils expérimental (•) et numérique (—) de la même cloche pour laquelle on a imposé une différence de pression nulle, $\Delta p = 0$, en connectant intérieur et extérieur. Le seul paramètre non mesuré est la différence de pression Δp du premier profil que nous avons ajusté afin de coller au mieux au profil expérimental en amont du pli. **Droite** : Nombre de Weber local pour les profils expérimentaux (•) et (•) (une couleur par côté) et numérique (—) de la cloche représentée à gauche. Le nombre de Weber $We = \rho h u_0^2 / \sigma$ est formé à partir des expressions de u et h définies à l'équation (4.2); soit $We = \sqrt{1 + 2gz/u_0^2} We_0 d_0 / 8r$.

est légitimée par les ordres de grandeur des rayons de courbure $\kappa_\theta^{-1} \sim 1$ mm, et de révolution autour de l'axe $\kappa_\phi^{-1} \sim 100$ mm au niveau des plis. De même, le terme gravitaire $\rho g h \sim 10^{-1}$ Pa est négligeable devant le terme de pression $\Delta p \sim 1$ Pa.

Dans la limite $h \ll R_m$, qui prévaut sur l'ensemble de la cloche à l'exception du pli, l'intégration (4.13) se fait à R essentiellement constant et les courbures des faces internes et externes se confondent, si bien que l'on retrouve les termes de l'équation (4.3) quel que soit le profil de vitesse $\mathbf{u} = u(R) \mathbf{e}_\theta$ régnant dans une section de la nappe, aussi longtemps qu'il est intégrable. En revanche lorsque le rapport h/R_m n'est plus négligeable, comme c'est le cas au niveau du pli, l'équilibre transverse (4.13) entre les contraintes inertielles et capillaires dépend directement de la loi $u(R)$ et il convient donc de la choisir judicieusement si l'on souhaite expliquer le comportement au pli.

En l'absence de viscosité, la vorticit e véhicul ee par un  el ement de liquide se conserve depuis le lieu o u il quitte le disque d'impact jusqu' a celui o u il rejoint l'axe de r evolution et vient au contact d'un solide, conform ement au th eor eme de Kelvin. En consid erant, en accord avec la condition $Re(d_0/d_d)^3 \gg 1$ traduisant que le frottement sur le disque a une influence n egligeable, que le profil de vitesse  a la sortie du disque d'impact est uniforme sur l' epaisseur, c'est- a-dire $u(R) = u_0$, la condition de d epart est celle d'une vorticit e nulle pour une courbure initiale R_m^{-1} n egligeable. On s'attendrait alors, si la vorticit e $\partial_R(Ru)/R$  etait conserv ee,  a ce qu'en toute section de la nappe le profil de vitesse ne d epende que du rayon de

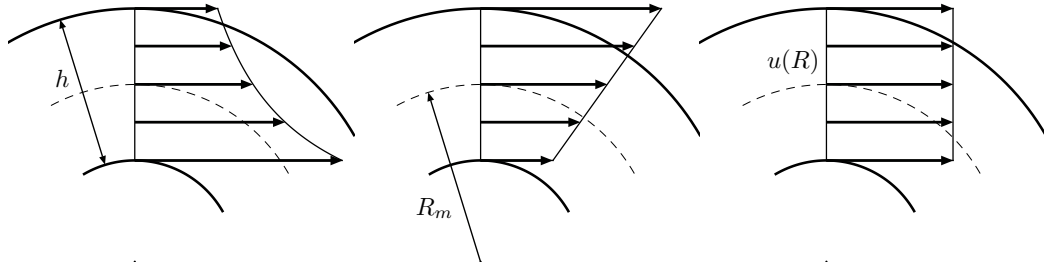


FIG. 4.5 – Différents profils des vitesses $\mathbf{u} = u(R)\mathbf{e}_\theta$ dans une section droite de la nappe. **Gauche** : Profil à vorticité nulle que l'on attend pour une viscosité négligeable, $u(R) = u_m R_m/R$. **Milieu** : Profil à cisaillement nul attendu pour une viscosité infinie, $u(R) = u_m R/R_m$. **Droite** : Profil intermédiaire, $u(R) = u_m$.

courbure des lignes de courant selon : $u(R) = u_M R_M/R$ (voir figure 4.5), où la vitesse u_M est celle du fluide dont la ligne de courant se confond avec la ligne médiane de la nappe et peut bien entendu varier le long de l'abscisse s du profil.

Inversement si la viscosité est suffisamment grande, la quantité de mouvement diffuse à travers la section transverse et résorbe le cisaillement plus rapidement que ce que l'évolution de la courbure des trajectoires du liquide, à mesure qu'il parcourt le profil de la cloche, ne l'accroît. L'écoulement résultant d'une viscosité dominante présente donc un profil des vitesses sans cisaillement : $(\partial_R u - u/R)/2 = 0$, c'est-à-dire un déplacement de corps solide en $u(R) = u_M R/R_M$.

Au niveau du pli, dans les cas que nous avons observé, le temps de relaxation visqueux h^2/ν et le temps caractéristique d'évolution de la courbure $(u \partial_s \kappa_\theta / \kappa_\theta)^{-1} \sim (\kappa_\theta u)^{-1}$ sont tous deux du même ordre de grandeur : 10^{-3} s. Nous considérerons donc par la suite l'écoulement intermédiaire entre les deux profils limites, inverses l'un de l'autre, qui se trouve aussi être le plus simple qui soit ; à savoir un écoulement uniforme à travers la section tel que :

$$u(R) = u_M = u \quad (4.14)$$

En introduisant le rapport $\epsilon = \kappa_\theta h/2$ de la demi épaisseur au rayon de courbure de la ligne médiane, compris par définition entre 0 et 1, l'équilibre (4.13) prend la forme :

$$P_h - \frac{4\epsilon}{1-\epsilon^2} + We \ln\left(\frac{1+\epsilon}{1-\epsilon}\right) = 0 \quad (4.15)$$

où cette fois $We = \rho h u^2 / \sigma$ est le nombre de Weber local basé sur l'épaisseur h de la nappe, et $P_h = h \Delta p / \sigma$ est lui aussi adimensionné par h . Dans la limite d'une épaisseur négligeable, c'est-à-dire pour $\epsilon \ll 1$, on retrouve le cas de l'équation (4.3) : la courbure ne dépend plus que du nombre de Weber local et de la différence de pression selon $\kappa_\theta = -\partial_s \theta = -\Delta p / (We - 2)\sigma$. En revanche lorsqu'on considère l'épaisseur finie, plusieurs courbures sont solutions de l'équation (4.15) pour certaines valeurs du couple $\{We, P_h\}$.

En effet, pour les nombre de Weber plus grands qu'une valeur critique $We_c = 2$ la dérivée $\partial_c P_h$ de la pression P_h assurant l'équilibre (4.15) présente deux points d'annulation. Il y a une bifurcation du système :

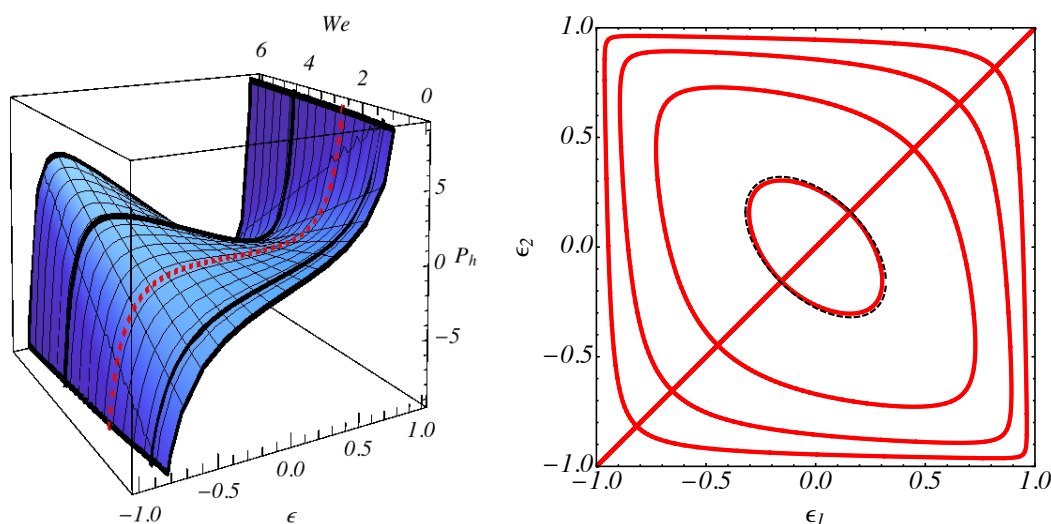


FIG. 4.6 – **Gauche** : Nappe dessinée par la pression solution de (4.15) en fonction de We et de ϵ . À partir de la bifurcation $We = We_c = 2$ (---) trois courbures distinctes peuvent correspondre à une pression P_h unique. **Droite** : Couples $\{\epsilon_1, \epsilon_2\}$ solutions de l'équation (4.17) et obtenus par calcul numérique (•) pour quatre valeurs du nombre de Weber : depuis le centre vers la périphérie $We = 2.1, 3, 5$ et 10 . En pointillés noir (---), l'ellipse caractérisée à l'équation (4.20) est tracée pour $We = 2.1$.

- pour $We < We_c$, la pression P_h évolue de façon monotone avec la courbure ϵ ce qui implique une solution unique,
- pour $We > We_c$, P_h présente une portion décroissante et trois courbures différentes assurent alors l'équilibre normal des forces.

La figure 4.6 sur laquelle est représentée la nappe $P_h(\epsilon, We)$ compatible avec l'équation (4.15) illustre cette transition.

L'existence de plusieurs solutions se comprend aisément lorsqu'on détaille l'équilibre de l'équation (4.13). Ce dernier fait intervenir un terme inertiel centrifuge $\rho u^2/R$, où R balaye toutes les valeurs entre les rayons des interfaces interne R_i et externe R_e , et des termes de tension de surface centripètes $-\sigma/R_i$ et $-\sigma/R_e$. La somme de ces termes doit équilibrer P_h . Pour les grands nombres de *Weber* le terme inertiel domine par définition le terme capillaire tant que $R_i \simeq R_e \simeq R$. On obtient ainsi une première solution d'épaisseur faible, qui se confond avec la solution classique où l'on néglige l'épaisseur. Néanmoins, on peut aussi remarquer que même à grand nombre de *Weber* il est toujours possible de trouver un rayon interne R_i suffisamment petit pour que le terme capillaire σ/R_i devienne dominant et l'on obtient alors deux autres solutions selon que R_i est positif ou négatif.

On remarquera enfin que ces solutions ne sont pas toutes localement stables. La dépendance au rayon des forces en jeu étant en R^{-1} , leur variation par rapport au rayon de courbure $\partial_R R^{-1}$ est négative et les termes centrifuges sont donc stabilisants tandis que les termes centripètes sont déstabilisants. Si l'on perturbe par exemple la courbure d'équilibre ϵ , toutes choses demeurant égales par ailleurs, la condition

de stabilité s'écrit :

$$\left. \frac{\partial P_h}{\partial \epsilon} \right|_{h, We} < 0 \quad (4.16)$$

Pour les grands nombres de *Weber*, les solutions classiques à faible courbure sont donc localement stables tandis que les solutions à fortes courbures sont instables. Pour $We < We_c$ la solution unique est toujours localement instable. Ceci explique sûrement la fragilité des cloches pliées que nous avons constatée.

4.2.2 Un modèle simple d'inflexion

Nous allons maintenant expliquer la brusque inflexion des profils au voisinage des plis. Considérons pour cela une portion de nappe courbe ① dont on connaît l'épaisseur h_1 , le nombre de *Weber* We_1 ainsi que la différence de pression P_{h_1} régnant de part et d'autre. Cette portion présente nécessairement une courbure κ_{θ_1} solution de l'équation (4.15). Demandons nous maintenant si la portion de nappe ② voisine placée juste en aval et soumise à la même différence de pression est susceptible de présenter une courbure κ_{θ_2} différente.

L'idée la plus simple consiste à supposer que la vitesse du liquide n'est pas modifiée à la transition entre les deux portions c'est-à-dire $u_2 = u_1 = u$. Nous cherchons des solutions permanentes et la conservation de la matière implique alors que $h_2 = h_1 = h$. Par conséquent, $We_2 = We_1 = We$ et $P_{h_2} = P_{h_1} = P_h$. Nous sommes donc ramenés comme précédemment à chercher des solutions de l'équation (4.15). Si ϵ_1 et ϵ_2 sont de telles solutions elles vérifient l'égalité :

$$-\frac{4\epsilon_1}{1-\epsilon_1^2} + We \ln\left(\frac{1+\epsilon_1}{1-\epsilon_1}\right) = -\frac{4\epsilon_2}{1-\epsilon_2^2} + We \ln\left(\frac{1+\epsilon_2}{1-\epsilon_2}\right) \quad (4.17)$$

Pour un nombre de *Weber* supérieur mais proche du nombre critique, on s'attend à ce que les solutions multiples soient à faibles courbures relatives c'est-à-dire $|\epsilon| \ll 1$ (cette assertion sera vérifiée a posteriori). On peut alors réécrire l'équation (4.17) en :

$$\begin{cases} \epsilon_1^3 + \mathcal{W} \epsilon_1 \simeq \epsilon_2^3 + \mathcal{W} \epsilon_2 \\ \text{avec } \mathcal{W} = \frac{We - 2}{\frac{We}{3} - 2} \end{cases} \quad (4.18)$$

dont $\epsilon_2 = \epsilon_1$ est bien sûr toujours solution. L'approximation est valable pour $\mathcal{W} \ll 1$ c'est-à-dire pour We proche de 2. Pour une courbure $\epsilon_1 \ll 1$ donnée, les deux autres solutions s'écrivent alors :

$$\epsilon_2 = \frac{-\epsilon_1 \pm \sqrt{-4\mathcal{W} - 3\epsilon_1^2}}{2} \quad (4.19)$$

Ces solutions tracent une ellipse dans le plans $\{\epsilon_1, \epsilon_2\}$:

$$\frac{(\epsilon_1 + \epsilon_2)^2}{4} + \frac{3(\epsilon_1 - \epsilon_2)^2}{4} = -\mathcal{W} \quad (4.20)$$

Son grand axe est orienté selon la bissectrice $\{-1, 1\}$ du repère et les rayons extrêmes valent $\sqrt{-4\mathcal{W}/3}$ et $\sqrt{-4\mathcal{W}}$.

La figure 4.6 présente les couples $\{\epsilon_1, \epsilon_2\}$ solutions de l'équation (4.17) pour différents nombres de *Weber*. Pour les We proches de We_c , les solutions multiples sont à courbures relatives faibles et l'ellipse de l'équation (4.20) est une bonne approximation. Pour les We plus grands en revanche, même pour une courbure initiale $|\epsilon_1| \ll 1$, les courbures $|\epsilon_2|$ compatibles et non triviales sont d'ordre 1 ; c'est-à-dire que le rayon de courbure de leur interface interne R_i tend vers 0.

Si l'on veut expliquer l'inflexion par le passage d'une courbure positive donnée à une courbure négative compatible, il faut vérifier que cette transition puisse se faire spontanément, c'est-à-dire que le niveau énergétique associé à la seconde courbure soit inférieur à celui associé à la première. Ce niveau, somme des flux d'énergie cinétique et d'énergie potentielle de pression de la veine liquide, s'écrit :

$$\begin{cases} \mathcal{P} = \int_{R_m - \frac{h}{2}}^{R_m + \frac{h}{2}} \left(\frac{\rho u^2}{2} + p \right) u \, dR \\ \text{où } p = p_i - \frac{\sigma}{R_m - \frac{h}{2}} + \rho u^2 \ln \left(\frac{R}{R_m - \frac{h}{2}} \right) \end{cases} \quad (4.21)$$

Il ne fait pas intervenir l'énergie de surface liée à σ car, l'écoulement étant permanent, il n'y a pas de surface créée. En fonction des variables adoptées, il devient :

$$\frac{\mathcal{P}}{u \sigma} = \frac{We}{2\epsilon} \left[(1 + \epsilon) \ln \left(\frac{1 + \epsilon}{1 - \epsilon} \right) - \epsilon \right] - \frac{2\epsilon}{1 - \epsilon} + \frac{p_i h}{\sigma} \quad (4.22)$$

Que l'on peut aussi réécrire, à l'aide de l'équation (4.15), sous une forme plus utile dans l'immédiat :

$$\begin{aligned} \frac{\mathcal{P}}{u \sigma} &= 2 - \frac{We}{2} - \frac{p_i - p_e}{\sigma} \frac{h}{2} - \frac{p_i - p_e}{\sigma} R \\ &= \mathcal{C}(We, h) - \frac{p_i - p_e}{\sigma} R \end{aligned} \quad (4.23)$$

où \mathcal{C} est une quantité qui se conserve entre les diverses solutions puisque le nombre de *Weber* et l'épaisseur sont conservés. Il apparaît alors que pour une cloche pressurisée, c'est-à-dire lorsque $\Delta p = p_i - p_e > 0$, le passage d'une courbure négative, c'est-à-dire dont le centre de courbure est externe à la cloche, à une courbure positive correspond à une perte d'énergie : $\Delta \mathcal{P} \sim -u \Delta p R$.

L'inflexion que l'on observe au voisinage du pli peut donc être expliquée par une dissipation d'énergie permettant la transition d'une courbure locale négative à une courbure positive. La première source de dissipation qui vient à l'esprit est celle due au cisaillement interne lorsque la courbure de la nappe est trop marquée. En considérant toujours un écoulement $\mathbf{u} = u \mathbf{e}_\theta$ uniforme sur la section droite, le taux de dissipation volumique $\varepsilon = 1/2 \eta (\nabla \mathbf{u} + \nabla \mathbf{u}^T)$: $(\nabla \mathbf{u} + \nabla \mathbf{u}^T)$ vaut $\eta (u/R)^2$, où η est la viscosité dynamique. Intégré sur l'épaisseur du film et pour un angle parcouru $\Delta \theta$, il donne la puissance dissipée :

$$\mathcal{P}_\eta = \eta u^2 \ln \left(\frac{R_m + \frac{h}{2}}{R_m - \frac{h}{2}} \right) \Delta \theta \quad (4.24)$$

Pour la cloche de la figure 4.4 la vitesse vaut $u = 2.36 \text{ m.s}^{-1}$, l'épaisseur au pli estimée à partir de l'équation (4.1) vaut $h = 25 \mu\text{m}$, la différence de pression permettant d'obtenir le meilleur profil sur la figure 4.4 vaut $\Delta p = 3.2 \text{ Pa}$ et le plus petit rayon de courbure que nous avons pu mesurer vaut $R \sim 100 \mu\text{m}$. En considérant que la dissipation a lieu sur un angle $\Delta\theta$ d'ordre 1 on trouve alors :

$$\mathcal{P}_\eta \sim -\Delta\mathcal{P} \sim 10^{-3} \text{ W.m}^{-1} \quad (4.25)$$

La dissipation visqueuse est donc du même ordre de grandeur que la différence d'énergie requise pour passer d'une courbure à l'autre et permet d'expliquer l'inflexion du profil des cloches.

4.2.3 L'explication complète : un ressaut hydraulique libre

On pourrait objecter à l'explication précédente qu'elle ne vérifie pas la conservation de la quantité de mouvement entre les deux portions ① et ② de courbures opposées. Voici donc une façon plus complète, mais aussi plus complexe, d'étudier la possibilité d'une inflexion du profil permettant notamment de rendre compte du changement de régime de l'écoulement au passage du pli.

Nous allons assimiler cette inflexion à un ressaut brusque, tout à fait analogue à un ressaut hydraulique classique, avec néanmoins quelques complications. La première étant que le gradient de pression transverse n'est plus du à un terme de gravité constant ρg mais à un terme centrifuge $\rho u^2/R$ dépendant à la fois de la vitesse et du rayon de courbure local. La seconde tient au fait que la nappe est libre et que les positions des deux interfaces peuvent être différentes de part et d'autre du ressaut. Il est donc nécessaire de déterminer un changement de l'épaisseur h mais aussi un décalage des ligne médianes que l'on notera X .

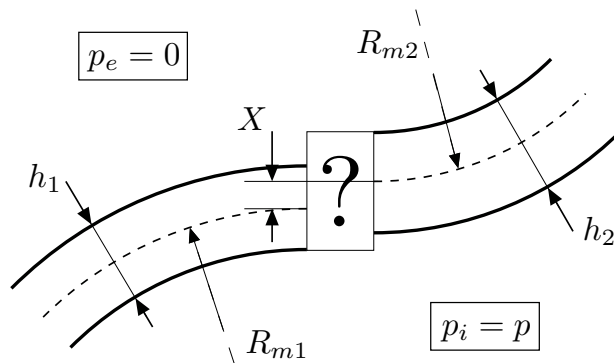


FIG. 4.7 – Schéma du ressaut.

En résumé, nous allons déterminer quelles conditions en sortie du ressaut u_2 , h_2 et R_{m2} associées à quel décalage X et quelle pression Δp , sont compatibles avec des conditions initiales données u_1 , h_1 et R_{m1} . Les cinq inconnues sont reliées par trois équations de conservations au niveau du ressaut, à savoir celles de la matière, de la quantité de mouvement tangentielle et du moment cinétique, et les deux équations (4.15) assurant la compatibilité des conditions en ① et ② avec Δp .

a/ Le système

Les conservations de la quantité de mouvement projetées sur \mathbf{e}_{n_i} , que l'on a déjà établies en (4.15), s'écrivent :

$$\frac{\Delta p}{\sigma} 2 \epsilon_i R_{mi} - \frac{4 \epsilon_i}{1 - \epsilon_i^2} + We_i \ln\left(\frac{1 + \epsilon_i}{1 - \epsilon_i}\right) = 0 \quad (4.26)$$

où l'indice i prend, ici comme dans la suite, les valeurs 1 et 2 dans les domaines ① et ② respectivement. La conservation de la matière au passage du ressaut se traduit par :

$$\begin{cases} q_1 = q_2 \\ q_i = \int_{R_{mi} - \frac{h_i}{2}}^{R_{mi} + \frac{h_i}{2}} \rho u_i \, dR \end{cases} \quad (4.27)$$

qui se réécrit à l'aide des variables choisies de la façon suivante :

$$We_1 \epsilon_1 R_{m1} = We_2 \epsilon_2 R_{m2} \quad (4.28)$$

La conservation de la quantité de mouvement projetée sur \mathbf{e}_θ impose :

$$\begin{cases} Q_1 + \Delta p \left(\frac{h_2 - h_1}{2} - X \right) = Q_2 \\ Q_i = \rho u_i^2 h_i + \int_{R_{mi} - \frac{h_i}{2}}^{R_{mi} + \frac{h_i}{2}} p(R) \, dR - 2 \sigma \end{cases} \quad (4.29)$$

et se réécrit ainsi :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta p}{\sigma} (\epsilon_1 R_{m1} - X) - \frac{2}{1 - \epsilon_1} + We_1 \frac{1 + \epsilon_1}{2 \epsilon_1} \ln\left(\frac{1 + \epsilon_1}{1 - \epsilon_1}\right) = \\ \frac{\Delta p}{\sigma} \epsilon_2 R_{m2} - \frac{2}{1 - \epsilon_2} + We_2 \frac{1 + \epsilon_2}{2 \epsilon_2} \ln\left(\frac{1 + \epsilon_2}{1 - \epsilon_2}\right) \end{aligned} \quad (4.30)$$

Enfin la conservation du moment cinétique autour de la normale commune à \mathbf{e}_n et \mathbf{e}_θ prend la forme :

$$\begin{cases} C_{1/M_1} - \frac{\Delta p}{2} \left[\left(\frac{h_2}{2} - X \right)^2 - \left(\frac{h_1}{2} \right)^2 \right] = C_{1/M_1} + X Q_2 \\ C_{i/M_i} = \int_{R_{mi} - \frac{h_i}{2}}^{R_{mi} + \frac{h_i}{2}} (R - R_{mi}) p(R) \, dR \end{cases} \quad (4.31)$$

qui s'écrit aussi :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta p}{2 \sigma} (\epsilon_1 R_{m1})^2 + \frac{We_1 R_{m1}}{2 \epsilon_1} \left[\epsilon_1 - \frac{1 - \epsilon_1^2}{2} \ln\left(\frac{1 + \epsilon_1}{1 - \epsilon_1}\right) \right] = \\ \frac{\Delta p}{2 \sigma} (\epsilon_2 R_{m2} - X)^2 + \frac{We_2 R_{m2}}{2 \epsilon_2} \left[\epsilon_2 - \frac{1 - \epsilon_2^2}{2} \ln\left(\frac{1 + \epsilon_2}{1 - \epsilon_2}\right) \right] + X \frac{Q_2}{\sigma} \end{aligned} \quad (4.32)$$

avec :

$$\frac{Q_2}{\sigma} = \frac{\Delta p}{\sigma} 2 \epsilon_2 R_{m2} - \frac{2}{1 - \epsilon_2} + We_2 \frac{1 + \epsilon_2}{2 \epsilon_2} \ln\left(\frac{1 + \epsilon_2}{1 - \epsilon_2}\right) \quad (4.33)$$

b/ La résolution

Nous voici donc avec un système de cinq équations (4.26) pour ① et ②, (4.27), (4.29) et (4.31). Il est possible de l'adimensionner par $h_1 = 2\epsilon_1 R_{1m}$, σ et ρ ; les seules variables restantes sont alors les deux paramètres We_1 et ϵ_1 et les cinq inconnues Δp , R_{2m} , We_2 , ϵ_2 et X . Le système semble lourd mais il est possible de le résoudre *presque* intégralement de façon analytique et sans approximations. Voici succinctement les étapes menant au résultat.

L'expression de We_2 en fonction des autres variables découle directement de la conservation de la matière, et celles de R_{m2} et X s'obtiennent à partir des équations (4.30) et (4.32) utilisées avec (4.26)⁴ :

$$\begin{cases} R_{m2} = R_{m1} + X \\ We_2 = \frac{\epsilon_1 R_{m1}}{\epsilon_2 R_{m2}} We_1 \\ X = \frac{We_1}{2} \left(\frac{\epsilon_1}{\epsilon_2} - 1 \right) R_{m1} \end{cases} \quad (4.34)$$

Il ne reste alors qu'à traduire l'égalité des surpressions en aval et en amont à partir de l'équation (4.26) pour ramener le système à une équation unique de la variable ϵ_2 analogue à l'équation (4.17) :

$$\frac{1}{\epsilon_1 R_{m1}} \left[\frac{4\epsilon_1}{1-\epsilon_1^2} - We_1 \ln \left(\frac{1+\epsilon_1}{1-\epsilon_1} \right) \right] = \frac{1}{\epsilon_2 R_{m2}} \left[\frac{4\epsilon_2}{1-\epsilon_2^2} - We_2 \ln \left(\frac{1+\epsilon_2}{1-\epsilon_2} \right) \right] \quad (4.35)$$

où R_{m2} et We_2 adoptent les expressions (4.34). Cette équation rationnelle et logarithmique est fortement non linéaire et ne présente pas de solutions évidentes hormis $\epsilon_2 = \epsilon_1$. Nous avons donc opté pour une résolution dans le cas $|\epsilon_1| \sim |\epsilon_2| \ll 1$ et $We_1 \sim 2$ qui correspond aux conditions au voisinage du pli. En posant $\epsilon_2 = y\epsilon_1$, où $|y| \sim |R_{mi}|$, l'équation (4.26) développée en puissances de ϵ_1 s'écrit :

$$2(We_1 - 2) \frac{[We_1(y-1) - 4y](y-1)}{[We_1(y-1) - 2y]^2} \epsilon_1 + \mathcal{O}(\epsilon_1^3) = 0 \quad (4.36)$$

dont la solution intéressante à l'ordre 1 vaut :

$$y = -\frac{We_1}{4 - We_1} \quad (4.37)$$

En première approximation, les conditions en sortie du ressaut sont alors :

$$\begin{cases} R_{m2} = -R_{m1} = \frac{X}{2} \\ We_2 = 4 - We_1 \\ \epsilon_2 = -\frac{We_1}{4 - We_1} \epsilon_1 \end{cases} \quad (4.38)$$

⁴ Ces manipulations supposent bien entendu $\epsilon_i \in]0, 1[$, ce qui s'accorde avec le domaine dans lequel nous recherchons des solutions non triviales. De même les rayons R_{mi} sont supposés non nuls.

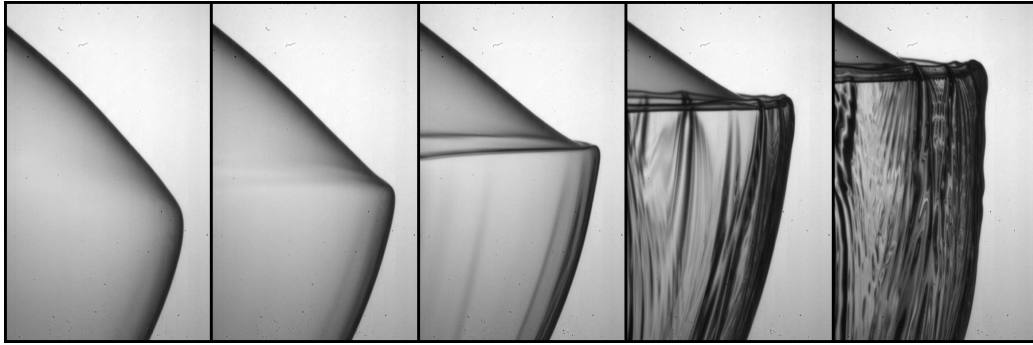


FIG. 4.8 – Formation soudaine d'un pli stable sur le bord d'une cloche alors que le débit d'injection est diminué progressivement ; ce qui revient à augmenter progressivement la pression adimensionnée P . Le pli se forme à l'instant où la condition de retournement est vérifiée pour la première fois et la nappe, initialement lisse sur toute sa surface, devient "rugueuse" sur la partie aval.

Il apparaît ainsi premièrement que le sens de la courbure s'inverse au niveau du ressaut comme on l'observe au niveau du pli des cloches, et deuxièmement que si le nombre de *Weber* est supérieur à 2 en amont, c'est-à-dire si $We_1 > We_c$, alors il est inférieur à 2 en aval, c'est-à-dire $We_2 < We_c$. Il s'agit donc bien d'un *ressaut hydraulique* pour lequel l'écoulement passe d'un régime supercritique, vis-à-vis des ondes de surface se propageant à $V = \sqrt{2\sigma/\rho h}$, en amont du ressaut à un régime subcritique en aval. On comprend bien dès lors pourquoi la cloche de la figure 4.8 devient "rugueuse" à l'apparition du ressaut et uniquement en aval de celui-ci : les perturbations sont capables d'y remonter le courant jusqu'au pli où elles deviennent stationnaires et s'y accumulent jusqu'à leur dissipation, a contrario de l'amont du ressaut où les perturbations sont advectées et donc dispersées.

La dernière équation du système (4.35) a aussi été résolue de façon numérique sans utiliser l'approximation $|\epsilon_1| \ll 1$. Les couples solutions $\{\epsilon_1, \epsilon_2\}$ sont présentés sur la figure 4.9 et concordent avec le résultat (4.38) pour les faibles courbures.

c/ La confrontation

Il est possible de confronter ce résultat théorique à l'expérience en utilisant le profil de cloche présenté à la figure 4.4. Le diamètre d_0 du jet initial est connu au $1/100^e$ et le débit massique est mesuré par pesée au $1/1000^e$. Seule la pression n'est pas mesurée directement mais elle peut être estimée très précisément (autour du $1/100^e$) en cherchant la solution de (4.3) ajustant au mieux le profil expérimental, de la même façon que l'on mesure la tension de surface à partir de la forme d'une goutte pendante (comme dans l'annexe B par exemple). C'est d'ailleurs pour cette forte susceptibilité de la forme de la cloche à la pression que Clanet [33] a suggéré l'utilisation de cloches liquides pressurisées à une valeur proche de P_c comme baromètres de précision. L'ajustement donne $P = 0.96$ correspondant à une surpression $\Delta p = 3.2 \text{ Pa}$. On remarquera qu'il est supérieur mais du même ordre de grandeur que la valeur limite donnée par l'équation (4.10) $P_c = 0.82$, à partir de laquelle on

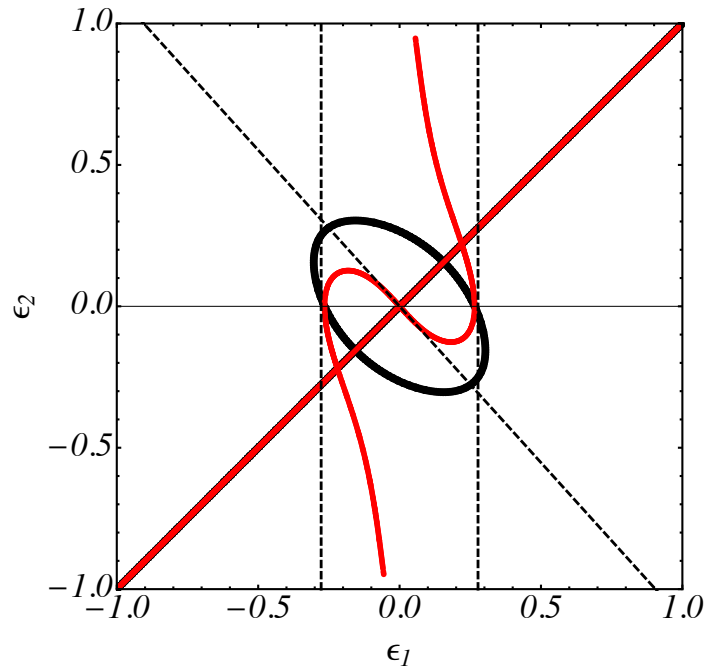


FIG. 4.9 – Couples $\{\epsilon_1, \epsilon_2\}$ solutions de l'équation (4.35) obtenus par calcul numérique (•) pour un nombre de Weber $We = 2.1$. La droite oblique en pointillés (---) représente la solution asymptotique (4.38) pour ϵ_1 et ϵ_2 petits. Pour comparaison, les points noirs (•) représentent les couples solutions de (4.17).

attend un retournement du profil en l'absence de gravité⁵.

La situation observée sur la cloche en amont du pli est la suivante. En prenant pour référence l'intérieur de la cloche, la pression Δp est positive et le rayon de courbure $R_{1m} = \kappa_1^{-1}$ est négatif⁶. Si l'on suppose de plus que le profil numérique est fidèle à l'expérience jusqu'au ressaut on peut alors estimer les conditions immédiatement en amont du ressaut à partir de celles du profil numérique à son extension radiale maximale; c'est-à-dire juste avant qu'il ne réalise le retournement en $\theta = \pi$. Le nombre de *Weber* local, l'épaisseur et le rayon de courbure valent alors approximativement $We_1 = 2.05$, $h_1 = 25 \mu\text{m}$ et $R_{m1} = \kappa_1^{-1} = -1 \text{ mm}$ ⁷ selon cette méthode. Ainsi $\epsilon_1 \sim 1/80$ est petit devant 1 et l'approximation des équations (4.37) et (4.38) peut être utilisée. Dans ce cadre, la surpression peut être exprimée, à l'aide des solutions de l'équation (4.38), en puissances de ϵ_1 selon :

$$\Delta p = -\frac{\sigma (We_1 - 2)}{R_{m1}} + \mathcal{O}(\epsilon_1^2) \quad (4.39)$$

⁵ La prise en compte de la gravité ne peut bien sûr qu'augmenter la valeur limite P_c puisque jusqu'au point de retournement éventuel, son action est toujours opposée à celle de la pression (voir figure 4.3).

⁶ Le signe moins vient de ce que l'on a choisit l'intérieur de la cloche comme référence et ainsi Δp positif. La pression Δp négative et le rayon R_{m1} positif correspondent à la même situation physique et donnent bien sûr le même résultat.

⁷ Cette évaluation concernant la courbure *avant* le ressaut n'est pas contradictoire avec la valeur minimale observée $R_{min} \sim 100 \mu\text{m}$ annoncée page 75 qui correspond à la courbure *au* ressaut réalisant l'écart X et la dissipation d'énergie dont l'approche par bilan du ressaut ne précise pas le détail.

On constate alors deux choses. D'une part le ressaut s'effectue dans les conditions prévues par la théorie. Celle-ci impose en effet que le signe de $\Delta p R_{1m}$ soit négatif, lorsque $We_1 > 2$, pour qu'un ressaut puisse-t'avoir lieu. D'autre part, pour les valeurs des paramètres mesurés sur la cloche, la surpression susceptible d'après (4.39) de déclencher un ressaut vaut $\Delta p = 3.5$ Pa et elle est donc du même ordre de grandeur que la valeur mesurée en ajustant le profil : $\Delta p = 3.2$ Pa.

Enfin il convient de vérifier que le ressaut, puisqu'il se produit spontanément sans aucun travail extérieur, correspond bien à une dissipation d'énergie de l'écoulement de la nappe liquide. En utilisant les solutions de système (4.38) la puissance dissipée, exprimée par la différence des flux d'énergies établis à l'équation (4.22)⁸, devient :

$$\mathcal{P}_1 - \mathcal{P}_2 = 4\sigma u_1 \frac{We_1 - 2}{We_1} + \mathcal{O}(\epsilon_1^2) \quad (4.40)$$

Il apparaît alors qu'au travers d'un ressaut, qui par définition fait transiter l'écoulement depuis le régime supercritique $We_1 > 2$ vers le régime subcritique $We_2 < 2$, le flux d'énergie de l'écoulement est en partie dissipé, de la même façon que la charge d'une rivière diminue au ressaut conduisant l'écoulement du régime torrentiel au régime fluvial.

En résumé, le ressaut tel que nous l'avons modélisé explique bien toutes les observations effectuées sur les cloches présentant une double inflexion. Il est susceptible de perdurer au sein de l'écoulement permanent d'une cloche puisqu'il correspond à une dissipation $\mathcal{P}_2 < \mathcal{P}_1$. Au vu des ordres de grandeur des surpressions Δp et des nombres de Weber d'injection We_0 de telles cloches, il est attendu qu'il se produise au voisinage de l'extension maximale L de la cloche, en un lieu où le nombre de Weber local We est proche de 2 tout en restant supérieur. Il n'est susceptible de se produire que lorsque la surpression est du côté opposé à la concavité locale de la nappe comme c'est le cas en amont du pli d'une cloche ($\Delta p \kappa_\theta < 0$). Ces deux dernières conditions ne sont réunies que pour des cloches dont la surpression interne est positive et ne dépasse la condition de retournement $P > P_c$ que de peu. Pour de telles cloches le ressaut a lieu et il induit une inflexion brusque du profil ($R_{m1} R_{m2} < 0$) accompagnée d'un décrochement vers l'extérieur de la cloche ($X > 0$). Le nombre de Weber local en aval est inférieur à 2 ce qui correspond à un écoulement subcritique et explique l'opalescence de la cloche dans cette partie. Enfin, on peut se convaincre du caractère subcritique de cet écoulement en vérifiant sur la figure 4.10 que le bord d'un trou amorcé juste en aval du pli remonte effectivement le courant jusqu'au pli ; ce qui implique $u < V$ équivalent à $We < 2$.

⁸ Où il a bien été pris en compte que, contrairement au cas de la section 4.2.2, la vitesse u n'est pas conservée ici.

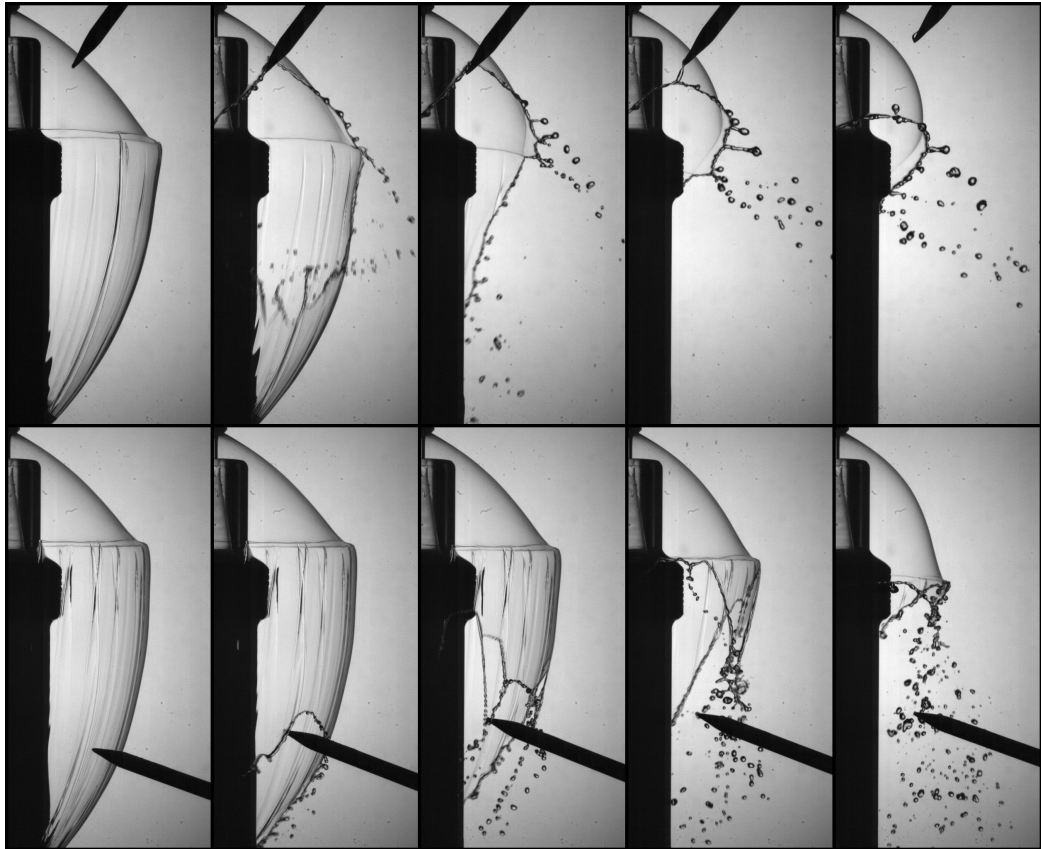


FIG. 4.10 – Perçage d'une cloche liquide présentant un pli. **En haut** : Le trou est amorcé en amont du pli et son bord ne remonte pas le courant. L'écoulement est supercritique et le bord stationnaire forme localement un cône de Mach. **En bas** : Le trou est amorcé en aval du pli et son bord remonte le courant révélant un écoulement subcritique.

Chapitre 5

Des cloches nervurées

En aval du ressaut, les cloches ne sont pas seulement rugueuses, mais présentent des nervures verticales régulièrement espacées autour de l'axe de symétrie comme on peut le voir sur chacune des figures 4.8, 4.10 et 5.1. Ces nervures correspondent à des sur-épaisseurs de la nappe et se développent en réponse à l'accélération imposée au liquide dans son écoulement suivant le profil courbé de la cloche. Dans ce chapitre nous expliquerons qualitativement pourquoi les nervures n'apparaissent de façon marquée qu'au niveau du pli et au voisinage de l'endroit où la nappe rejoint son axe de symétrie.

5.1 Observations

Comme on peut le voir sur la figure 4.8, l'apparition des nervures semble intimement liée à celle de la double inflexion du profil, caractéristique du ressaut. Ce lien apparaît encore plus clairement sur la figure 5.1 montrant une cloche dans des conditions très proches de celles conduisant à la formation d'un ressaut. Fortuitement, cette cloche oscille naturellement à basse fréquence entre une forme totalement convexe et une forme présentant un pli, ce qui fournit une occasion d'éprouver le lien entre nervures au pli. Deux périodes de ces oscillations sont représentées sur la figure 5.1, et à chaque formation de la ligne de pli, les nervures se développent pour ensuite se dissiper lorsque le profil redevient convexe.

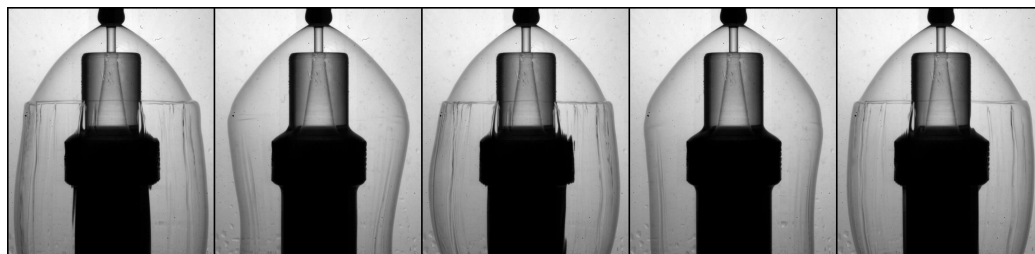


FIG. 5.1 – Oscillations naturelles d'une cloche au voisinage de la condition de formation du ressaut illustrant le lien entre pli et nervures : lorsque le pli, visible sous la forme d'une ligne horizontale, apparaît les nervures se développent ; lorsque le pli disparaît, les nervures se dissipent.

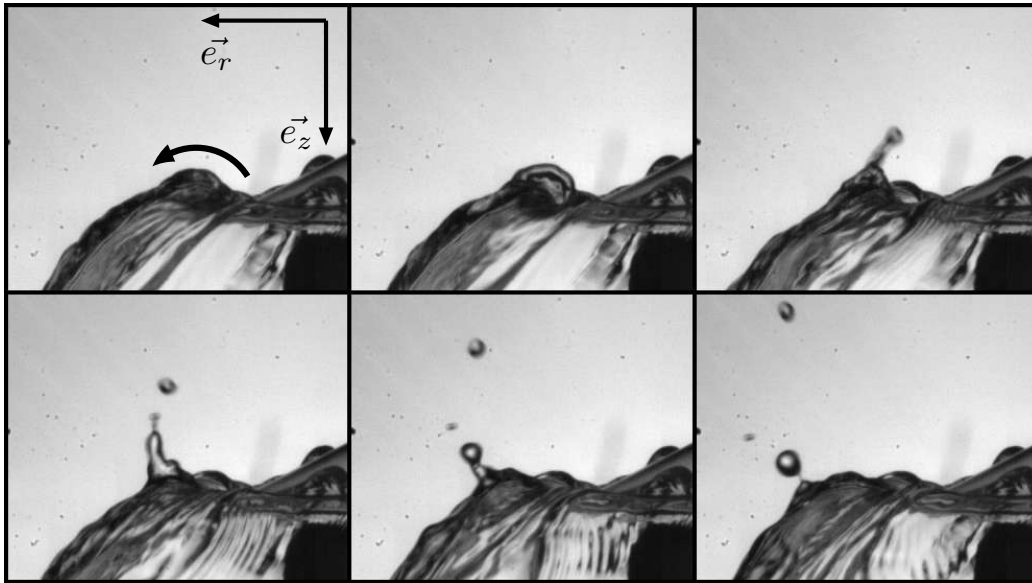


FIG. 5.2 – Illustration de l'accélération subie par le liquide dans son écoulement le long du profil d'un pli (dans le sens suggéré par la flèche) : de temps à autres la crête liquide se déstabilise et expulse un ligament qui se fragmente sous l'action de la centrifugation.

L'origine de ces rainures est suggérée par les évènements de centrifugation que l'on peut voir de temps à autres au niveau du pli. Lorsqu'une fluctuation suffisante de l'écoulement a lieu, un ligament se forme à partir de l'interface externe qui s'étire pour se fragmenter subséquentement (voir figure 5.2). Ces évènements soulignent la forte accélération normale à la nappe $\kappa_\theta u^2 \sim 10^3 \text{ m.s}^{-2}$ à laquelle le liquide est soumis dans son écoulement le long du profil de la cloche. Nous soutenons que c'est cette accélération qui déstabilise la nappe et engendre les modulations d'épaisseur que l'on observe.

Les rainures sont globalement stationnaires, mais elles ne sont pas figées pour autant. Elles apparaissent et disparaissent régulièrement au gré des fluctuations de l'écoulement. Cependant ces réorganisations maintiennent en permanence un espacement régulier des nervures ce qui laisse à penser qu'une longueur d'onde particulière λ est sélectionnée par le système. L'observation d'une cloche sous éclairage monochromatique permet de visualiser le développement des modulations d'épaisseur (voir figure 5.3). Les lignes d'iso-épaisseur révèlent que les maxima d'épaisseur locaux sont sur les mêmes rayons que les nervures qui deviennent visibles immédiatement en aval, au niveau du pli. Il semble ainsi que la sélection du mode s'opère juste en amont du pli et que la croissance se poursuive jusqu'après celui-ci, où les rainures sont alors suffisamment marquées pour être observées.

On remarquera enfin que les longueurs d'ondes λ sont de l'ordre du centimètre pour une épaisseur de la nappe à l'extension maximale $h \sim 10-100 \mu\text{m}$, ce qui donne un rapport $\lambda/h \gg 1$ que nous exploiterons pour expliquer toutes les observations précédentes.

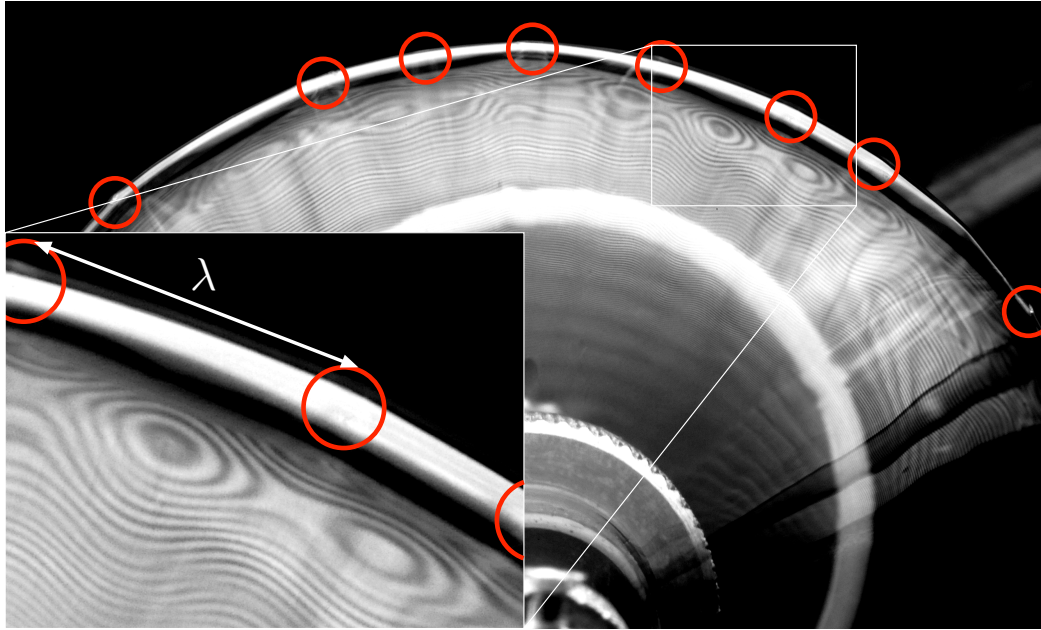


FIG. 5.3 – Vue de dessus d'une cloche présentant un pli sous l'éclairage mono-chromatique d'une lampe à sodium (le battement entre les deux fréquences du doublet spectral n'est pas visible ici). L'axe de la cloche est au milieu du côté inférieur de l'image, et un agrandissement est présenté à gauche. Les franges d'interférence dessinent les lignes d'iso-épaisseur de la nappe et mettent en évidence les modulations azimuthales de l'épaisseur qui commencent à se développer juste avant le pli. On remarquera que ces dernières coïncident avec les rainures (entourées en rouge) qui ne se développent de façon marquée qu'au niveau du pli.

5.2 Croissance tout au long de la cloche

L'accélération centripète $\gamma = \kappa_\theta u^2$ subie par le liquide promeut la déstabilisation inertielle des interfaces tout au long de la cloche. Le développement de cette instabilité de type *Rayleigh-Taylor* dépend des conditions locales. Dans le cas présent d'une couche mince d'épaisseur h le taux de croissance associé à un nombre d'onde k s'écrit¹ :

$$s(k, h, \gamma) = \omega \left\{ \left(\frac{k}{k_c} \right)^3 \left[\coth(kh) - \sqrt{\operatorname{csch}^2(kh) + \left(\frac{k_c}{k} \right)^4} \right] \right\}^{1/2} \quad (5.1)$$

où $k_c = \sqrt{\rho|\gamma|/\sigma}$ est le nombre d'onde critique et $\omega = (\rho|\gamma|^3/\sigma)^{1/4}$ le taux de croissance caractéristique, tous deux dans le cas d'une épaisseur infinie, c'est-à-dire pour $k_c h \rightarrow \infty$.

Cherchons maintenant à déterminer le mode le plus amplifié entre deux points du profil de la cloche repérés par θ_i et θ_f . Il faut d'une part prendre en compte la croissance spatiale relative $d \ln A = s \times (\kappa_\theta u)^{-1} d\theta = \mathfrak{s} d\theta$, où A est l'amplitude du mode que l'on considère, et d'autre part la modulation de cette amplitude et la

¹ Voir annexe A.

dérive des nombres d'onde dues à l'étirement transverse $(\partial_\phi \mathbf{u}/r) \cdot \mathbf{e}_\phi \times (\kappa_\theta u)^{-1} d\theta = \boldsymbol{\epsilon}_\perp d\theta$ dans la direction azimutale \mathbf{e}_ϕ , c'est-à-dire dans la direction parallèle au vecteur d'onde \mathbf{k} de la déstabilisation. Le taux de croissance local s est ici faible devant le temps caractéristique d'évolution du substrat vu par une portion de nappe en mouvement. Le gain $\mathcal{A}(\theta_i, \theta_f, k_i) = \ln[A(k_f, \theta_f)/A(k_i, \theta_i)]$ d'un mode k_i entre les coordonnées θ_i et θ_f s'écrit alors :

$$\begin{cases} \mathcal{A}(\theta_i, \theta_f, k_i) = \int_{\theta_i}^{\theta_f} [\mathfrak{s}(k, h, \gamma) - \boldsymbol{\epsilon}_\perp] d\theta \\ \text{avec } k(\theta) = \left(\int_{\theta_i}^{\theta_f} \boldsymbol{\epsilon}_\perp d\theta \right)^{-1} \times k_i \end{cases} \quad (5.2)$$

Dans le cas d'une cloche de *Savart* il n'y a pas d'étirement longitudinal $\partial_r u = 0$, et la contribution de l'étirement s'exprime alors directement en fonction de l'évolution de l'épaisseur selon $\boldsymbol{\epsilon}_\perp = -\ln h/d\theta$, équivalent à $d(kh) = 0$. Et l'équation (5.2) se simplifie grandement en :

$$\begin{cases} \mathcal{A}(\theta_i, \theta_f, k_i) = \int_{\theta_i}^{\theta_f} \mathfrak{s}(k, h, \gamma) d\theta + \ln\left(\frac{h_f}{h_i}\right) \\ \text{avec } k = \frac{h_i}{h} \times k_i \end{cases} \quad (5.3)$$

De plus tout au long du profil de la cloche, l'épaisseur h , la vitesse u et la courbure locale κ_θ ne sont pas arbitraires, mais sont reliées entre elles par la condition d'équilibre de la cloche. Afin de simplifier la discussion nous considérerons par la suite le cas des grands nombre de *Bond* pour lesquels l'équilibre se résume au système (4.4)². Le paramètre $k_c h = \sqrt{\rho|\gamma|h^2/\sigma}$ déterminant la forme de la relation de dispersion s'écrit alors :

$$k_c h = \frac{8}{We_0} \frac{1}{r} \sqrt{\frac{|\cos \theta - Pr|}{1-r}} \quad (5.4)$$

$k_c h$ décroît avec r sur une première portion de la cloche, puis il croît ensuite jusqu'à l'extension maximale. Il est donc partout inférieur aux valeurs extrêmes. La première, au niveau de l'axe, vaut :

$$k_c h|_{r=d_0/L} \simeq \frac{1}{2} \sqrt{|\cos \theta_0 - Pr_0|} < \frac{\sqrt{|\cos \theta_0|}}{2} < \frac{1}{2} \quad (5.5)$$

où l'on a considéré $d_0 \ll L$. La seconde s'écrit :

$$k_c h|_{r=r_m \sim 1} \simeq \frac{8}{We_0} \sqrt{\frac{|\cos \theta - P|}{1-r_m}} < \frac{8\sqrt{2}}{We_0} \sqrt{\frac{1}{1-r_m}} \quad (5.6)$$

et dépend fortement de la valeur de l'extension maximale r_m . Celle-ci n'est proche de 1 que lorsque la pression P est proche de la pression critique de retournement P_c

² On ne s'attend pas à ce que la physique du phénomène soit modifiée pour des nombres de *Bond* réalistes; simplement les complications associées à leur prise en compte brouilleraient inutilement le message.

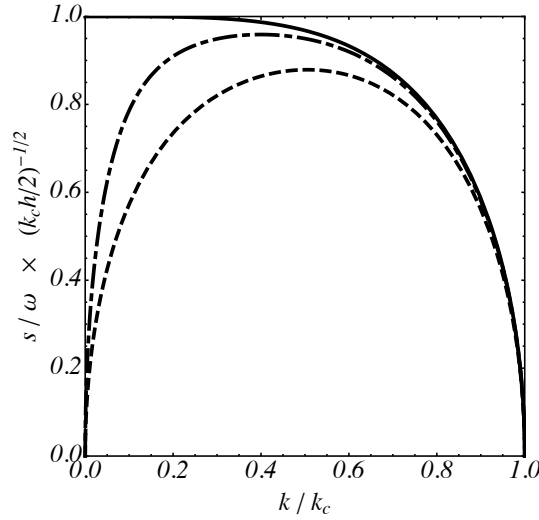


FIG. 5.4 – Relation de dispersion (5.1) pour $k_c h = 1/2$ (— · —), $k_c h = 1/5$ (---) et $k_c h \rightarrow 0$ (—).

et dans ce cas, (5.6) peut se réécrire :

$$\begin{cases} k_c h|_{r=r_m} \simeq \frac{16}{We_0} \sqrt{\frac{1-P}{P_c-P}} & \text{pour } P < P_c \\ k_c h|_{r=r_m} \simeq \frac{16}{We_0} \sqrt{\frac{1+P}{P-P_c}} & \text{pour } P > P_c \end{cases} \quad (5.7)$$

On voit alors que $k_c h$ est toujours petit devant 1 hormis pour les cloches dont la pression interne est très proche de la pression critique P_c . Pour les cloches présentant un pli la pression est par définition proche de P_c . Néanmoins les estimations les plus pénalisantes pour toutes les cloches que nous avons étudiées montrent que $k_c h$ est toujours inférieur à $1/3$. Cette condition n'est pas nécessairement générale mais nous l'utiliserons ici pour ne raisonner que sur une déstabilisation *en couche mince*, c'est-à-dire telle que $k_c h \ll 1$, comme le suggèrent les longueurs d'onde sélectionnées valant cent à mille fois l'épaisseur h au niveau du pli.

Dans cette limite $k_c h \ll 1$, le taux de croissance des modes les plus amplifiés dépend intrinsèquement de h et il s'écrit :

$$s_m = \omega \sqrt{\frac{k_c h}{2}} \sqrt{1 - \left(\frac{k}{k_c}\right)^4} \quad (5.8)$$

La figure 5.4 illustre la convergence de la relation de dispersion (5.1) vers cette limite. On y voit que dès $k_c h \leq 1/2$, l'erreur sur le taux de croissance maximal est inférieure à 15%. Nous considérerons donc par la suite que l'équation (5.8) est une bonne description de la croissance de l'instabilité tout au long du profil; elle en est en tout les cas un majorant.

Il y a surtout un fait remarquable à la croissance de l'instabilité sur une couche mince, c'est que (pour $k_c h \ll 1$ toujours) le taux de croissance ne dépend *pas* du

signe de la courbure. En effet les deux interfaces se couplent et évoluent en phase ; leurs amplitudes croissent alors au même rythme (voir [27] et annexe A).

Ainsi, au taux de croissance temporel maximal $s_m = \sqrt{\rho h / 2\sigma} |\gamma| = |\gamma| / V$ correspond un temps de croissance spatial \mathfrak{s}_m dépendant uniquement du rayon r selon :

$$\mathfrak{s}_m = \frac{|\kappa_\theta u^2|}{V} \frac{1}{\kappa_\theta u} = \sqrt{\frac{We}{2}} \frac{|d\theta|}{d\theta} = \frac{1}{\sqrt{r}} \frac{|d\theta|}{d\theta} \quad (5.9)$$

Ce taux de croissance spatial est indépendant de la courbure ; il ne dépend que du nombre de *Weber* local, ou de façon équivalente du rayon r pour le cas présent d'une cloche axi-symétrique à écoulement radial. \mathfrak{s}_m est fort pour les faibles rayons r . C'est-à-dire là où la courbure évolue très peu, ce qui conduit à un gain faible, mais aussi là où le taux d'étirement du substrat, qui inhibe l'instabilité, est le plus fort. En effet, ce taux d'étirement spatial s'écrit :

$$\epsilon_\perp = -\frac{\sin \theta}{\kappa_\theta r} \quad (5.10)$$

et il est donc fort, près de l'axe et négligeable en $r \sim 1$. Son signe dépend de l'hémisphère considéré. Ainsi sur le premier hémisphère de la cloche, où les lignes de courant divergent et imposent un étirement qui inhibe l'instabilité, la croissance des nervures est limitée aux rayons d'ordre 1. C'est pour cette raison que les nervures n'apparaissent pas avant le pli.

Inversement sur le second hémisphère, la convergence des lignes de courant concoure à l'amplification des modulations et son taux s'ajoute à celui de la croissance de l'instabilité. Cela explique pourquoi, même en l'absence de pli, on observe toujours les rainures au voisinage de l'axe *en aval* de l'équateur.

5.3 Croissance sur un pli

Maintenant qu'il est clair que la déstabilisation ne peut survenir qu'aux rayons r d'ordre 1, nous allons nous concentrer sur le développement d'une perturbation au voisinage du pli. Le substrat y varie peu car $\Delta r / r \ll 1$ et l'étirement ainsi que la dérive des nombres d'ondes peuvent-y être négligés. Il est alors possible d'exprimer simplement le gain enveloppe \mathcal{A}_m à partir de la perturbation localement la plus amplifiée dont le taux de croissance est \mathfrak{s}_m défini à l'équation (5.9) ; soit³ :

$$\mathcal{A}_m = \int_{\theta_i}^{\theta_f} \mathfrak{s}_m d\theta = \int_{\theta_i}^{\theta_f} \sqrt{\frac{We}{2}} |d\theta| = \int_{\theta_i}^{\theta_f} \frac{1}{\sqrt{r}} |d\theta| \quad (5.11)$$

Pour un nombre de *Weber* proche de 2 et variant peu sur l'ensemble des courbures du pli, ou de façon équivalente pour $r \simeq 1$, l'équation (5.11) se résume à :

$$\mathcal{A}_m \simeq \int_{\theta_i}^{\theta_f} |d\theta| \quad (5.12)$$

³ Il est bien sûr possible d'intégrer numériquement l'équation (5.3) pour un profil de cloche quelconque et des angles θ_i et θ_f arbitraires puisque l'on est capable, à partir de l'intégrale (4.5) et de l'équation (4.4), d'exprimer explicitement $h(\theta)$, $u(\theta)$, $\kappa_\theta(\theta) = -\partial_s \theta$, et donc $\gamma(\theta)$. Cette approche difficilement exhaustive donne à chaque fois des croissances majorées mais proches, pour les modes les plus instables, de celles données par l'approximation (5.11).

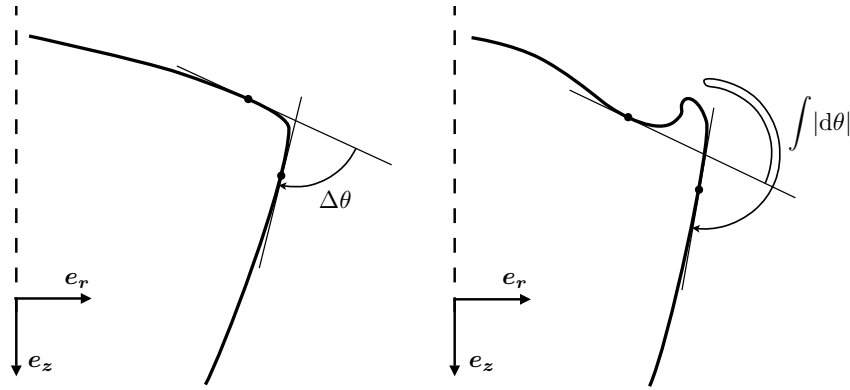


FIG. 5.5 – Illustration de la somme “absolue” $\int |d\theta|$ des courbures parcourues par un élément de liquide au voisinage du rayon maximal. **Gauche** : Pour une cloche convexe. **Droite** : Pour une cloche présentant un pli.

Ce qui signifie simplement que c’est l’ensemble des courbures (*quels que soient leurs signes*) “suivies” par une portion de fluide dans son écoulement le long du profil du pli qui détermine l’amplitude de la déstabilisation subie. Comme mentionné plus haut, cela tient à ce que pour les longueurs d’ondes grandes devant l’épaisseur de la nappe les deux interfaces se couplent et croissent de concert.

Tout est dit ! On comprend dès lors pourquoi, à géométrie globale équivalente, un profil intégralement convexe ne donne pas de nervures alors qu’un profil présentant un pli en donne :

- dans le premier cas $\int |d\theta| = \Delta\theta \sim \pi/2$ (voir figure 5.3),
- alors que dans le second, du fait de la double inflexion du profil, $\int |d\theta| > 3\pi/2$.

La différence peut sembler faible mais le rapport des gains $e^\pi > 20$ suffit à expliquer que les nervures soient marquées dans un cas et pas dans l’autre.

Nous concluons en soulignant que la confrontation des longueurs d’ondes observées avec celles que l’on attend d’un tel mécanisme de centrifugation a été un temps envisagée avant d’être abandonnée car elle se révélait peu pertinente. Il est en effet difficile de varier les paramètres de ces cloches singulières qui n’existent qu’au voisinage d’une condition bien particulière. Comme nous l’avons déjà fait remarquer, la sélection de mode est liée à l’historique des courbures que suit un élément de fluide en amont et au voisinage du pli et s’avère difficilement tractable analytiquement.

On se contentera donc de remarquer que la longueur d’onde critique *minimale* (et donc estimée à partir de la courbure $|\kappa_\theta|$ *maximale* du profil)

$$\lambda_c = 2\pi \sqrt{\frac{\sigma}{\rho|\kappa_\theta|u^2}} \sim 1 \text{ mm} \quad (5.13)$$

vaut systématiquement de 10 à 20 fois la longueur d’onde mesurée λ . Ce qui est compatible avec la sélection de mode dans le cas $k_c h \ll 1$ (voir figure 5.4) et le fait que cette sélection se fasse sur une portion de profil dont la courbure varie depuis zéro au point d’inflexion jusqu’à la valeur maximale utilisée ici.

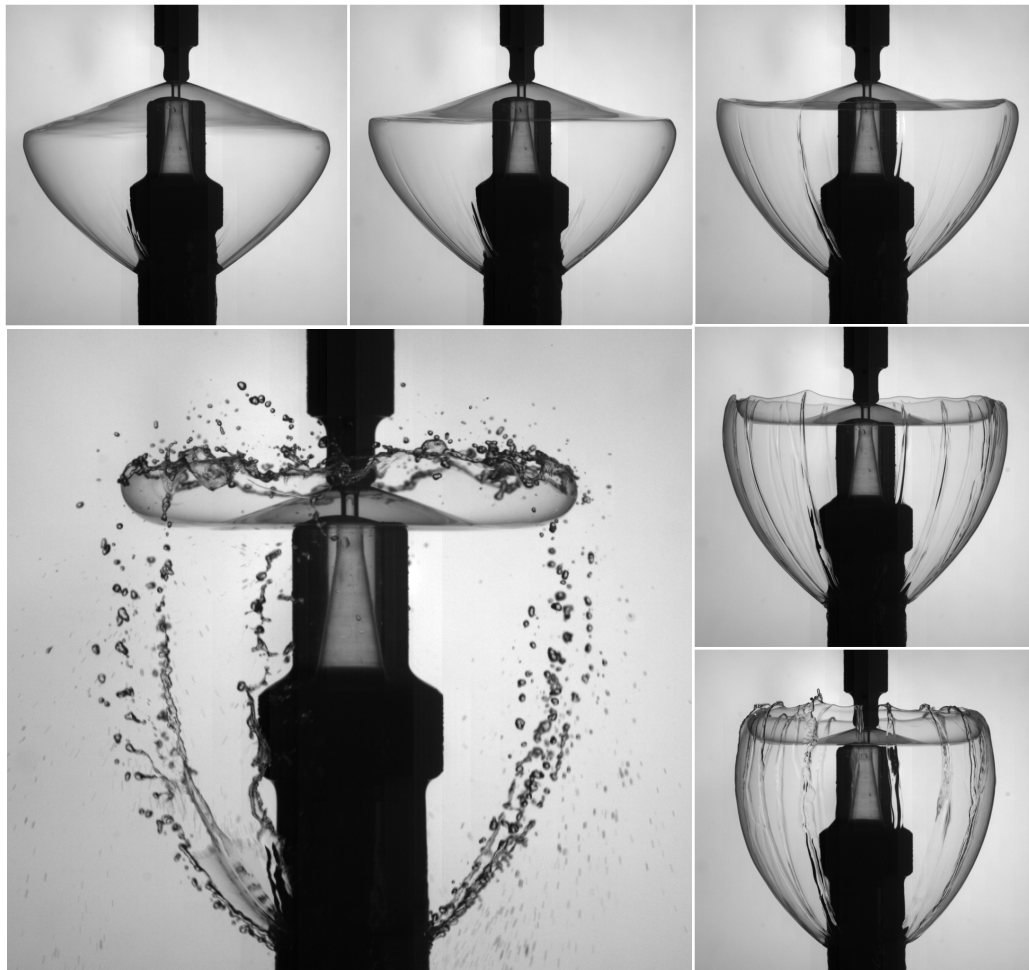


FIG. 5.6 – **Séquence** : Cloche non stationnaire transitant par une forme anguleuse à partir de laquelle se développent des nervures particulièrement marquées. Celles-ci provoquent en retour une modulation azimutale de la forme de la cloche visible sur la dernière image de la séquence (les images sont séparées de 21.5 ms et leur largeur correspond à 110 mm). **Agrandissement** : Les nervures sont mises en évidence immédiatement après la fragmentation par l'organisation des trains de gouttes.

Troisième partie

Vieillessement et fragmentation d'une bulle de surface

Introduction

Cette partie aborde la question de la formation des aérosols marins ; prémisses indispensables à tout modèle climatologique puisque les aérosols pilotent les échanges de matière et de chaleur entre océans et atmosphère et fournissent les noyaux de condensation des gouttes de pluie. Depuis les idées de Jacobs [86] et Knellman & al [93] et les travaux intensifs de Blanchard [192, 16, 38, 17, 39], les bulles de surface continûment formées par le déferlement des vagues sont identifiées comme une source importante de ces aérosols. Le mécanisme que nous étudions ici concerne la désintégration du film constituant la calotte des bulles (c'est-à-dire séparant la cavité d'air de l'atmosphère). La dynamique de ce mécanisme et notamment le nombre et la taille des gouttes produites dépend du rayon R de la bulle mais aussi de l'épaisseur h du film à l'instant où la bulle éclate. Se pose donc naturellement la question de l'aminçissement régulier du film et de la durée de vie de la bulle.

Dans l'optique de répondre à ces questions et d'offrir une prédiction du contenu en aérosols en fonction de la seule distribution des tailles de bulles générée par les vagues, nous avons étudié la "vie" d'une bulle d'air dans de l'eau du robinet depuis son arrivée à la surface jusqu'aux dernières étapes de la fragmentation du film.

Sur la base de la géométrie qu'une bulle adopte à la surface, un modèle de drainage du film $h(t)$ asservi à la striction dite *marginale* que celui-ci présente naturellement à sa base [4] est avancé qui s'accorde avec les mesures.

Le problème de la nucléation d'un trou à travers le film de la calotte est alors étudié. Il est montré que l'énergie cinétique du mouvement turbulent, engendré par l'instabilité de *régénération marginale* [138] à l'œuvre au pied de la bulle, est insuffisante pour provoquer le perçage. Les observations suggèrent néanmoins que ces événements de nucléation interviennent principalement au niveau des structures de convection, vraisemblablement parce qu'elles réalisent un échange de liquide avec le bain sous-jacent et introduisent potentiellement des défauts à même de favoriser la nucléation. En supposant simplement la probabilité de rupture extensive au nombre de structures émises, le comportement empirique de l'épaisseur à l'éclatement $h_b \propto R^2$ (conforme aux observations antérieures [166]), selon lequel les bulles de grande taille éclatent alors que leur film est épais, est retrouvé.

La dynamique de fragmentation du film est ensuite entièrement décrite en terme de l'épaisseur à l'éclatement h_b et du rayon R . On peut s'étonner de ce que cette dynamique de déstabilisation inertielle n'ait pas attirée plus d'attention et n'ait pas déjà reçu d'explication alors qu'elle est par exemple clairement apparente sur les films stéréoscopiques à haute cadence tournés à l'institut *Etienne-Jules Marey* au tout début du xx^e siècle [35]. Marangoni [124] a même réalisé le tour de force d'observer les ligaments par persistance rétinienne 30 ans plus tôt !

Enfin le modèle de densité de probabilité des tailles de gouttes, en accord avec les mesures en laboratoire, est appliqué à la population de bulles formée par le déferlement des vagues [54] et comparé à des mesures effectuées à la surface de la mer [194].

Cette étude est présentée sous la forme d'un article finalisé en attente de soumission qui décrit l'ensemble de la "vie" d'une bulle de surface et d'une courte lettre publiée en 2009, qui récapitule un poster et se focalise sur la première étape de l'éclatement.

Chapitre 6

Vieillissement et fragmentation d'une bulle de surface

6.1 Article en attente de soumission

Bursting Bubbles Aerosols

H. LHUISSIER AND E. VILLERMAUX†

Aix-Marseille Université, IRPHE, 13384 Marseille Cedex 13, France

(Received June 8, 2011)

We depict and analyze the complete evolution of an air bubble formed in a water bulk, from the time it emerges at the liquid surface, up to its fragmentation in dispersed drops. To this end, experiments describing the drainage of the bubble cap film, its puncture and the resulting bursting dynamics determining the aerosol formation are conducted on tap water bubbles. We discover that the mechanism of *marginal pinching* at the bubble foot and associated convection motions in the bubble cap, known as *marginal regeneration* drive both the bubble cap drainage rate, and are responsible for its puncture. The resulting original film thickness h evolution law in time, supplemented with considerations about the nucleation of holes piercing the film altogether culminate in a determination of the cap film thickness at bursting $h_b \propto R^2/\mathcal{L}$, where R is the bubble cap radius of curvature, and \mathcal{L} a length which we determine. Subsequent to a hole nucleation event, the cap bursting dynamics conditions the resulting spray. The later depends both on the bubble shape prescribed by R/a , where a is the capillary length based on gravity, and on h_b . The mean drop size $\langle d \rangle \sim R^{3/s} h_b^{5/s}$, the number of drop generated per bubble $N \sim (R/a)^2 (R/h_b)^{7/s}$ and the drop size distribution $P(d)$ are derived, comparing favorably with measurements. Combined with known bubbles production rates over the ocean, our findings offer an adjustable parameter free prediction for the aerosol flux and spray structure caused by bubble bursting in this precise context.

Key Words: bubble, droplet, aerosols, interface, instability, surface tension.

1. Introduction

The question of the aerosols flux from the Earth surface to the atmosphere has been addressed since Aitken (1881) works on condensation nuclei. Among different production mechanisms, those occurring at the sea surface are predominant (Coantic 1980; Andreas *et al.* 1995; O’Dowd & de Leeuw 2007), in particular those associated to wave breaking at the coasts in the so-called ‘surf zone’. The water surface agitation there induces various atomization processes (see e.g. figure 1), which also contribute to the sea/atmosphere water vapor exchanges, and global equilibrium at the Earth scale (Monahan & Dam 2001). For instance, sea spray evaporation is estimated to overcome natural evaporation as soon as the wind speed exceeds 15 m/s (Latham & Smith 1990; Andreas *et al.* 1995).

Wave breaking produces a foam of bubbles, which eventually burst, projecting a large collection of drops in the air. Two processes are involved depending on the particular shape an air bubble adopts when it lays at the surface of a liquid bulk, as schematized in figure 2. A first fragmentation process was identified by Jacobs (1937) in the pinch-off of the well-known Worthington upward jet (Worthington & Cole 1897) formed from the collapse of the cavity by the sudden pressure drop following the bubble cap breakup.

† Also at Institut Universitaire de France

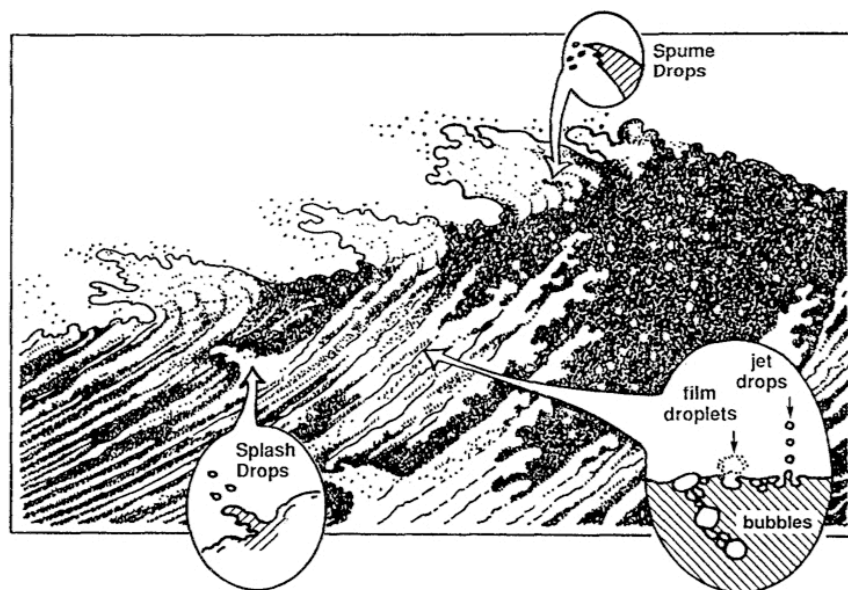


FIGURE 1. Origins of the different kinds of sea spray droplets. The present study concerns the ‘film droplets’ production mechanism. Adapted from Fig. 1 in page 5 of Andreas *et al.* (1995).

It concerns small bubbles, down to microns in size, and never produces more than ten ‘jet drops’ per bubble (Blanchard 1963). A second process, much more efficient and concerning millimetric bubbles was later identified by Knelman *et al.* (1954). It consists in the disintegration of the thin liquid film separating the cavity from the atmosphere, the bubble cap, which produces up to hundreds of ‘film drops’ per bubble (Blanchard & Sysdek 1988; Resch & Afeti 1991; Spiel 1998).

This paper is concerned with this later mechanism. It aims at quantitatively estimating the inherent aerosol production by studying all the intermediate steps contributing to it. Our approach is to study isolated bubbles of cap radius R ranging from $100\ \mu\text{m}$ to $1\ \text{cm}$, those corresponding to the film drop production range (see section 4) at the surface of a tap water bulk. Their behavior is found to be very similar to that of bubbles formed out of sea water (by contrast with soap bubbles where the presence of a large quantity of surfactant drastically alters the behavior). Every step of the bubble life essential to understand the cap disintegration is studied. We found no need to describe the precise bubble initiation below the liquid surface since the subsequent bubble evolution remained unchanged under profound variations of formation mechanisms and depth of initiation.

Bubbles burst by nucleating a hole on their cap. The bursting dynamics depends, however, directly on the cap thickness h_b at the moment the hole forms; section 2 describes the bubble cap drainage and puncture. We observe that this problem can be split into two parts: a deterministic film thinning due to the liquid drainage into its base meniscus, and a hole nucleation event through the bubble cap which is stochastic and is analyzed accordingly.

Liquid film drainage has yet been intensively studied for foams and their broad applications. However the cap shape configuration of surface bubbles which imposes a pressure $2\sigma/R$ to the liquid in the film is not always accounted for (σ stands for the liquid surface tension). Even more important, most studies (Schwartz & Roy 1999; Howell 1999; de Gennes 2001; Aradian *et al.* 2001; Breward & Howell 2002) use two-dimensional configurations implicitly assuming a symmetry of revolution, or horizontal translation invari-

Bursting bubbles aerosols

3

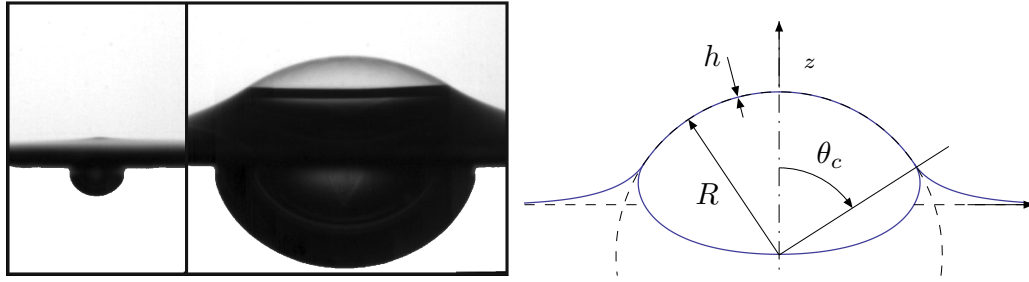


FIGURE 2. **Left:** Two bubbles of different sizes at the surface of a water bulk ($R \simeq 0.25$ and 3 mm respectively). **Right:** Schematic section of a millimetric bubble. The bubble cap is a film of thickness h , extending on a sphere portion of radius R and half angle θ_c and connected to the bulk via the meniscus surrounding it.

ance. They certainly offer a good description for soap films where large surface viscosities induced by large surfactant concentrations rapidly damp all motion in the film plane, but they cannot describe the drainage dynamics relevant for water bubbles where convection motions play a first order role, as we will show. The marginal pinching occurring at the bubble foot where the cap connects to its meniscus is indeed known to be unstable for low surface viscosity (Bruinsma 1995). The resulting convection cells emission is called *marginal regeneration* after Mysels *et al.* (1959). We develop in section 2.2 a heuristic model where all those features are articulated together, providing a thickness evolution law h agreeing quantitatively with the measurements.

The cap puncture mechanism is then considered. Puncture consists in nucleating a large enough hole through the cap, an event requiring an activation energy σh^2 . It is shown that for the range of thickness $h_b \sim 100$ nm – 10 μ m involved, neither thermal fluctuations, nor marginal regeneration induced film turbulence can account for puncture. The detailed puncture mechanism remains unclear; we nevertheless develop a model in section 3 based on the observation that puncture preferentially appears at the bubble foot within the convection cells, which accounts for the very robust observation that the cap mean thickness h_b at the onset of bursting scales as

$$h_b \propto \frac{R^2}{\mathcal{L}} \quad (1.1)$$

as indicated by the measurements made by Spiel (1998) with sea water, and ours. We give an interpretation of the mysterious length \mathcal{L} .

The last step involved in the aerosol production is the cap disintegration. Although its dynamics is fast, typically less than 1 ms, unambiguous direct visualization using modern imagery (Photron APX) makes its study comparatively easier than that of drainage or puncture. Note however that neat observations did not require such elaborated apparatus: As early as in 1672, Robert Hooke noted that (citation reported by Plateau (1873))

It is singular also that after that, when the bubble bursts, its rupture takes place with a species of explosion, by dispersing its parts in a kind of dust or fog.

Later, Marangoni & Stefanelli (1872) even managed to see liquid ligaments, mediating the fragmentation into drops, by simple vision persistence on a bursting bubble lit by a spark. Finally, perennial visual evidence of the breakup scenario has been available at the early age of cinematography from the stereoscopic movies by Etienne Jules Marey (Bull 1904), depicting unambiguously the whole sequence of the bursting of a soap bubble pierced by a bullet. In the context of marine aerosol production however, these precious observations seem to have been overlooked. As already mentioned, the group of N. Dombrowski identified the film disintegration as a droplet source (Newitt *et al.* 1954), but together

with Blanchard & Sysdek (1988), misunderstood its dynamics. The formation of ligaments actually results from the inertial destabilization of the rim bordering the opening hole, collecting the film liquid, as we show (see also Lhuissier & Villiermaux 2009). Resch & Afeti (1991) obtained photographic evidences of this scenario but did not identify it and focused on drop size distributions without explaining their origin. Spiel (1998) was the first to propose a quantitative description of the average drops size. But although he noticed the rim undergoes a centripetal acceleration as it recedes, he did not identify the *Rayleigh-Taylor* destabilization as the selection mechanism. He predicted that the angle covered by recession on the bubble cap before drops ejection occurs is independent of bubble size, in contradiction with our observations and understanding of them, which in addition provide good predictions for destabilization time, size of ligaments, number of droplets and droplets size distributions (section 4).

In section 5, the results obtained on single bubbles are applied to the context of marine aerosols. In situ bubbles population measurements by Deane & Stokes (2002) are used to estimate the net aerosol content due to film bubble disintegration. The corresponding prediction is seen to compare favorably with field measurements by Wu *et al.* (1984).

2. Drainage

A gas bubble at an interface can be schematically considered as a thin curved liquid film, the cap, connected to the bulk via a meniscus and enclosing an air cavity (see figure 2). In the same way, its life can be seen as a long, but variable period when the cap bubble thins as the cavity is immobile, inevitably ended by the cap puncture. We consider in this section these successive steps. They result from the impossibility of a static equilibrium, leading to the liquid film drainage into the bulk.

2.1. Bubble shape

The bubble shape directly influences the film drainage through both the film orientation with respect to the direction of gravity, and capillary pressure induced by the interface curvatures. It also determines the bursting dynamics via the cap extension and curvature. The determination of this shape is thus mandatory for understanding the whole bubble life and it is our starting point.

The bubble shape is prescribed by the size of the bubble, say its cap radius of curvature R , relative to the capillary length $a = \sqrt{\sigma/\rho g}$, which determines whether capillarity σ/R is predominant or not against gravity $\rho g R$, where ρ is the liquid density. The shape can be determined assuming hydrostatic equilibrium in the bulk and in the meniscus and obeying *Young-Laplace* equation at each interface. As will be seen in subsection 2.2.1, the film thickness h is nearly instantaneously small enough for its weight to be neglected. In the same way, relative surface tension variations $\Delta\sigma/\sigma$, which are mandatory for sustaining the bubble, are small enough for surface tension to be considered as uniform. The weightless bubble cap thus adopts a hemispherical shape whose extension is imposed by the air cavity volume and the conditions at the meniscus. Figure 3 shows numerical bubble profiles obtained for bubbles of different relative sizes R/a with the same approach as Toba (1959) (see also appendix A). As one would expect, small bubbles are found to be almost spherical and totally immersed in the liquid whereas large ones float and adopt a hemispherical shape.

For $R < a$, the relative cap extension varies strongly with R . In the limit case $R \ll a$, gravity plays no role and the bubble cavity is expected to be spherical and maintained below the surface. Pressure jumps at the interfaces impose the cavity radius to be half the cap radius R , because the cap is a film and has two interfaces while the cavity has a

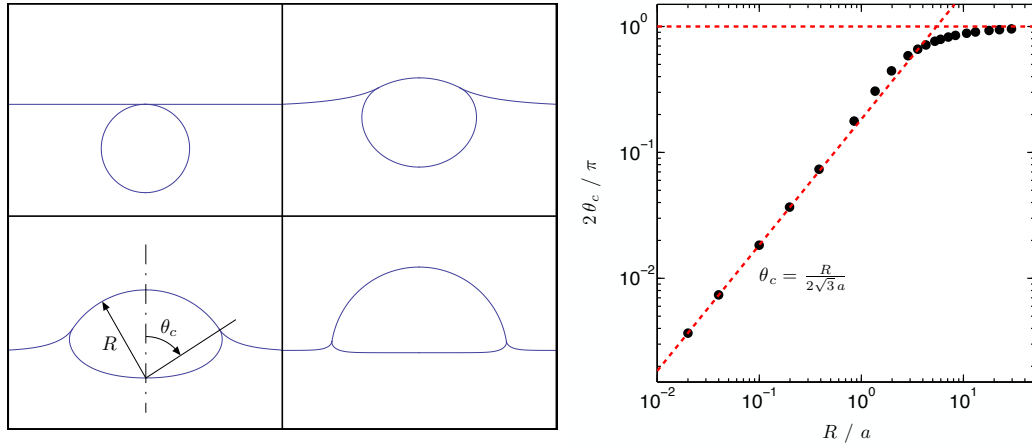


FIGURE 3. **Left:** Bubble shapes for increasing radii R (scale is *not* respected). **Right:** Cap angle θ_c versus bubble radius R (\bullet) obtained by numerical integration of *Young-Laplace* equation using *Mathematica* software (see appendix A). Red dotted lines ($-\cdot-$) are asymptotic behaviors defined in equation (2.3).

single one. The resultant buoyancy

$$\rho g \times \frac{4\pi}{3} \left(\frac{R}{2}\right)^3 \quad (2.1)$$

is therefore equilibrated by the surface tension vertical component $\sigma \sin \theta_c$ applying on the cap perimeter

$$\sigma \sin \theta_c \times 2\pi R \sin \theta_c \quad (2.2)$$

where θ_c is the half cap angle defining its extension, as sketched in figure 2. Thus θ_c writes

$$\lim_{R/a \rightarrow 0} \theta_c = \frac{R}{2\sqrt{3}a} \quad (2.3)$$

Figure 3 shows that this approximation is valid up to bubble radii surprisingly large, namely as large as $R = 5a$. This is precisely the range of bubble sizes we will be concerned with (see section 4). Therefore, in the following, if not otherwise mentioned, the cap half extension $E = R\theta_c$ will be considered to be of order

$$E = R\theta_c \sim \frac{R^2}{a} \quad (2.4)$$

2.2. Cap film drainage

When an air bubble arrives from the bulk at the surface of water, the liquid layer separating it from the atmosphere emerges out above the surface level to form the cap. It then necessarily drains into the bulk. The driving effect of this drainage flow is either the capillary pressure inside the cap $2\sigma/R$, or the hydrostatic pressure $\rho g R$ depending on the ratio R/a as discussed above. For the range of sizes $R \leq 5a$ we are concerned with, the capillary pressure is always comparable to, or dominates hydrostatic pressure. If the bubble lives at the surface for more than a fraction of a second, gravity imposes that a vertical surface tension gradient establishes to sustain the liquid, and this is permitted by a concentration gradient of surfactants (unavoidably present in tap or sea water) along the bubble cap. Three successive stages can then be distinguished (at least conceptually):

a primary fast inertial drainage when the flow in a film section is typically a plug flow, a subsequent drainage when the surfactant monolayer stretches on the bubble cap and concentrates at its foot until the necessary surface tension gradient is established, and a last slow drainage which involves both viscous and convection flows (section 2.2.2).

2.2.1. Fast early drainage and surfactants

Initial free drainage begins during the emergence of the air cavity above the bulk and proceeds until the surface tension gradient mandatory to balance the cap liquid weight is established. Most of the cap initial liquid is evacuated back to the bulk within this stage which typically lasts a capillary emptying time (remember capillary pressure dominates hydrostatic pressure) $\sqrt{\rho R E^2 / \sigma}$, where ρ is the liquid density. For $R = a = 2.7$ mm in water, this time is of order 10^{-2} s and decreases strongly with R . The remaining thickness at the end of this fast early drainage depends strongly on water purity.

If water is pure, the film liquid is free to slip at the interface and drains in a plug flow. The only slowing effect thus potentially resides in the film viscous stretching but its characteristic time $\eta R / \sigma \sim 10^{-4}$ s, where η is the liquid viscosity, makes it ineffective even for centimetric water bubbles (note that this timescale corresponds to the drainage time $\eta / \rho g R$ observed by Debrégeas *et al.* (1998) for 'bare' molten glass bubbles when gravity is the driving force). Such pure water bubbles thus drain and burst almost immediately after reaching the surface. This peculiar behavior has been noticed by Newitt *et al.* (1954) and precisely accounted for by Blanchard *et al.* (1972). It was also observed in our experiments.

On the other hand, for the usual case of non distilled water, bubbles can live for a time t longer than 1 s, as suggests common observation with tap water or any kind of water found in nature — in rivers, oceans or rain puddles. The fundamental idea is that this later behavior is by far the more common, either in nature or in human processes, since an astonishingly small amount of surface-active components is required to maintain the bubble integrity. Actually we were able to obtain lasting bubbles in distilled water exposed for a few seconds only to the laboratory atmosphere. The particularly high surface energy of water is thus crucial for the bubble life time via its strong propensity to adsorb pollutants at its interface, a fact known long ago (Hagen 1846). We are precisely concerned by bubbles formed out of a such highly diluted solutions. They represent an intermediary state between immediately bursting pure liquid bubbles, and minutes or hours lasting saturated soap bubbles which are completely different both regarding their drainage dynamics, and puncture mechanism (see section 3).

We thus consider bubbles whose liquid films are sandwiched between two *mobile* monolayers of surfactants at each interface. In this condition, drainage remains free as long as the momentum diffusion time across a film section h^2 / ν is short compared to the capillary emptying time $\sqrt{\rho R E^2 / \sigma}$. Equalizing both characteristic times yields the magnitude of the thickness h_η at which the monolayers start to be stretched by the interstitial flow

$$h_\eta \sim \left(\frac{\eta^2 a^3}{\rho \sigma} \right)^{1/4} \left(\frac{R}{a} \right)^{5/4} \sim 10 - 100 \mu\text{m} \quad (2.5)$$

This length is not necessarily the film thickness at the beginning of the viscous drainage we will discuss in section 2.2.2; surface tension gradients of the surface monolayers are also to be considered.

Indeed surface tension variations result from inhomogeneities in the surface concentration c of impurities adsorbed at the interface. In the diluted limit we are considering,

Bursting bubbles aerosols

7

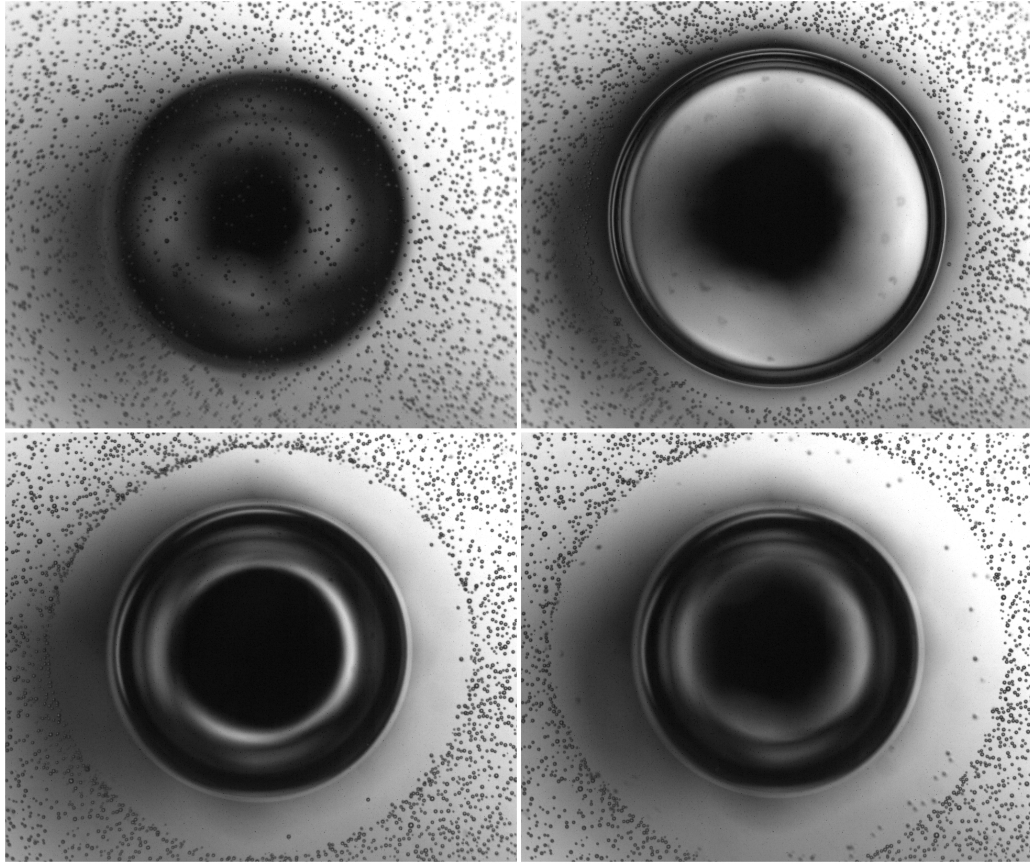


FIGURE 4. Cleaning of the interface accompanying the emergence of an air bubble at the bulk surface seen from above. The interface was previously seeded with homogeneously spread small bubbles of diameters between 10 and $50\ \mu\text{m}$. The bubble cap radius is $R \simeq 5\ \text{mm}$, and time between images is 14 ms.

the surface spreading pressure isotherm reduces to

$$\sigma_0 - \sigma = k_B T c \quad (2.6)$$

where σ_0 is the surface concentration of the pure solution, k_B is the *Boltzmann* constant and T is temperature. Impurities which are initially evenly distributed at the water interface are dragged down during the transition between the inertial and the viscous state by the downward film flow over the bubble cap. This effect is illustrated in figure 4 where the liquid surface has been seeded with micrometric bubbles acting roughly as passive surface tracers which are expelled radially as the bubble emerges, leaving a ‘clean’ interface over the bubble cap.

The bubble apex surface concentration is thus lowered by the surface stretching, concomitant with the film thinning, until the surface tension difference $\Delta\sigma$ (between the bubble apex and the bulk) mandatory to maintain equilibrium is established. That difference is the sum of two contributions. The first one corresponding to the film liquid weight projection along the local film tangent direction is $\rho g h R (1 - \cos \theta_c) / \sigma \leq R h / a^2$. The second one which is due to the shear stresses across the pinching region that form

at the bubble foot (described in section 2.2.3) is of order $\sigma h/R$ leading to

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} \sim \frac{Rh}{a^2} + \frac{h}{R} \quad (2.7)$$

The thickness at the beginning of the viscous drainage can therefore be estimated if the initial spreading pressure $\sigma_0 - \sigma_b$ is known, where σ_b is the bulk surface tension, since it represents an upper bound for surface tension difference $\Delta\sigma$ between any pair of points at the liquid interface. Expressing that the film further thins by stretching the surface monolayers until $\Delta\sigma$ adapts to this maximal value, we have from equations (2.7) and (2.6) a new expression for the thickness at the end of the free fall drainage regime

$$h_\sigma \sim a \frac{\sigma_0 - \sigma_b}{\sigma_0} \left(\frac{a}{R} + \frac{R}{a} \right)^{-1} \quad (2.8)$$

In all our experiments on bubble drainage and life time, we used the 'same' tap water for the bulk solution. Its surface tension at 20°C was measured by the pendant drop method yielding $\sigma_b = 71.2 \text{ mN.m}^{-1}$ with a relative standard deviation of 0.6% over 16 drops. Comparison with tabulated values for pure water $\sigma_0 = 72.7 \pm 0.05 \text{ mN.m}^{-1}$ (Lide 1999) gives an estimate of $\sigma_0 - \sigma_b \sim 1 \text{ mN.m}^{-1} \ll \sigma_0$.

This shows that for the bubbles we are concerned with, the limiting condition for the thickness at the end of the free fall drainage regime is $h = h_\sigma \ll h_\eta$. These values for $\sigma_0 - \sigma_b$ and h_σ also justify the assumptions made in section 2.1, namely that surface tension is essentially uniform and that the cap liquid weight is negligible.

2.2.2. Viscous drainage

Once the surface tension gradient standing the cap liquid weight is set, the drainage of the cap consists in two opposite fluxes. Interstitial liquid is flowing downward to the bulk while surface components are being pushed upward as the liquid weight to bear decreases. The extrapolated final state, in the absence of puncture, is a vanishingly thin film covered by a uniform surface concentration.

The rate of drainage is not determined by the flow over the whole bubble cap but is instead prescribed by the conditions at the foot of the bubble, where the cap connects to the meniscus. Indeed, immediately after the formation of a bubble, a two-dimensional convection motion develops over the cap. This motion, which is generic to liquid films connected to a bulk or a frame, is called *marginal regeneration* since Mysels *et al.* (1959)'s description of the phenomenon. It consists in the periodic emission of regularly spaced plumes which form at the lower border of the cap, where it connects to the meniscus. Figure 6 shows a sequence of this phenomenon observed on a flat water film connected to a bulk. It is evidenced by the interferences fringes revealing iso-thickness lines. Once they have left the pinching zone, the thinner plumes rise due to their positive buoyancy with respect to the surrounding thicker portions of the film.

For convenience, marginal regeneration observations were mainly carried out at the base of flat films since lighting and imaging are easier. It however takes place in the very same way on hemispherical bubbles as can be clearly seen on figure 6 or 16. These two figures illustrate that the convections cells invade the whole cap surface and thus realize an efficient two-dimensional turbulent mixing over the whole liquid film. This leads to a very uniform thickness h of the film all over the cap as suggested by the constancy of the opening velocity $V = \sqrt{2\sigma/\rho h}$ of a hole growing on the cap (see section 4).

The mean film thickness h decreases as the film drains but does so more rapidly than would be expected from a cap *Poiseuille* flow limited thinning. The pressure within the cap $2\sigma/R$ is indeed uniform and in that context the viscous flow would be driven by

Bursting bubbles aerosols

9

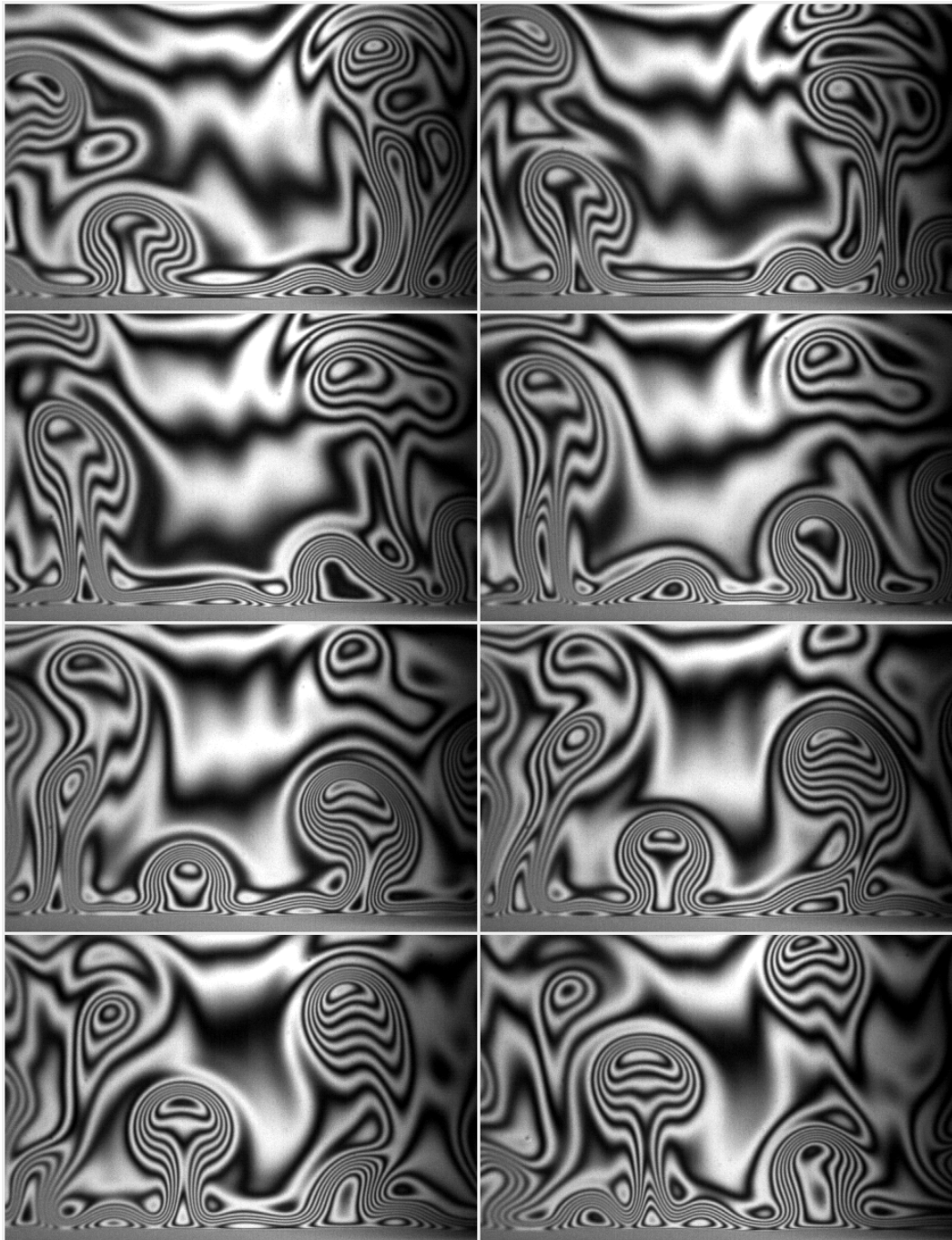


FIGURE 5. Marginal regeneration resulting from the pinch-off line instability at the bottom of a flat water film connected to a bulk. Fringes are iso-thickness lines obtained under monochromatic lighting (sodium lamp at 589 nm). The meniscus is the blurred band at the bottom of each picture. It is separated from the film by a line of minimal thickness in the vertical direction: the *pinch-off* line. Thin convection cells develop by contorting the upper border of the pinch-off region. They then rise and separate from the meniscus (see the typical velocity field they generate on 13). Image width is 4.3 mm and time between images is 5/100 s.

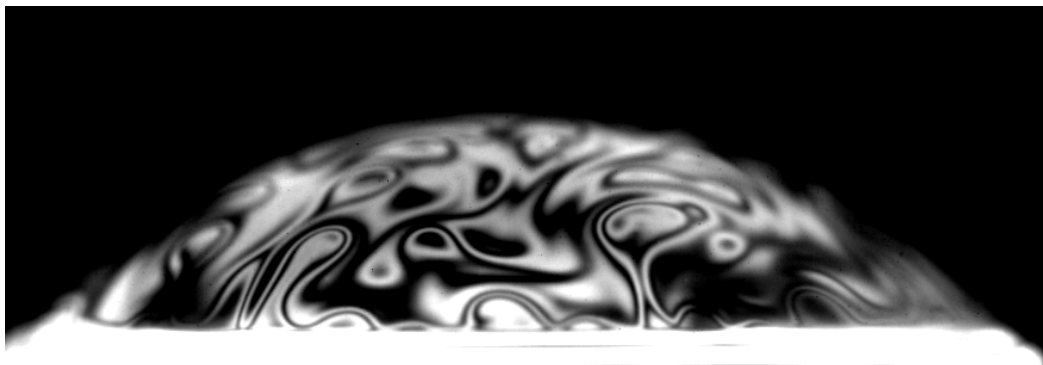


FIGURE 6. View of the convections plumes and of the overall turbulent mixing under monochromatic lighting (sodium lamp at 589 nm). Fringes are film iso-thickness lines. The very bright portion at the bottom of the picture is the meniscus. Bubble radius is $R = 5$ mm.

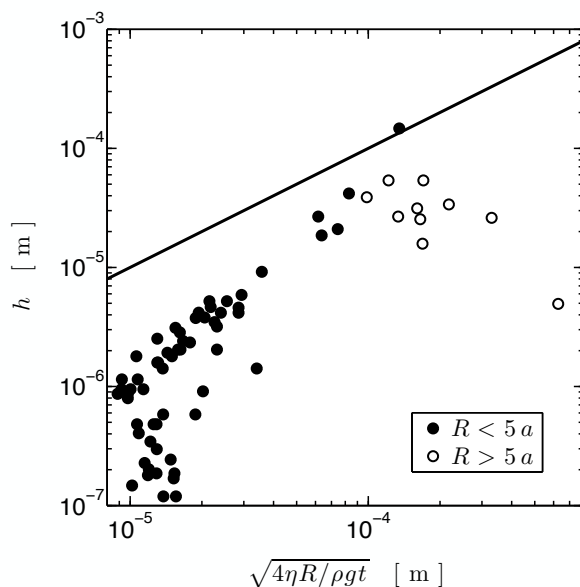


FIGURE 7. Comparison of the (*inappropriate*) drainage law (2.9) with experiments.

gravity only, leading to a cap thickness evolution law

$$h = F(\theta) \times \sqrt{\frac{4\eta}{\rho g R t}} \quad (2.9)$$

where $F(\theta)$ is a function that does not depend on the cap extension θ_c and is almost uniform between $F(\theta = 0) = 1$ and $F(\theta = \pi/2) \simeq 0.76$ (see appendix B). The law (2.9) relies on the assumption, obviously contradicted by the present observations, that the cap thickness follows the axial symmetry of revolution of the bubble and, not surprisingly, it differs from the experimental measurements by strongly underestimating the drainage rate of small bubbles of extension $R\theta_c \ll R$ (see figure 7). This suggests that drainage is rather driven by convection motions and capillary pressure $2\sigma/R$.

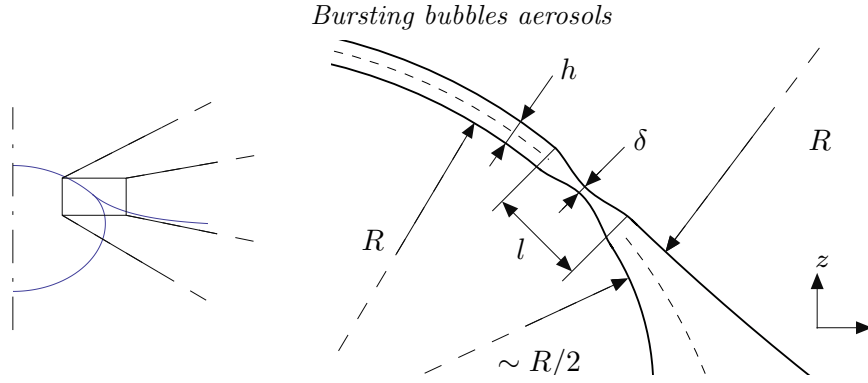


FIGURE 8. Sketch of the pinching region.

2.2.3. Pinching and marginal regeneration

The standard *Poiseuille* flow limited thinning being not appropriate, we look for an alternative mechanism, and focus on the conditions at the foot of the bubble, where the film connects to the meniscus. The pressure within the liquid film is the capillary pressure $p = 2\sigma/R$ due to the cap curvatures, where we have chosen the atmospheric pressure $p_a = 0$ as the reference pressure. At the meniscus, on the other hand, the hydrostatic pressure is recovered, whose magnitude is very small by comparison with p , and for the sake of clarity we will neglect it in the following (this pressure is $-\rho g z_m$, where z_m is the height of the top of the meniscus above the horizontal surface level, and its magnitude $\rho g z_m$ is always small compared to $p - p_a$).

The pressure difference between the film and the meniscus generates a flow oriented from the former to the later. This flow leads to the formation of a localized pinching separating both regions, as described in Aradian *et al.* (2001). This pinching is clearly seen in figure 6 and 14, and is depicted on the sketch of figure 8. The pinched region of the film is typically described by its extension l and its minimal thickness δ at the neck. Equilibrium requires that the curvature of the interfaces evolves accordingly with the pressure drop accompanying the inner viscous flow. The order of magnitude of l and δ can be determined assuming that the curved geometry of the bubble does not modify singularly the mechanism of the pinching, as experiments suggest. We will therefore only consider the interface curvature in the $(\mathbf{e}_r, \mathbf{e}_z)$ plane. The pinching shape is prescribed by the viscous flow across it. It connects the cap where thickness and pressure are uniform because of the strong agitation, with the meniscus where viscous effects are negligible because it is thick, and where hydrostatic equilibrium prevails. Viscous dissipation is localized at the pinching and the flow of characteristic velocity u there thus induces a pressure loss $2\sigma/R$ over its extension l

$$\frac{\eta u}{\delta^2} \sim \frac{\sigma}{Rl} \quad (2.10)$$

This pressure drop comes along with a regular surface curvature increase ensuring the surface equilibrium condition. The matching of the pinching surface curvature with that of the bubble cap R imposes

$$\frac{h - \delta}{l^2} \sim \frac{1}{R} \quad (2.11)$$

and we finally obtain

$$Ca \sim \frac{\delta^2}{R^{3/2}(h - \delta)^{1/2}} \sim \frac{\delta^2}{R^{3/2}h^{1/2}} \quad (2.12)$$

where $Ca = \eta u / \sigma$ is a capillary number. As long as nothing disturbs the pinching, it is

expected to thin further as $\delta \propto t^{-1/2}$, being concentrated on an ever shorter extension $l \propto t^{-1/4}$, due to the relaxation of the adjacent film portion (see Aradian *et al.* (2001)). However, this predicted evolution may be actually seen on 'rigid' films only where the surfactant monolayers confer a 'solid' behavior to the cap, and prevent any destabilization of the pinching region.

On the contrary, in the more common case of a 'liquid' or mobile monolayer, as for the present experiments, the marginal regeneration phenomenon resulting from the destabilization of the pinching line is rapidly observed. This destabilization, of a *Bénard-Marangoni* type, is driven by the surface tension difference across the pinching region (see section 2.3). This difference, of order

$$\Delta\sigma = \frac{2\delta}{R}\sigma \quad (2.13)$$

where $2\sigma/R$ is the pressure difference between the bubble cap and the meniscus base, is a consequence of the tangential viscous stresses pulling the surfactant monolayers towards the bulk. The larger the surface tension difference, the higher the propensity to level it by convection motions. We therefore assume that at any moment, marginal regeneration regulates the pinching thickness, whose value corresponds to the critical onset of the pinching destabilization, and that it remains always of the order the film thickness, *i.e.*

$$\delta \lesssim h \quad (2.14)$$

This crucial assumption agrees well with experiments we made with tap water and for which the following observations were systematically made:

- (a) The pinching forms within a hundredth of a second after the emergence of the bubble,
- (b) It lasts for the whole bubble life time,
- (c) As seen in figure 6 and 14, it is continuously destabilized by convection cells, consisting in thinner film portions (and presumably of smaller surface tension) growing within the pinching region and then rising over the bubble cap,
- (d) The pinching neck thickness δ is, from interference fringes counting, never smaller than half the film thickness h .

This last observation, paraphrasing (2.14), is also consistent with Mysels *et al.* (1959)'s remark (p. 35) that relative thickness differences are below 10% and more recently with experiments by Nierstrasz & Frens (1998) (with low concentration solutions of SDS and on a range of film thicknesses from 300 to 1500 nm) where a constant thickness ratio of approximatively 0.8 between the recently formed rising film portions (coming from the pinching region), and the rest of the film was systematically found.

The thickness of the bubble cap is uniform and its drainage is thus entirely determined by the liquid flux across the pinching line. This flux, oriented from the cap to the meniscus, is the sum of the contributions of two mechanisms operating concomitantly:

- (a) The direct flow across the pinching zone whose rate is prescribed by viscous stresses through the film thickness,
- (b) The convective flow resulting from marginal regeneration motions along the cap surface tangent direction, whose net flow rate is achieved by cyclically replacing thick film portions by thinner ones.

The two mechanisms above are coupled. The liquid flux due to the convection motion is slaved to that due to the direct flow and is always of the same order of magnitude, an assumption leading to a good description of the experimental results over the whole range of bubbles $R \leq 5a$ we have investigated.

With these considerations in mind, assumption (2.14) and the scaling laws (2.10),

Bursting bubbles aerosols

13

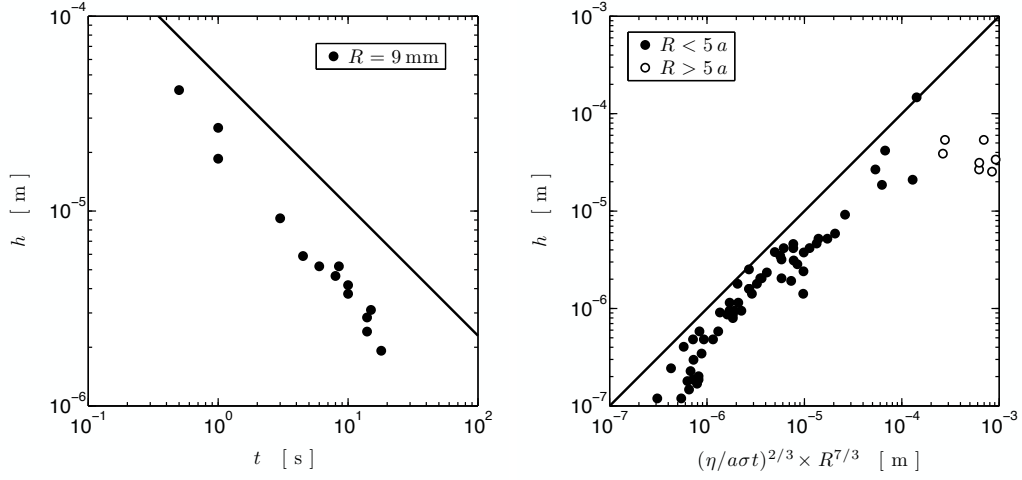


FIGURE 9. Bubble cap thickness h (\bullet) versus time t elapsed since the emergence of the bubble at the bulk surface, and comparison with the thickness evolution law (2.18) (—). Thickness h is measured from the hole receding velocity $V = \sqrt{2\sigma/\rho h}$ (see section 4) when the bubble cap naturally punctures. **Left:** For bubbles of the same cap radius: $R = 9$ mm. **Right:** For bubbles of various radii R ranging from 1 to 25 mm and times t ranging from 5×10^{-2} to 30 s. No measurement has been discarded. Measurements on bubbles so large that (2.3), and thus (2.18), does not apply any more are identified by white-filled circles (\circ).

(2.11) and (2.12), we have

$$l \sim \sqrt{R h} \quad (2.15)$$

and are now able to determine the drainage velocity

$$u = \frac{\sigma}{\eta} \left(\frac{h}{R} \right)^{3/2} \quad (2.16)$$

and from it the thinning law of a bubble. Mass conservation implies

$$\dot{h} \sim -hu \times \frac{P}{S} \simeq -hu \times \frac{2}{R\theta_c} \sim -\frac{\sigma a}{\eta} \frac{h^{5/2}}{R^{7/2}} \quad (2.17)$$

where the perimeter P refers to that at the foot of the bubble and the surface S to that of the cap, the ratio of which being equal to $2/R\theta_c$ within a few percents for any angle $0 \leq \theta_c \leq \pi/2$. Integration of equation (2.17) yields the expected thinning law

$$h \sim a \left(\frac{\eta a}{\sigma t} \right)^{2/3} \left(\frac{R}{a} \right)^{7/3} \quad (2.18)$$

It is compared to experiments in figure 9 (also compare with figure 7) with a good agreement except for bubbles of radius $R > 5a$, as expected considering the approximation (2.3) we used for the bubble geometry.

2.3. Cell size and frequency

2.3.1. Destabilization frequency

As explained in section 2.2.3, the neck in the pinching region at the bubble foot is liable to destabilize by a *Bénard-Marangoni* mechanism driven by the surface tension gradient $\Delta\sigma/l$ across the pinching. This gradient is equilibrated, in the mean, by the tangential viscous stresses in the neck, leading the drainage velocity u in (2.16). But since both

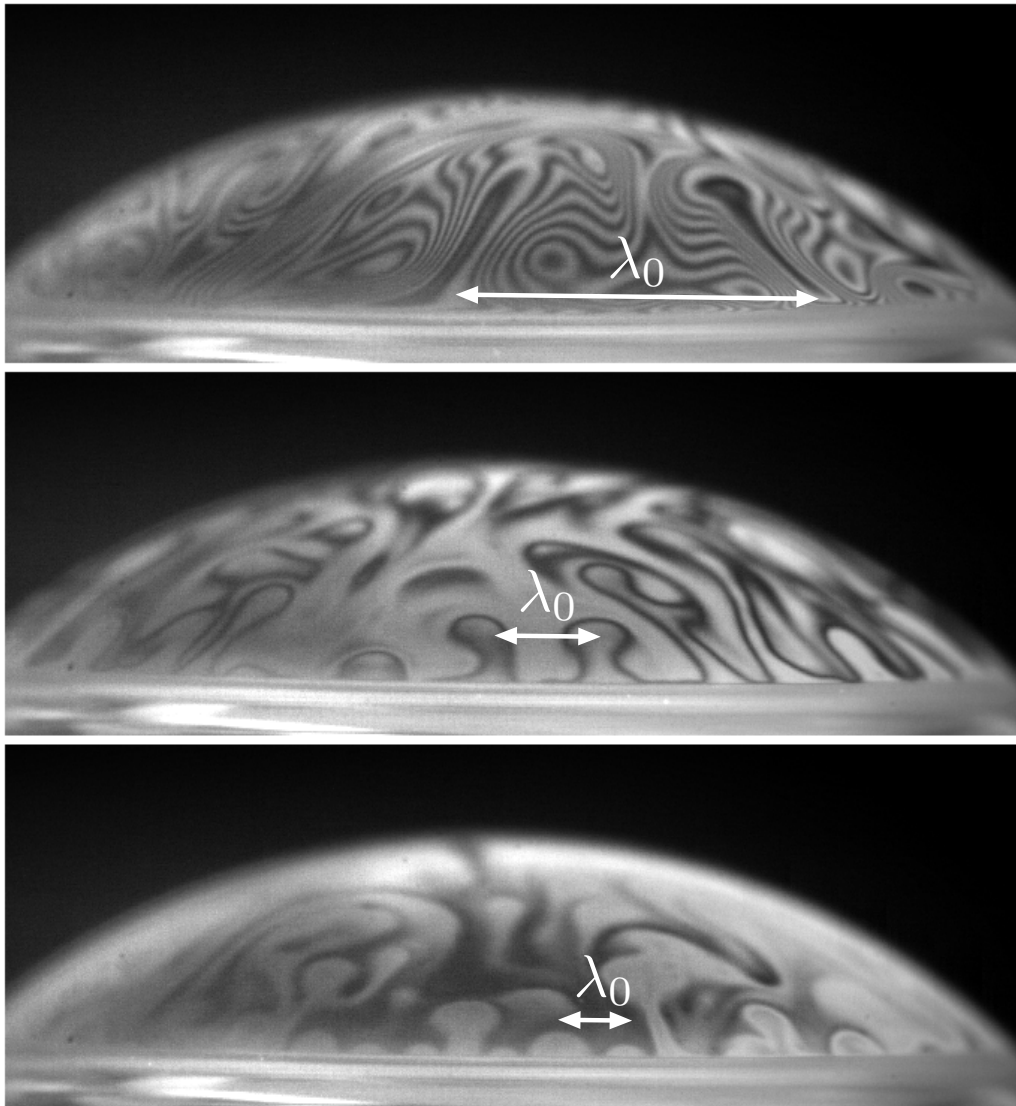


FIGURE 10. Evolution of the marginal regeneration convection cells wavelength as time elapses (sodium lamp at 589 nm). The bubble radius is $R = 5.7$ mm. From top to bottom respectively 2, 19.5 and 39 s elapsed after the bubble has emerged at the surface.

the thickness $h(s)$ and surface tension have a positive gradient along the coordinate s tangent to the bubble profile, the equilibrium in (2.16) is obviously unstable.

From the neck at $s = 0$ in the direction to the bubble pole, the thickness profile in the pinching region is approximately (see figure 8)

$$h(s) \simeq \frac{h}{l} s \quad (2.19)$$

In that reference frame, the velocity of the draining liquid is $-u$ (directed towards the liquid bulk). Denoting by $\xi(t)$ the position of the neck along s , we see that from the

Bursting bubbles aerosols

15

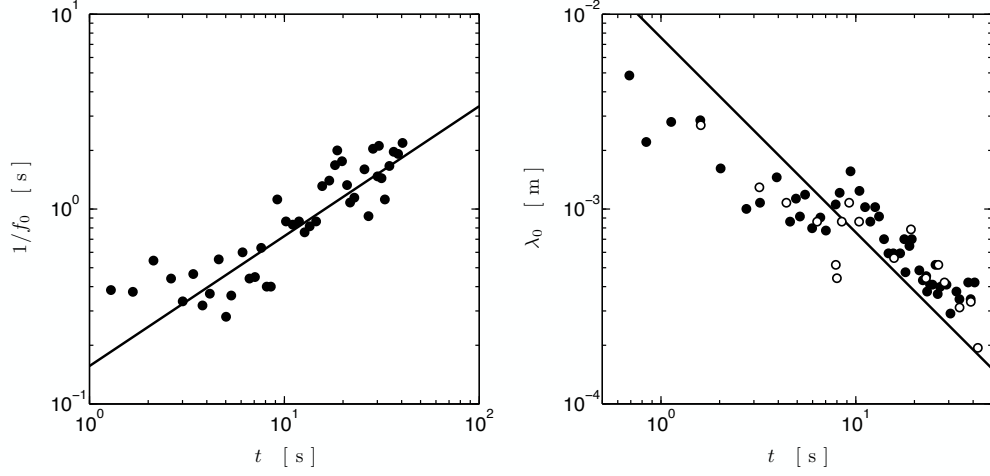


FIGURE 11. **Left:** Marginal regeneration convection cell emission period f_0^{-1} (\bullet) measured on the bubble with $R = 5.7$ mm seen on figure 10 versus time t spent since the bubble formation. The line (—) represents the scaling law of equation (2.22) multiplied by a factor 6. **Right:** Evolution of the wavelength as defined on figure 10 for the same bubble (\bullet). The line (—) is the scaling law of equation 2.25 multiplied by a factor 8000.

perturbed equilibrium in (2.16)

$$\frac{\eta}{\sigma}(u + \dot{\xi}) \sim - \left(\frac{h - h(\xi)}{R} \right)^{3/2} \quad (2.20)$$

we have, from (2.19), the growth rate $\dot{\xi}/\xi$ of the perturbed position of the neck. This instability thus brings depleted portions of the film into the bubble cap at a frequency

$$f_0 = \frac{\dot{\xi}}{\xi} \sim \frac{\sigma}{\eta} \frac{h}{R^2} \quad (2.21)$$

or, making use of (2.18)

$$f_0 \sim \frac{\sigma}{\eta a} \left(\frac{R}{a} \right)^{1/3} \left(\frac{\eta a}{\sigma t} \right)^{2/3} \quad (2.22)$$

The above relationship, measured from the bubble shown in figure 10 lasting more than 40 seconds, is quantitative up to proportionality factor of 6 (figure 11).

2.3.2. Destabilization size

The perturbations from the neck can grow provided they are not damped too fast. When they escape from the pinching region, the dominant factor is no more the viscous stress across the film, but rather the friction between the moving cells themselves. Therefore, if λ_0 is the size of a structure escaping the pinching region with amplitude ξ at velocity $\dot{\xi}$ towards the bubble cap, the typical stress in the film plane the driving force $\Delta\sigma$ has to overcome is $\eta \dot{\xi}/\lambda_0$, leading to the force balance

$$\frac{\eta \dot{\xi}}{\lambda_0} h \sim \frac{\Delta\sigma}{l} \xi \quad (2.23)$$

16

H. Lhuissier and E. Villermaux

which, with $f_0 = \dot{\xi}/\xi$ given in (2.21), and $\Delta\sigma/h \sim \sigma/R$, provides

$$\lambda_0 \sim R \left(\frac{h}{R} \right)^{3/2} \quad (2.24)$$

or, making again use of (2.18)

$$\frac{\lambda_0}{R} \sim \frac{\eta a}{\sigma t} \left(\frac{R}{a} \right)^2 \quad (2.25)$$

It has to be stressed that, if (2.25) infers a dependence in time for λ_0 ($\propto t^{-1}$) which compares favorably with the observations reported in figure 11, it anticipates an absolute value for λ_0 smaller than the wavelengths actually observed by several orders of magnitude. This is mostly due to the way we have represented the driving force of the instability. Away from the pinching zone towards the bubble pole, the surface tension gradient falls brutally from $\Delta\sigma/l$ to the much smaller magnitude ρgh (*i.e.* exactly stably counterbalanced by the film weight). The wavelength selection is precisely operated in this crossover region, characterized by an effective tension gradient intermediate between these two extremes, hence the major overestimate of $\Delta\sigma$ in absolute value in the balance of (2.23), and the corresponding underestimate of λ_0 .

3. Puncture

On hand of a fair representation of the film thickness h evolution in time, and of the dynamics of the unstable structures at its foot, we now turn to the central question of the film thickness h_b at the onset of bursting. That question reduces to the determination of the bubble lifetime at the interface. As seen from figure 9 (left hand side), where time t is precisely the natural bubble lifetime for a selected set of identical bubbles generated exactly in the same way in the same water, this lifetime is quite distributed. The broad character of the lifetime distribution is general for films bursting naturally, it is known for natural bubbles (see for example Zheng *et al.* 1983) and is reminiscent of stochastic nucleation process activated by rare events; an idea we will develop further.

Nevertheless, and as distributed the lifetime may be, its average strongly depends on the bubble radius R , in a consistent and reproducible way. Bubbles burst by the nucleation of a hole in the vicinity of their foot (see *e.g.* figures 14, 16 and 17), and recording the hole opening velocity gives access to the film thickness at bursting h_b . Figure 12 gathers our own measurements with those of Spiel (1998), both collapsing and suggesting that

$$h_b \simeq \frac{R^2}{\mathcal{L}} \quad (3.1)$$

where the length $\mathcal{L} \simeq 20$ m deserves to be understood.

3.1. The traditional picture of soap films: thermal activation

We have explained how the experimental law (3.1) does not apply to the extensively studied case of bubbles made out of highly concentrated soap solutions. In that context, marginal regeneration is known to be damped very rapidly due to the high surface viscosity involved by the large surfactant concentration (Bruinsma 1995). The drainage rate is therefore that of a *Poiseuille* flow over the whole bubble cap described by equation (2.9). The film is slightly thinner at the cap pole and it typically punctures there, when the film thickness h is of order a few tens of *nanometers*, say typically 10 nm. For such small thickness, the film is sensitive to thermal fluctuations (Bouchiat & Meunier 1971;

Bursting bubbles aerosols

17

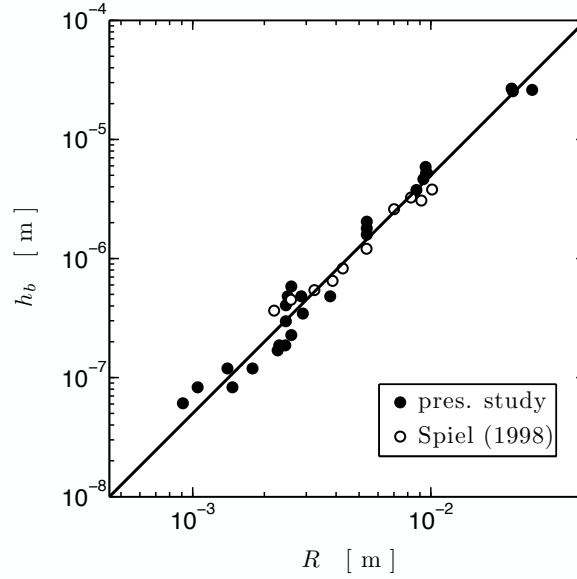


FIGURE 12. Thickness h_b at which bubbles *spontaneously* burst versus the cap radius R from our measurements (\bullet) and those of Spiel (1998) (\circ). The line (—) is $h_b \propto R^2/\mathcal{L}$ with $\mathcal{L} \simeq 20$ m (see equation (3.1)). Spiel's values were originally expressed in terms of the air cavity equivalent sphere radius, we converted them into R using the numerical bubble geometries.

Casteletto *et al.* 2003). Indeed, a hole through a film of thickness h opens only if its diameter $2r$ is larger than h . For a smaller hole, the in-plane curvature $\sim 1/r$ is larger than the curvature in the perpendicular plane $\sim 1/h$ and the film heals. The nucleation of a hole across a film therefore requires that the interfacial area be transiently increased by a minimal quantity of order h^2 , corresponding to an energy barrier σh^2 . The life time t of a film of area Σ subjected to energy fluctuations of mean W can therefore be expressed according to the standard *Boltzmann-Kramers-Eyring* estimate (Van Kampen 1981)

$$t \sim \frac{1}{f} \frac{h^2}{\Sigma} \exp\left(\frac{\sigma h^2}{W}\right) \quad (3.2)$$

where f is a frequency factor expressing the number of trials per unit time and per potential nucleation site, h^2/Σ is the number of such nucleation sites, and the exponential is an efficiency factor. Considering *thermal* fluctuations, the typical energy is $W = k_B T \sim 10^{-21}$ J and the frequency factor f is a molecular time of order $k_B T/\hbar \sim 10^{12}$ s $^{-1}$ (Maris 2006), where k_B and \hbar are the *Boltzmann* and the *Planck* constants respectively. A lifetime t , of say 1s, thus corresponds to a film of thickness $h \sim 1 - 10$ nm consistent with the expected value for very thin films, such as Newton black films (Casteletto *et al.* 2003). This scenario however predicts non physical lifetimes for films thicker than a few tens of nanometers at room temperatures while bubble films are 1 to 10 microns thick. It in addition predicts a logarithmic dependence of the bursting thickness h_b on the bubble radius R , in clear contradiction with the experimental trend in equation (3.1).

3.2. The role of marginal regeneration induced turbulence

There is another source of agitation within the bubble cap film, which has *not* a thermal origin, namely the turbulent motions generated by the marginal regeneration. They were measured in suspended vertical water films, in order to make visualization easier. By pulling a rigid frame out of a water bulk, we formed rectangular films 10 cm wide and

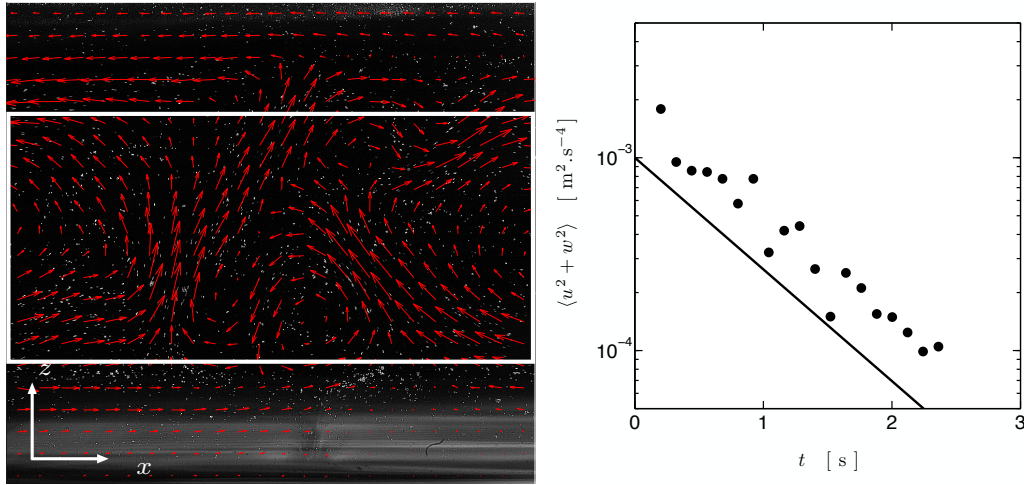


FIGURE 13. **Left:** Typical velocity field induced by marginal regeneration in a flat vertical film formed by pulling a frame out of a water bulk (similar to that of figure 5). The bottom brightest portion and the top portion, where velocities are horizontal, are the two meniscii connecting the film to the bulk and to the top frame side respectively. Image width is 10.8 mm and $\sqrt{\langle \mathbf{u}^2 \rangle} = 7.2 \text{ cm.s}^{-1}$. Velocities are obtained by particle image velocimetry; only one out of four velocity vectors is plotted to make visualization easier and statistics are exclusively computed on the velocity field contained in the white frame which corresponds to the film portion. **Right:** Mean kinetic energy $\langle u^2 + w^2 \rangle$ over the film versus time t elapsed since film formation.

10 mm high (meniscus included) whose bottom side was connected to the bulk via the meniscus, like that of a bubble, and with the lateral and top sides connected to the frame. We focused on a narrow subpart of that horizontal extension only, far from both lateral borders in order to limit their influence. The surface of the liquid bulk was initially seeded with micrometric particles, and the flow measurements have been made by particle image velocimetry (Meunier & Leweke 2003). A typical instantaneous velocity pattern is presented in figure 13. The mean kinetic energy of the flow decreases exponentially in time suggesting that surface friction is responsible for damping the motion (Xia *et al.* 2009). Its maximal value is observed once the initial motion due to the film formation has been dissipated and its magnitude per unit film area is $\rho \langle u^2 + w^2 \rangle \sim 1 \text{ J.m}^{-3}$. The film thickness measured at film bursting, roughly 2.5 s after its formation, was $h = 18 \mu\text{m}$. Using this lower bound, the typical kinetic energy within the volume h^3 is of order $W \sim \rho \langle u^2 + w^2 \rangle h^3 \gtrsim 10^{-14} \text{ J}$. This value has to be compared with the required energy barrier $\sigma h^2 \sim 10^{-11} \text{ J}$. In this first rough estimate, owing to thickness uncertainty and to a logarithmic pre-factor (see equation (3.2)) of order $\ln(h^2/\Sigma f) \sim \ln(h^3/\Sigma \sqrt{\langle \mathbf{u}^2 \rangle}) \sim -20$, both energy scales do not seem to be strongly incompatible, and one could conclude that turbulent agitation is likely to provoke puncture.

However, a closer look discards marginal regeneration driven turbulence alone as a strong enough phenomenon to puncture the film. One indeed needs to consider velocity fluctuations at the scale of the hole nucleus h itself, rather than the large scale fluctuations $\sqrt{\langle \mathbf{u}^2 \rangle}$ alone: global translation will not alter the film, whereas *localized stretching* will. This condition is much more restrictive since now in order to provoke film puncture, velocity *differences* $\sqrt{\langle \delta \mathbf{u}^2(h) \rangle}$ at the scale h must be considered, and should be of the same order than the film receding velocity $V = \sqrt{2\sigma/\rho h} \sim 1 - 10 \text{ m.s}^{-1}$. This condition is very far from being fulfilled in naturally agitated films, as we show quantitatively in appendix C.

Bursting bubbles aerosols

19



FIGURE 14. Spontaneous bursting at the foot of a flat water film (interferences fringes visualized by a monomode argon laser at 488 nm). Nucleation is seen to occur around a convection cell: the paradigm situation in the bursting of bubbles. Image height is 3 mm and time lapse between both images is $1/3000$ s. The film receding velocity is $V = 2.8 \text{ m.s}^{-1}$ corresponding to a thickness $h = 20 \mu\text{m}$.

3.3. The role of convection cells

The detailed mechanism of thick film rupture thus remains unclear. However, several experimental observations constrain substantially the possibilities:

(a) The film thickness at the bursting h_b depends markedly on the bubble cap radius R (equation (3.1)),

(b) This thickness h_b is independent of the precise content of the solution (as long as large soap concentrations are not involved) in the sense that our measurements with tap water superimpose with those of Spiel (1998) using seawater (figure 12),

(c) Most important and by contrast with soap bubbles, where puncture occurs at the cap pole, tap water bubbles preferentially puncture in the vicinity of the cap foot, *i.e.* close to the meniscus that connects it to the bulk, in the unstable region paved with the convection cells described in section 2.3. Among 25 observed bubbles of cap radius $R = 5 \text{ mm}$, puncture occurred 22 times between $\theta = 25^\circ$ and $\theta_c = 30^\circ$. In other words, almost 90% of nucleations events occurred over less than 30% of the whole cap surface: that which is the closest to the bubble foot, as seen in figures 14 and 16,

(d) The puncture preferentially occurs at the center of the unstable convection cells (figure 14), and the hole opening velocity V is larger than any other velocity in the bubble.

The dynamics of the marginal regeneration, which has enabled an appropriate description of the bubble cap thinning, and which is responsible for the bubble foot agitation, is thus seemingly also at the root of the bubble burst. We develop below arguments which do not explain *why* the film punctures, but which appropriately describe *how*, explaining in particular the structure of (3.1).

New cells are injected at the bubble foot every period f_0^{-1} . The evidences listed above suggest that puncture will most certainly occur within a cell, at its center, but that this process is extremely inefficient: only about one out of a thousand or ten thousands cells will puncture, leading to the bubble burst. We call

$$\epsilon = O(10^{-4} - 10^{-3}) \quad (3.3)$$

the efficiency of one cell puncture (independent of time) so that $\epsilon f_0 \delta t$ is the probability that one cell has punctured within a time interval δt . There are, at the base perimeter $P \sim R^2/a$ of a bubble, P/λ_0 cells on average at a given time. The probability $p(t)\delta t$ that

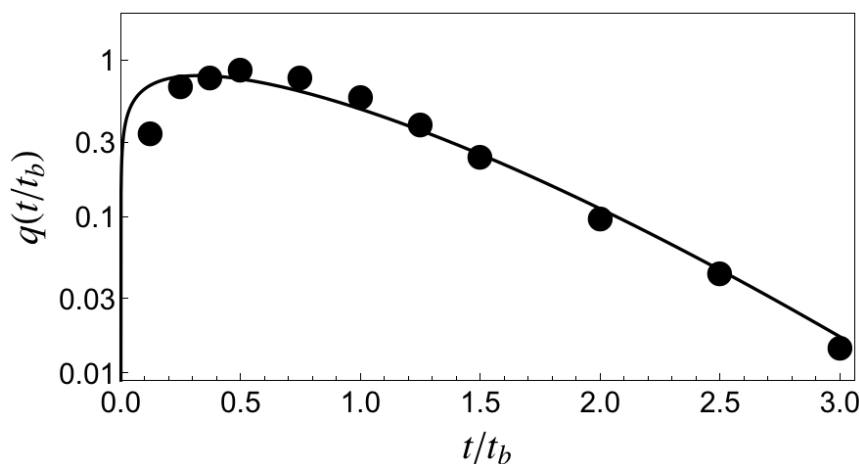


FIGURE 15. Mean bubble lifetime distribution $q(t)$, averaged from the lifetime distributions of bubbles ranging from 1.2 to 7.4 mm in diameter, adapted from Figs. 5, 6 and 7 in Zheng *et al.* (1983), and compared to equation (3.9).

puncture occurs within δt on the bubble is thus both extensive to the efficiency factor ϵ and to the number of cells (like in equation (3.2), the cells are assumed to be independent and therefore to contribute in an additive fashion to the bursting probability) present at a given time

$$p(t) \delta t \sim \epsilon \frac{P}{\lambda_0} f_0 \delta t \quad (3.4)$$

Conversely, $1 - p(t)\delta t$ is the probability that no cell has punctured the bubble within δt , so that the probability $Q(t)$ the bubble has not burst at time t is

$$Q(t) = \prod_{t'/\delta t'=0}^{t/\delta t'} [1 - p(t')\delta t'] \xrightarrow{\delta t' \rightarrow 0} e^{-\int_0^t p(t') dt'} \quad (3.5)$$

If $q(t)$ is the distribution of the bubble lifetime, one has obviously

$$q(t) = -\partial_t Q(t) = p(t) e^{-\int_0^t p(t') dt'} \quad (3.6)$$

Given the scaling laws for f_0 and λ_0 in (2.22) and (2.25), the bursting probability per unit time $p(t)$ writes as a weakly increasing function of time

$$p(t) = \frac{4}{3} \frac{t^{1/3}}{\tau_0^{4/3}} \quad (3.7)$$

with

$$\tau_0 = \frac{(4/3)^{3/4}}{\epsilon^{3/4}} \frac{\eta a}{\sigma} \left(\frac{R}{a} \right)^{1/2} \quad (3.8)$$

so that

$$q(t) = \frac{4}{3} \frac{t^{1/3}}{\tau_0^{4/3}} e^{-\left(\frac{t}{\tau_0}\right)^{4/3}} \quad (3.9)$$

which presents an algebraic increase at small time ($\propto t^{1/3}$), and a faster than exponential fall off at large times (identical to that of $Q(t)$), consistently with the distributions reported in Zheng *et al.* (1983), as seen in figure 15. The mean bubble lifetime, or bursting

Bursting bubbles aerosols

21

time, which we call t_b is

$$t_b = \int_0^\infty t q(t) dt = \int_0^\infty Q(t) dt \quad (3.10)$$

that is

$$t_b = \Gamma(7/4) \tau_0 \approx 0.92 \tau_0 \quad (3.11)$$

The bursting time is dimensionally set by the capillary viscous time $\eta a/\sigma$ (of the order of 10^{-5} s for water), and is larger by several orders of magnitude owing to the factor $\epsilon^{-3/4}$, reaching up to seconds. It is proportional to the square root of the bubble size, in agreement with our observations and those in Zheng *et al.* (1983) where the bubble mean lifetime is seen to increase with R for small bubbles. From (2.18), one finally obtains the (mean) bubble cap thickness at the bursting time as

$$h_b \sim a \epsilon^{1/2} \left(\frac{R}{a} \right)^2 = \frac{R^2}{\mathcal{L}} \quad (3.12)$$

with the length \mathcal{L} solely function of the capillary length-scale, and differing from it by a huge amount depending on the puncture efficiency factor ϵ

$$\mathcal{L} \sim \frac{a}{\epsilon^{1/2}} \quad (3.13)$$

As seen in figure 12, this law accounts very well for ours, and Spiel (1998)'s experimental measurements.

4. Fragmentation dynamics

The delicate study of the bubble cap drainage and its puncture culminates with the scaling law (3.12) linking the two length-scales characterizing a bubble, on average, namely the thickness of its cap $h \equiv h_b$ and its radius R , at the time it bursts. We now turn to the sequence of events occurring *after* a hole has punctuated the bubble cap, willing to understand the products of the bursting, that is the subsequents drops, and their size distribution.

4.1. Mechanisms and mean drops size

Once a hole nucleates through the bubble cap, the resulting fragmentation dynamics is very fast compared to the slow drainage dynamics described before. This initial holes extends circularly, driven by surface tension, at the constant *Taylor-Culick* velocity $V = \sqrt{2\sigma/\rho h}$ (Culick 1960) and is bordered by a rim collecting the liquid film. The constant velocity V is reached within a capillary time based on h , which is short compared to the following destabilizations mechanisms. The rim receding motion follows the curved bubble cap (the validity of this assertion is discussed further) and thus confers a centripetal acceleration

$$\gamma = \frac{V^2}{R} \quad (4.1)$$

to the rim. The later thus suffers an inertial destabilization of a *Rayleigh-Taylor* type, which leads to the formation of regularly spaced ligaments as figures 16 and 17 show. Remarkably, the instability wavelength λ is the geometrical mean of the two length scales of the problem R and h (Lhuissier & Villermaux 2009) and the instability growth time

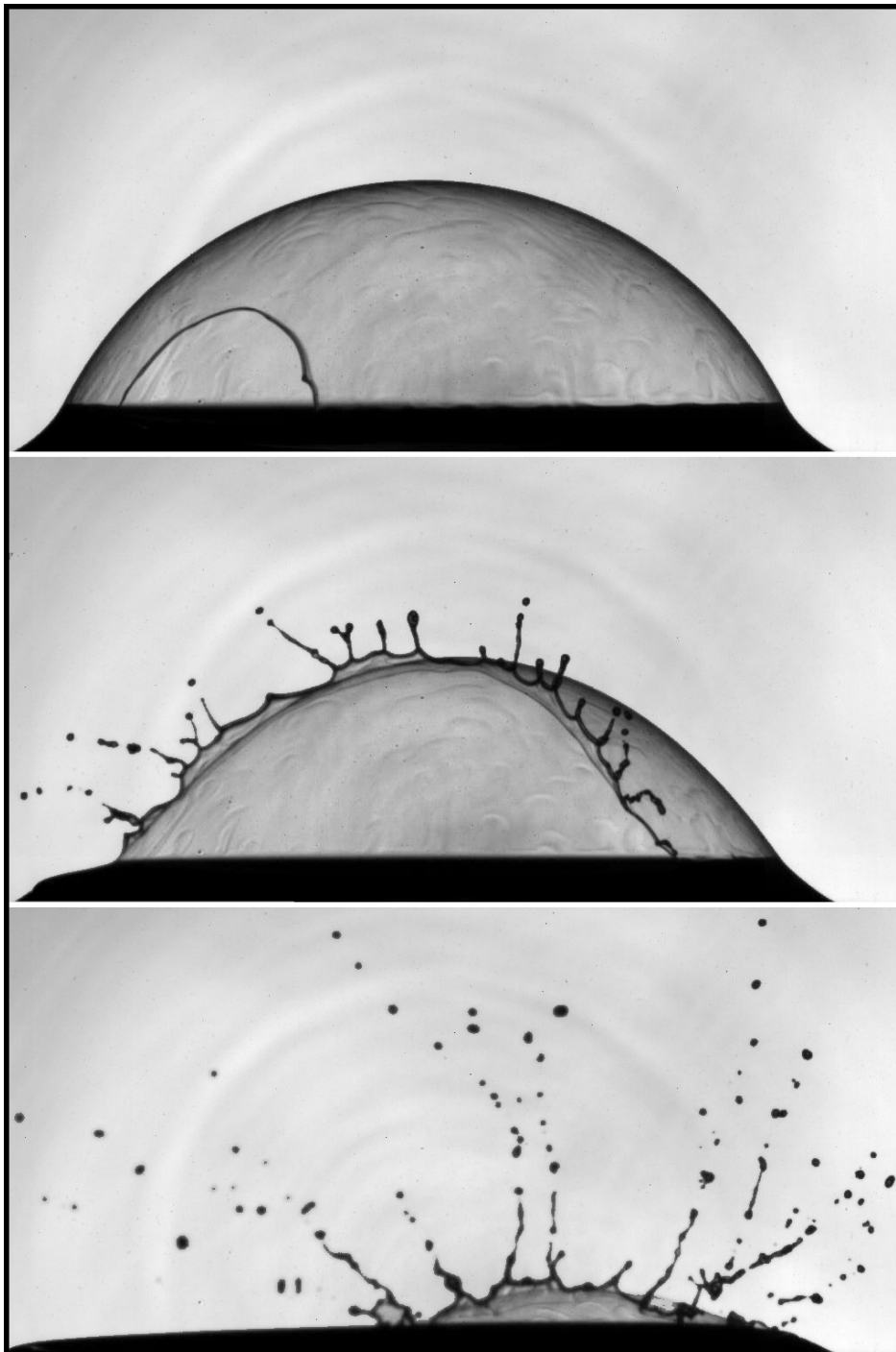


FIGURE 16. Spontaneous bursting of a bubble at the surface of a water bulk. Convections cells can be seen all over the cap via the light refraction induced by the thickness modulations. $R = 10$ mm, $h = 3.1 \mu\text{m}$ and time between images is 1 ms.

Bursting bubbles aerosols

23

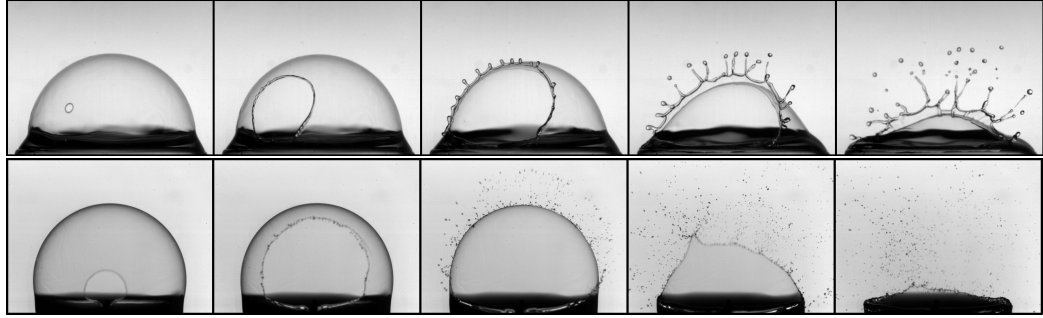


FIGURE 17. Bursting of two bubbles of comparable radii R and distinct thicknesses h . **Top:** $R = 14$ mm, $h = 36$ μ m and time between images is 2.5 ms. **Bottom:** $R = 11.5$ mm, $h = 1.2$ μ m and time between images is 0.67 ms.

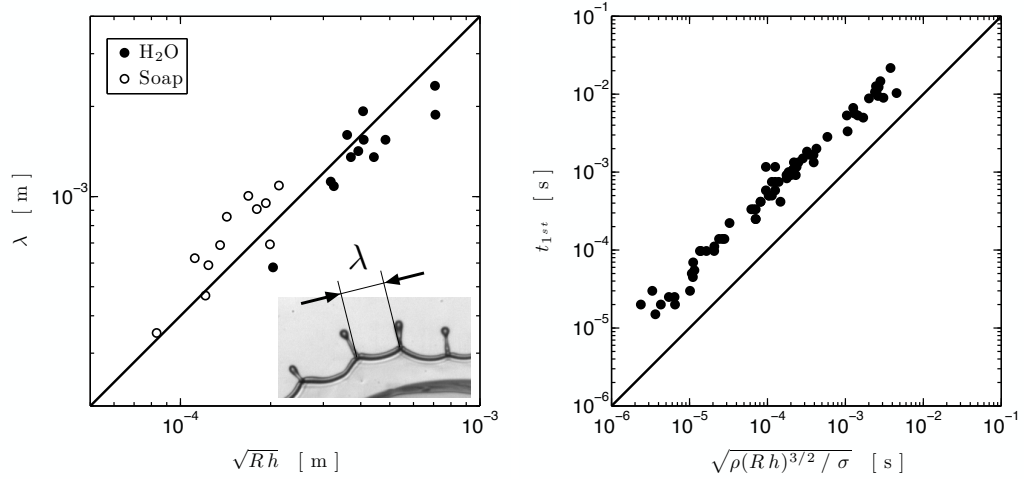


FIGURE 18. **Left:** Ligament spacing λ for bubbles in tap water (\bullet) and soap saturated solution (\circ) versus the expected scale law of equation (4.2a), up to a factor 3. **Right:** Delay t_{1st} before first drop is released versus τ defined in equation (4.2b).

τ amounts to be the capillary time based on that composed length

$$\lambda \sim \sqrt{\frac{\sigma}{\rho\gamma}} \sim \sqrt{Rh} \quad (4.2a)$$

$$\tau \sim \left(\frac{\sigma}{\rho\gamma^3}\right)^{1/4} \sim \sqrt{\frac{\rho(Rh)^{3/2}}{\sigma}} \quad (4.2b)$$

relationships which are both well consistent with experiments, as seen in figure 18.

Ligaments spaced by λ are then stretched out by centrifugation, and soon resolve into disjointed droplets by a *Plateau-Rayleigh* destabilization. The capillary time associated with this ultimate fragmentation being short compared to τ , the time t_{1st} for the first drops to be ejected is proportional to τ and indeed, we observe that

$$t_{1st} \simeq 3\tau \quad (4.3)$$

as seen in figure 18. Note that this inviscid theory applies to water. Viscous liquids present a much slower destabilization, since both *Rayleigh-Taylor*, and capillary instabilities are slowed down by viscosity (see e.g. Bird *et al.* 2010 for a study of that limit).

The droplets mean diameter $\langle d \rangle$ in the resulting spray is set by the ligaments diameter

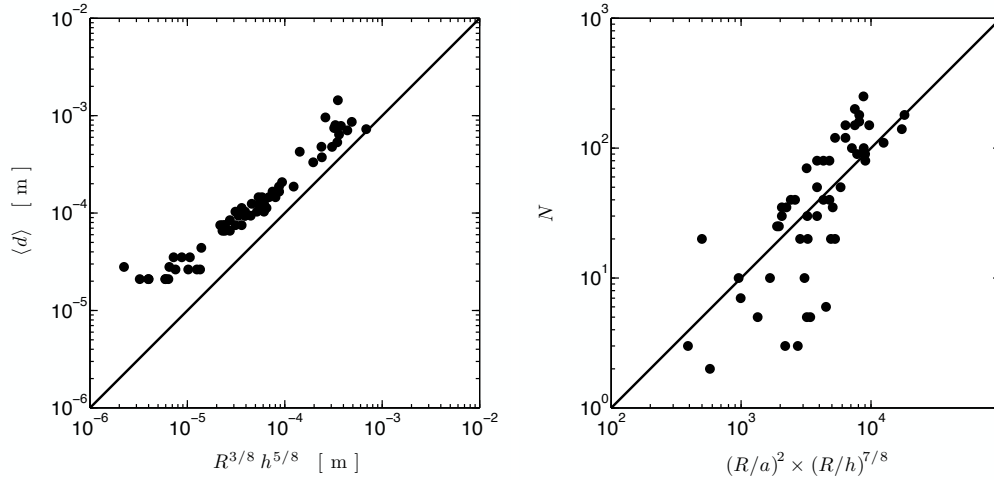


FIGURE 19. **Left:** Mean drop size $\langle d \rangle$ versus prediction of equation (4.4). **Right:** Number N of drops produced per bubble versus prediction of (4.9). Note that the line (—) is the $y = 10^2 x$ line.

when drops pinch-off occurs, as is known from the capillary instability of moderately corrugated threads (Eggers & Villermaux 2008). The ligaments diameter is observed to remain roughly constant from the onset of their formation to their fragmentation since their stretching by centrifugation is compensated by the film flow permanently feeding them. The average drop diameter $\langle d \rangle$ is thus directly proportional to the rim diameter at the onset of ligaments formation, that is to say after a rim recession time τ and then

$$\langle d \rangle \sim \sqrt{V\tau h} \sim R^{3/8} h^{5/8} \quad (4.4)$$

Figure 19 shows a reasonable agreement with that prediction, with a slight departure for the smallest bubbles.

4.2. Range of relevant bubble sizes and number of drops per bubble

The number of drops N produced at each bursting depends on the bubble shape, that is on R/a (section 2). As long as R is large enough the ejection time t_{1st} is short compared to the rim recession time over the half cap $R\theta_c/V \sim R^2/aV$. Using the expressions for V and $h_b \simeq R^2/\mathcal{L}$, one gets the limiting bubble radius for film drops production

$$R_i \simeq (2 \times 3^5 \times a/\mathcal{L})^{1/3} a \simeq 0.4 a \quad (4.5)$$

Bubbles smaller than this critical value are expected to produce no film drop, and the jet drop mechanism prevails in that case. The above order of magnitude $R_i \simeq 1.1$ mm is consistent with previous experimental estimates by Resch & Afeti (1991) and Spiel (1998) who found $R_i \simeq 0.6$ and 1.2 mm respectively for bubbles in sea water.

At the other extreme, the film drop production mechanism is also limited for large bubbles since they deflate before the cap recession is completed, and rim instability initiated. An estimation of the bubble deflation time τ_{def} can be made for large bubbles assuming for simplicity that the air cavity remains a half-ball with volume $2\pi R(t)^3/3$ during collapse, where $R(t)$ is now the decreasing radius of the bubble since puncture. The pressure inside the bubble $4\sigma/R(t)$ drives a potential air flow from the bubble cavity to the outer atmosphere with velocity $\sqrt{2\sigma/\rho_a R(t)}$, where ρ_a is the constant air density. The hole in the cap through which the air escapes has a current section $\pi(Vt)^2$. By

Bursting bubbles aerosols

25

conservation of the air volume, we have

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}R^3 &= -3\sqrt{\frac{2\sigma}{\rho_a R}}(Vt)^2 \\ \text{giving } R(t) &= R(0)\left[1 - \left(\frac{t}{\tau_{def}}\right)^3\right]^{2/7} \\ \text{with } \tau_{def} &= \left(\frac{6}{7}\right)^{1/3} \frac{R(0)}{V} \left(\frac{\rho_a R(0)}{\rho h}\right)^{1/6} \end{aligned} \quad (4.6)$$

The radius shrinks to zero in finite time (see Dupré (1869) p. 353, for the similar problem of the soap bubble emptying through a straw). Figure 20 shows the evolution of the cap radius $R(t)$ of a large bursting bubble during collapse, compared with the law expected from equation (4.6) showing that τ_{def} indeed gives an accurate approximation of the experimental deflation time. Note that the influence of deflation is in fact complex, since it first increases the cap curvature at its apex, thus enhancing the rim centrifugation. However, since the bubble meniscus position is unchanged during rim recession, the cap flattens at larger times and centrifugation is inhibited. This deflation effect leads to an upper cut-off radius R_s for film drops production, defined according to $R_s\theta_c/V \simeq \tau_{def}$, that is

$$R_s \simeq \left(\frac{2^8 \times 3^5}{7^2} \frac{\rho_a \mathcal{L}}{\rho a}\right)^{1/7} a \simeq 3.8 a \quad (4.7)$$

For bubbles with radii between R_i and R_s , the corresponding number of drops formed by burst N can be estimated assuming the whole liquid cap, of volume

$$\Omega \sim \frac{R^4 h}{a^2}, \quad (4.8)$$

is fragmented into droplets of diameter $\langle d \rangle$. As will be seen in section 5, because the ligaments are weakly corrugated, the dispersion of drop sizes for a single bursting event is quite small, and $\langle d^3 \rangle$ is of the same order as $\langle d \rangle^3$. Therefore, N writes

$$N \sim \frac{\Omega}{\langle d \rangle^3} \sim \left(\frac{R}{a}\right)^2 \left(\frac{R}{h}\right)^{7/8} \quad (4.9)$$

This formula overestimates the number of drops actually observed in our experiments (figure 19) because the assumption that the whole volume Ω is converted into drops is obviously a majorant. It however describes well the dependence of N with the cap radius R , which is enough for our purpose since we will only need to consider relative productions in the sequel. It is also worth noting that considering $h_b \propto R^2$ provides

$$N \propto R^{9/8} \quad (4.10)$$

from equation (4.9), showing that big bubbles produce more drops than smaller ones do. This trend is also consistent with previous observations in sea water which, however, present some discrepancies. Resch & Afeti (1991), using their own measurements and that of Blanchard & Sysdek (1988) that they reinterpreted, found an empirical power law $N \propto R^{1.5-1.8}$ while more recent measurements by Spiel (1998) show a weaker dependence on R , closer to $N \simeq bR + c$ with a cut-off at $R_i = -c/b \simeq 1.2$ mm as already mentioned.

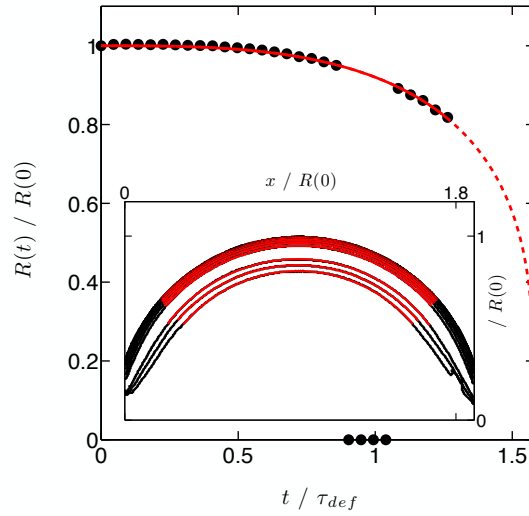


FIGURE 20. **Main:** Bubble radius $R(t)$ (\bullet) versus time t since puncture. The red line (—) is the best fit by the evolution law of equation (4.6). The experimental deflation time is thus found to be approximately 1.6 times the characteristic time τ_{def} defined in equation (4.6) ($R(0) = 7.7$ mm, $V = 2.85$ m.s $^{-1}$ and $\tau_{def} = 2.2$ ms). **Insert:** Bubble cap profiles. The red parts show the portions of each profile that was used for the determination of R . Radii have been measured until half-cap recession. Missing dots and profiles around $t/\tau_{def} = 1$ correspond to not readable profiles hidden by the ligaments.

4.3. Culick's law on a curved film

The rim receding velocity $V = \sqrt{2\sigma/\rho h}$ we have used for computing the rim centripetal acceleration is strictly valid for a planar film where the motion is a translation along the film uniform tangential direction \mathbf{e}_t . It however remains valid for a film of constant radius of curvature R under a condition we discuss below, and which turns out to be fulfilled for the bubbles we are concerned with.

When the velocity of the rim is not constant in direction, its rate of momentum variation induced by the surface tension force operating tangent to the film splits into two components:

- That due to the liquid at rest in the film being collected into the rim $\rho h V^2 \mathbf{e}_t$,
- That due to the liquid already into the rim and undergoing the centripetal acceleration $-(mV^2/R) \mathbf{e}_n$, where m is the current rim linear mass and \mathbf{e}_n is the outer unit vector normal to the bubble.

The later is of order of the former and needs to be considered only when

$$m \geq \rho h R \quad (4.11)$$

that is to say when the rim has receded over a distance larger than R without ejecting any drop. That was observed only for bubbles of radius R larger than a few centimeters. For smaller bubbles, liquid is ejected from the rim all along the recession path and V is well represented by the planar prediction. The observed fact that the rim trajectory coincides with the bubble cap position is besides consistent.

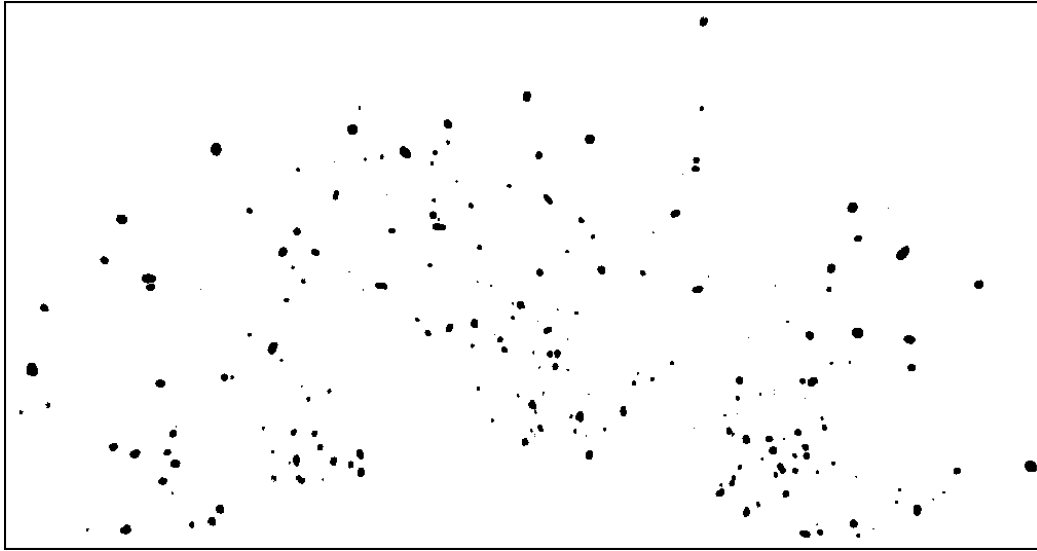


FIGURE 21. Example of a 210 drops population generated by a single bubble. The largest drops have a diameter of $500 \mu\text{m}$.

5. Aerosols production

5.1. Single bubble spray

The interpretation of the global spray production at the ocean surface requires the knowledge of the drop size content from a single bursting bubble. We focused on relatively big bubbles with radius $R = 12 \text{ mm}$ formed at the top of a 20 mm diameter glass tube filed with water. This big radius was chosen for measurements precision, but the resulting fragmentation properties, in particular the shape of the drop size distribution $p(d)$, are generic of all bubble radii. Bubbles were rapidly inflated and their bursting was initiated by positioning a hydrophobic sand coated needle at a fixed height above the tube. This allowed to burst bubbles of very same radii and thicknesses and to accumulate precise statistics. This also permitted to impose the puncture location on the bubble cap and have the whole ligaments fragments in the camera focus plane at the same time. Drops diameters d were measured on images taken late enough after ligaments breakup for all drops to have relaxed to a nearly spherical shape. An example is shown in figure 21.

The drops size distribution measured on a set of 12 identical bubbles is presented in figure 22. With a resolution scale of $30 \mu\text{m}$, and with largest drops of $500 \mu\text{m}$, the distribution presents two characteristic parts: A roughly uniform fraction of small sizes, and a bell-shaped fraction with steep tail for larger sizes. This later fraction is very well described by a Gamma distribution

$$p\left(x = \frac{d}{\langle d \rangle}\right) = \frac{n^n}{\Gamma(n)} x^{n-1} e^{-nx} \quad (5.1)$$

where $\Gamma(n) = \int_0^\infty t^{n-1} e^{-t} dt$ is the Gamma function. This size repartition is the signature of ligament mediated fragmentation (Villermaux *et al.* 2004), those being, as in all atomization processes, the ultimate objects forming the drops, as figure 23 depicts. Small initial surface corrugations lead smooth ligaments, and therefore to a quite narrow drop size distribution around the mean (we find $n = 11$ in figure 22, whereas a pure decaying exponential would have $n = 1$, and a Dirac delta would correspond to $n \rightarrow \infty$, (see Villermaux 2007)).

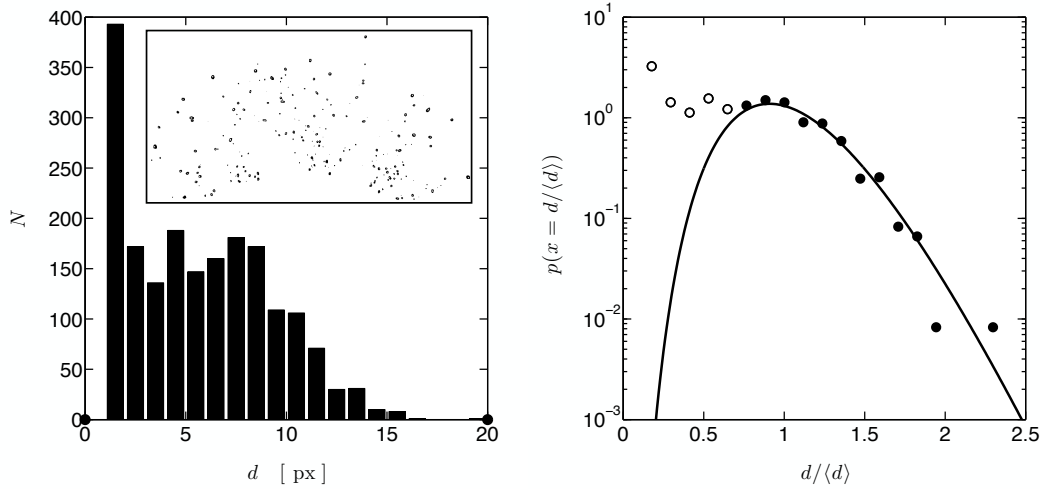


FIGURE 22. Distribution of drops diameters d resulting from the provoked bursting of 12 identical bubbles representing almost 2000 drops. **Left:** Original data and (insert) binary-picture of the spray generated by a single bubble. **Right:** Normalized drop size distribution (dots) and fit by a Gamma distribution (see equation (5.1)) of order $n = 11$. Only black points (\bullet) corresponding to $d > 5$ px are used for the normalization and the fit.

The uniform portion of the size distribution for small d is a consequence of a secondary fragmentation process due to transverse impacts between adjacent ligaments. These impacts occur as the rim hole starts to shrink, when the rim has receded by more than half the initial sphere, and ligaments move closer to each other. This effect only concerns large bubbles since it imposes $\theta_c > \pi/2$ (see figure 3). We thus suspect that this small- d fraction of the measured distribution is due to the large bubble radius we have chosen, and that the drops size distribution for smaller bubbles will be close to a pure Gamma distribution. Besides, the observations of Spiel (1998) made from bubbles radii ranging from 1.5 to 6 mm indicate a clear *decrease* of the drop size distributions $p(d)$ for small d .

5.2. Global spray

With a drainage model and a description of the fragmentation dynamics providing closed relationships linking h_b , N and $p(d/\langle d \rangle(R))$ to the bubble radius R we are now able to infer a global spray distribution $P(d)$ directly from the knowledge of the bubble size distribution at the ocean surface $q(R)$ by

$$P(d) = \frac{1}{N_0} \int_{R_i}^{R_s} \frac{q(R) N(R)}{\langle d \rangle(R)} p(d/\langle d \rangle(R)) dR \quad (5.2)$$

simply expressing that the overall spray results from a weighted sum of the contributions from all bubbles between R_i and R_s . We indeed consider that the real phenomenon in nature involving many bubbles with different sizes, as those produced in a foam by wave breaking in the ocean for instance, can be interpreted from the scenario we have established for a *single isolated* bubble, in a linearly additive fashion, and that no new effect arise from the proximity of the bubbles in the foam. Nearby bubbles may coalesce, and we argue in appendix D that the coalescence event just delays the onset of bubble bursting, without altering its features compared to those of an isolated bubble. We also assume in writing equation (5.2) that the droplets ejected from a given bubble in the bubbles foam assembly will not interfere with the natural aging (drainage, spontaneous

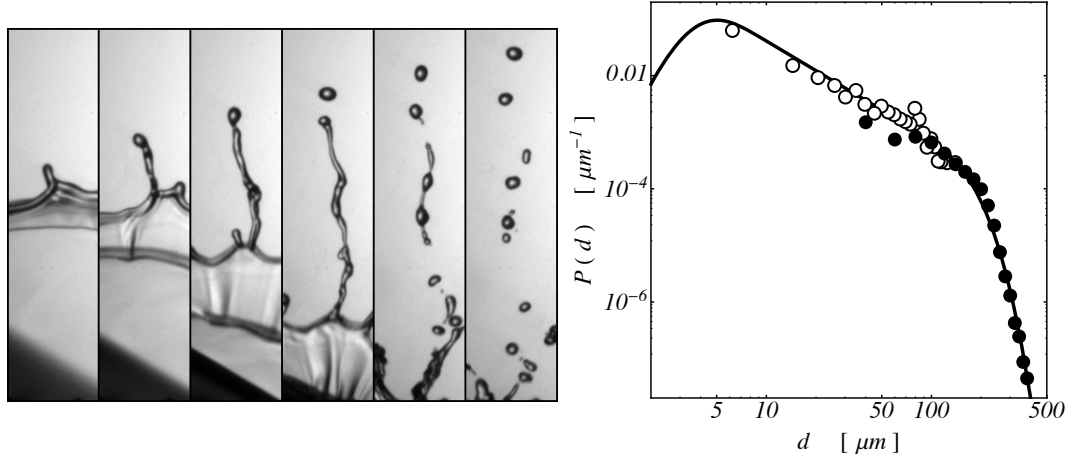


FIGURE 23. **Left:** Fragmentation dynamics of a centrifuged ligament resulting from the bursting of a bubble. **Right:** Global experimental drop size distribution $P(d)$ estimated by composition of Wu *et al.* (1984)'s (\bullet) and Preobrazhenskii (1973)'s (\circ) in-situ measurements. They are compared to equation (5.4) with $R_i = 0.4a$ and $R_s = 3.8a$ (—). Note that Wu *et al.* (1984)'s and Preobrazhenskii (1973)'s are partial distributions that are not “vertically positioned” one relatively to each other; we composed them so that they coincide on their common drop size range. The compound distribution is not normalized on our graph in order to permit comparison with equation (5.4).

puncture) process intrinsic to a single bubble, or at least that these interferences, if they happen, are negligible.

The integration domain in equation (5.2) is bounded on both sides (section 4). The lower bound $R_i \simeq 0.4a$ corresponds to a bubble cap extension θ_c so small that drop ejection cannot occur before rim recession ends, whereas the upper bound $R_s \simeq 3.8a$ corresponds to bubbles so large that their deflation is faster than the rim recession as we discussed in section 4.2.

Realistic bubble size distributions $q(R)$ at the sea surface must be estimated from separate measurements, as those of Deane & Stokes (2002) for wave breaking. In the 1 to 10 mm bubble radius range corresponding to the film drop production range, these authors find that

$$q(R) \propto R^{-10/3} \quad (5.3)$$

a law apparently insensitive to the precise way wave breaking has been prepared, and holding both for ocean, and artificial laboratory waves. Thus, $q(R)$, N and $\langle d \rangle$ all follow power laws on R .

Defining $q(R)N(R) \propto R^{-\alpha}$ and $\langle d \rangle(R) \propto R^\beta$, and introducing $\zeta = (\alpha - 1)/\beta$, the overall compound distribution $P(d)$ writes from equations (5.1) and (5.2)

$$P(d) = \frac{1}{N'_0} d^{-1-\zeta} \left[\Gamma_{inc} \left(n + \zeta, \frac{nd}{\langle d \rangle_s} \right) - \Gamma_{inc} \left(n + \zeta, \frac{nd}{\langle d \rangle_i} \right) \right] \quad (5.4)$$

where $\Gamma_{inc}(n, \tilde{d}) = \int_{\tilde{d}}^{\infty} t^{n-1} e^{-t} dt$ is the so-called incomplete gamma function and $\langle d \rangle_i$ and $\langle d \rangle_s$ correspond to the mean drop size from bubbles of radius R_i and R_s respectively as defined in (4.4). According to equations (4.4), (4.9) and the measurements of Deane & Stokes (2002), we have $\zeta = 3/4$ leading to a distribution which behaves like

$$P(d) \propto d^{-(1+\zeta)} = d^{-7/4} \quad (5.5)$$

30

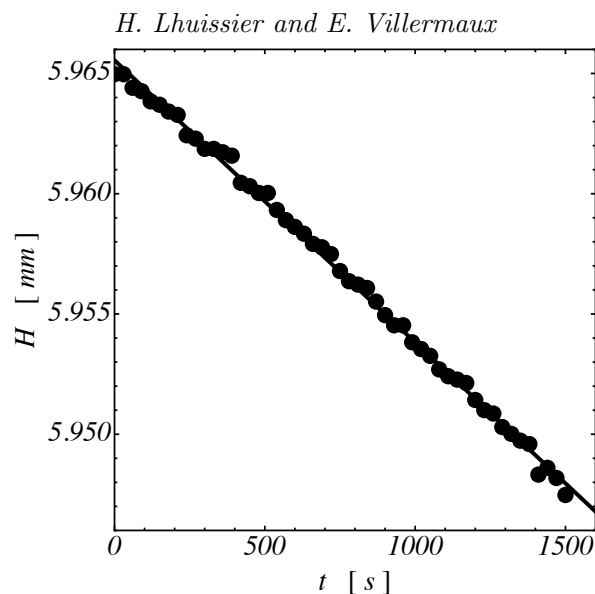


FIGURE 24. Evolution in time of the thickness H of a tap water layer evaporating in the standard conditions of the laboratory (quiescent air at temperature 20.5°C , water is thermalized, air hygrometry is 65 percent of the saturation). The measurement is made by weighting the liquid contained in a circular Petri dish 95 mm in diameter and 12.5 mm deep, with a 1 mg precision balance. The line is the best linear fit giving an evaporation velocity of 11.7 nm/s.

in-between the two cut-offs imposed by R_i and R_s . The compound distribution $P(d)$ is shown in figure 23 to superimpose extremely well with field measurements made by Preobrazhenskii (1973) and Wu *et al.* (1984).

6. Conclusion

We have described the complete sequence of events of the life and death of a bubble at the surface of a water pool, and we have underlined the relevance of this process for understanding how aerosols are produced at the surface of the sea. This study has revealed a rich phenomenology, some of its aspects being completely understood, some other remaining obscure.

- We have considered bubbles whose radius ranges from a fraction, to a couple of capillary length-scale $a \simeq 2.7$ mm. A ‘small’ amount of surfactants on the bubble cap has large consequences: the lifetime of the bubble jumps from hundredths of a second (for pure water) to several seconds, up to tens of seconds.
- The marginal pinching at the bubble foot, and the inherent marginal regeneration phenomenon, are crucial to understand the thinning law of the bubble cap. The exchanges of the interstitial fluid in the cap with the liquid bulk are set by the pinch-off thickness which is slaved to that of the cap by its recurrent destabilization.
- The bubbles burst by nucleating a hole precisely in this marginal regeneration region (not at their pole, as opposed to soap bubbles); the holes nucleate at the center of the convection cells, which therefore also appear as the objects responsible for the bubble death.
- Neither thermally activated noise, nor turbulence in the marginal regeneration region are strong enough to puncture the film. The energy levels associated to these effects are orders of magnitude below the one requested to puncture a hole.

Bursting bubbles aerosols

31

- The film is typically thick at breakup: it is a micron, to ten microns thick. Attractive *Van der Waals* forces are unlikely to operate in this range.
- Evaporation has not been considered. However, in the precise same conditions as the ones of our bubbles experiments, a layer of tap water evaporates at a velocity of a hundredth of a micron per second (see figure 24) a rate which, owing to the typical bubble lifetime (seconds) and cap thickness (several microns), suggests that evaporation is a subdominant effect. Moreover, no definite trend has been observed on the bubble mean lifetime when the liquid bulk temperature was varied in the range 4–80 degrees centigrade.
- The ultimate mechanism puncturing the film remains a mystery, and this is certainly a topic for future research. However, assuming that the phenomenon occurs in the marginal regeneration convection cells with a frequency associated to their birth growth rate, times a very small efficiency factor, accounts for the features of the bubble, in particular its mean lifetime and consequently the thickness of its cap, at bursting.
- The subsequent sequence of events, namely the hole opening velocity, its rim destabilization by a *Rayleigh-Taylor* mechanism, the formation of ligaments, their capillary breakup, and finally the distribution of the resulting fragment droplets within the range of bubble radii liable to produce fragments are clearly evidenced, measured, and understood.
- Remarkably, a linear superposition of the contribution of a single bubble to the overall spray, in proportion to its relative occurrence at the surface of the sea given its radius represents very accurately the observed sea spray distribution.

Paraphrasing Michael Faraday's *Chemical History of a Candle* (Faraday (1861)), we could conclude that

There is no better, there is no more open door by which you can enter into the study of natural philosophy than by considering the physical phenomena of a *bubble* (originally: *candle*).

There is indeed a large body of Fluid Mechanics at play in the phenomena ruling the life, death, and descends of a bubble.

Acknowledgements: This work has been supported by the Agence Nationale de la Recherche (ANR) through grant ANR-05-BLAN-0222-01.

Appendix A. Bubble geometry

Surface bubbles are shaped by both surface tension and gravity. As justified by the end of section 2.2.1, relative variations in surface tension are small and the cap thickness is rapidly so small that they can be neglected in the following derivation of the bubble shape. Following the same approach as Toba (1959), the bubble interfaces profile is separated into three portions

- The cavity interface up to the cap,
- The external meniscus from the cap to the surface reference level far away,
- The cap, whose both interfaces are considered to lie on the same line.

Those three portions meet at the *a priori* unknown point corresponding to $\theta = \theta_c$. A shooting method in which θ_c is set arbitrarily and then progressively adjusted to satisfy a matching condition is therefore required. The set of equations with their matching condition has to be solved for every bubble size prescribed by the parameter R_0/a , where R_0 is the cavity curvature radius at its bottom (in $\theta = \pi$) and a is the yet defined capillary length.

Once the parameter R_0/a has been chosen, the profile is built in three successive steps. The cavity profile $\{r, z\}$ (where the origin of altitudes $z = 0$ is taken at the cavity bottom *i.e.* where $\theta = \pi$) is first obtained by numerically solving equation

$$\begin{cases} \frac{\partial(r \sin \theta)}{\partial r} = r \left(\frac{2}{R_0} + \frac{z}{a^2} \right) & \text{for } \theta \in [\theta_c, \pi] \\ \text{with the initial condition } \{r, z, \theta\} = \{0, 0, \pi\} \end{cases} \quad (\text{A } 1)$$

that equilibrates the cavity pressure with hydrostatic and capillary ones. The profile is integrated from π to the expected value θ_c .

The assumptions of weightless cap and uniform surface tension impose the cap curvatures to be uniform and its profile thus resumes to a simple arc of circle. Only one cap is compatible with a given θ_c which has a radius

$$R = \frac{r_c}{\sin \theta_c} \quad (\text{A } 2)$$

and $\{0, z_c - R \cos \theta_c\}$ as its center; where r_c and z_c are the values in θ_c from integration of (A 1). This sets the cavity over-pressure $4\sigma/R$ with respect to the atmosphere (neglecting the air density) and with it the surface of the undisturbed level at infinity

$$\frac{z_\infty}{a^2} = \frac{4 \sin \theta_c}{r_c} - \frac{2}{R_0} \quad (\text{A } 3)$$

The external meniscus profile is lastly determined by numerically integrating

$$\begin{cases} \frac{z''}{(1+z'^2)^{3/2}} + \frac{z'}{r(1+z'^2)^{1/2}} = \frac{z-z_\infty}{a^2} & \text{for } r \in [r_c, \infty[\\ \text{with the initial condition } \{r, z, z'\} = \{r_c, z_c, \tan \theta_c\} \end{cases} \quad (\text{A } 4)$$

The surface level $z(r \rightarrow \infty)$ is compared to the expected value z_∞ it has to match, and depending on the agreement, a new loop with an adjusted value of θ_c is performed or not. Once the desired precision is reached, the latest value of θ_c is used, and the profile is obtained by composition of the three sub-portions as shown in figures 2 and 3.

Appendix B. Bubble cap *Poiseuille* flow

Consider a curved thin liquid film of viscosity η and density ρ adopting the shape of a cap symmetric with respect to the ascendant vertical direction \mathbf{e}_z . The film is sandwiched between two mobile layers of a rigid surfactant. We assume that this symmetry extends to the film thickness h whose typical value is small compared with the cap radius R and we therefore seek for one-dimensional solutions $h(\theta, t)$ for the film thinning, where θ is the angular coordinate whose origin is at the north pole along \mathbf{e}_z . For a no slip condition imposed at the surface by the immobile layers, the viscous flow can be described by the lubrication approximation

$$\begin{cases} \mathbf{q} = -\frac{(\nabla p + \mathbf{f}) h^3}{12\eta} \\ \frac{\partial h}{\partial t} = -\nabla \mathbf{q} \end{cases} \quad (\text{B } 1)$$

where \mathbf{q} is the flow by length unit through a normal section of the film, the pressure gradient ∇p is null all over the cap and the external tangential force $\mathbf{f} \cdot \mathbf{e}_\theta$ acting on the film reduces here to the gravity body force $-\rho g h \mathbf{e}_z \cdot \mathbf{e}_\theta = -\rho g h \sin(\theta)$. Non-dimensionnalizing length by a typical initial thickness h_0 and times by $12\eta R/\rho g h_0^2$, one

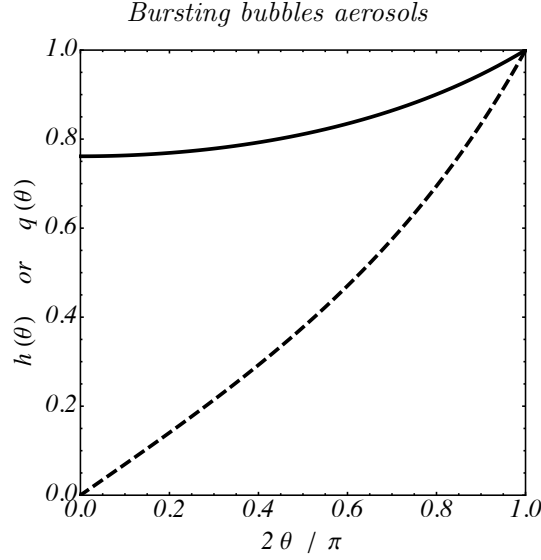


FIGURE 25. Thickness $h \propto F(\theta)$ (—) and flow rate $q \propto F(\theta)^3 \sin\theta$ (---) dependencies on the angular coordinate θ at any time t . Values are divided by the corresponding values at the equator in $\theta = \pi/2$.

obtains

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -\frac{1}{\sin\theta} \frac{\partial(h^3 \sin^2\theta)}{\partial\theta} \quad (\text{B2})$$

Seeking for solutions of the form $h(\theta, t) = F(\theta) \times G(t)$ yields

$$\frac{\dot{G}}{G^3} = -\frac{(F^3 \sin^2\theta)'}{F \sin\theta} = \mathcal{A} \quad (\text{B3})$$

where superscripts ' and $\dot{}$ stand for derivation with respect to θ and t , respectively, and \mathcal{A} is a constant. Integration of (B3) gives

$$F(\theta) = \frac{\left(-\frac{2\mathcal{A}}{3} \int_0^\theta \sin^{1/3}\theta \, d\theta\right)^{1/2}}{\sin^{2/3}\theta} \quad (\text{B4})$$

With the initial condition $h(0, 0) = h_0$ and considering $F(0) = G(0) = 1$, one has $\mathcal{A} = -2$ and therefore

$$G(t) = (1 + 4t)^{-1/2} \quad (\text{B5})$$

Finally, the film thickness $h(\theta, t)$ writes in dimensional variables

$$h(\theta, t) = \frac{\left(\frac{4}{3} \int_0^\theta \sin^{1/3}\theta \, d\theta\right)^{1/2}}{\sin^{2/3}\theta} \frac{1}{\left(\frac{1}{h_0^2} + \frac{\rho g t}{3\eta R}\right)^{1/2}} \quad (\text{B6})$$

This thinning law which amounts to $h \sim \sqrt{4\eta R/\rho g t}$ once the initial condition h_0 has been forgotten, *i.e.* after a characteristic time $\eta R/\rho g h_0^2$, does not depend on the cap extension θ_c (see figure 2). It is prescribed by the conditions at the pole and thus solely depends on the radius of curvature R . The function $F(\theta)$ is plotted in figure B where it is seen to be almost uniform over the whole cap. Its maximum value at the cap equator is only $2\pi^{1/4} \sqrt{\Gamma(2/3)}/\Gamma(7/6) \simeq 1.31$ times that at the pole.

Note that solution (B6) has been derived and used by Couder *et al.* (2005) to describe

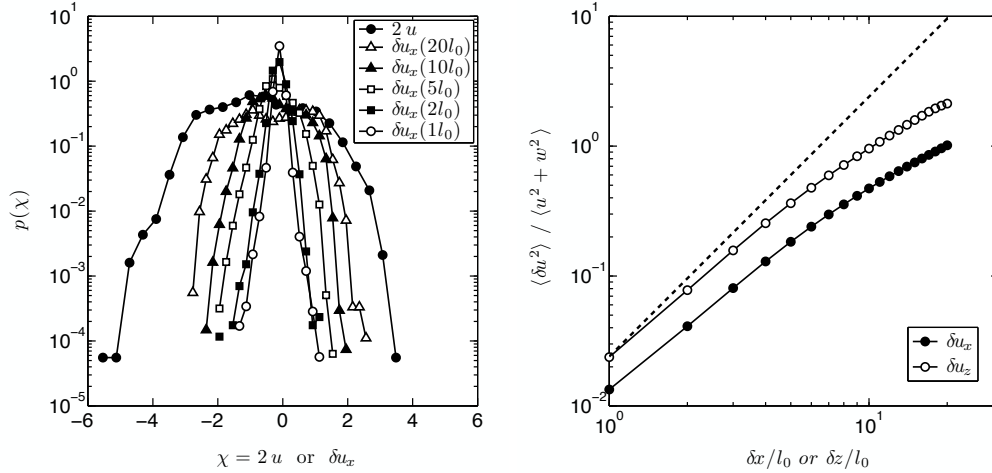


FIGURE 26. **Left:** Probability distribution function of horizontal velocities $u = \mathbf{u} \cdot \mathbf{e}_x$ and of horizontal-horizontal velocity increments $\delta u_x(\delta x) = u(x) - u(x + \delta x)$ accumulated over 100 velocity fields. Increment distances are $\delta x = 1, 2, 5, 10$ and $20 l_0$, where $l_0 = 225 \mu\text{m}$ is the field spatial resolution (half that appearing on figure 13). **Right:** Second moments of velocity increments distributions $\langle \delta u_x^2 \rangle$ and $\langle \delta u_z^2 \rangle$.

the air film upward drainage of a surface anti-bubble whose shape is that of an upside-down classical surface bubble.

Appendix C. Turbulence features

As mentioned in section 3.2, a global translation of the film, whose intensity is measured by $\sqrt{\langle \mathbf{u}^2 \rangle}$, is not likely to induce thickness modulations leading to film rupture. On the contrary, localized stretching, if it is intense enough at the scale of the film thickness h itself, will. This condition is, however, much more restrictive. We measured velocity increments $\delta \mathbf{u} = \mathbf{u}(\mathbf{r}) - \mathbf{u}(\mathbf{r} + \delta \mathbf{r})$ for various increments sizes in the horizontal, and vertical directions $\delta \mathbf{r} = (\delta x, \delta z)$ using the velocity fields studied in section 3.2. Distribution functions of the horizontal velocity component increments in the horizontal direction $\delta u = u(x) - u(x + \delta x)$ and their second moment $\langle \delta u^2 \rangle$ are plotted in figure 26 for various values of δx .

For two-dimensional turbulence, where enstrophy $\langle (\nabla \times \mathbf{u})^2 \rangle$ is, together with kinetic energy $\langle \mathbf{u}^2 \rangle$, a conserved quantity in the inertial range, one expects that the flow for scales smaller than the injection scale is represented by the enstrophy direct cascade (Kraichnan 1967); it has been observed in soap films (Kellay *et al.* 1995). For a stationary enstrophy injection rate β , the energy spectrum for wavenumber k is thus $E(k) \sim \beta^{2/3} k^{-3}$ or equivalently

$$\langle \delta u^2 \rangle \sim \beta^{2/3} \delta x^2 \quad (\text{C1})$$

like for a passive scalar in a direct smooth cascade (the thickness field in soap film has besides been suggested to follow *Batchelor* scaling (Amarouchene & Kellay 2004)).

In figure 26, the velocity increments are roughly following a square δx^2 law (although the best fit is shallower, suggesting that the displayed range of scales is not far from the inverse energy cascade range). The corresponding enstrophy transfer rate is $\beta \sim 10^5 \text{ s}^{-3}$ and the associated dissipation scale

$$r \sim (\nu^2 / \beta^{2/3})^{1/4} \sim 100 \mu\text{m}. \quad (\text{C2})$$

Bursting bubbles aerosols 35

This scale is somewhat larger than the film thickness h , but even at that overestimated scale, $\langle \delta u(r)^2 \rangle$ is found to be of order

$$\langle \delta u(r)^2 \rangle \sim \beta^{2/3} r^2 \sim 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-2} \quad (\text{C3})$$

very far away in order of magnitude from the square of the typical *Culick* film opening velocity

$$V^2 = 2\sigma/\rho h \sim 1 - 10 \text{ m}^2 \text{ s}^{-2} \quad (\text{C4})$$

that sets the velocity fluctuation threshold to overcome stabilization by surface tension. This is consistent with the observation in figure 14 that the film opens immediately after a hole nucleation event on a basically stationary velocity field (and associated thickness field).

In conclusion, turbulent motions induced by marginal regeneration alone are definitely too weak to provoke film rupture.

Appendix D. Coalescence

This appendix intends to show, on hand of figure 27, how the coalescence of two nearby bubbles at the pool surface resets their individual drainage past history. Indeed, one sees that a large fraction of liquid in the menisci at the foot of the bubbles is re-injected in the coalesced bubble cap, hence producing a ‘young’ bubble, irrespective of the age of the initial separated bubbles. This legitimates the assumption made in section 5.2 that the evolution of an isolated bubble is relevant for describing the spray structure, including in an assembly of interacting bubbles.

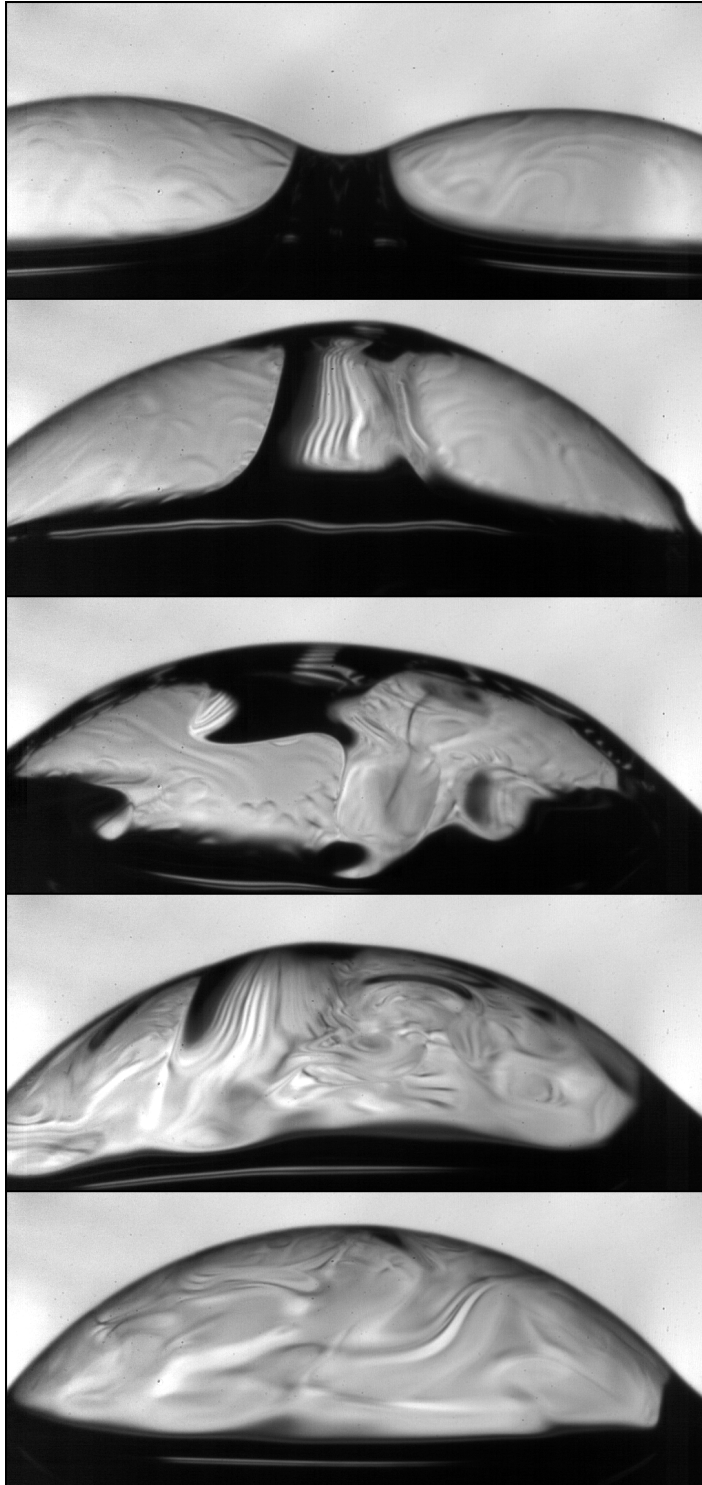


FIGURE 27. Evolution of two bubbles with radii $R = 5.6$ mm coalescing. Comparatively to the volume of both caps, a large volume of water is contained in the meniscus border initially joining them. As coalescence initiates, this volume is pushed up into the newly formed cap and is rapidly spread over it by convection. This results in a new bubble which has no memory of the history of the two separated bubbles that have merged. A time interval of 17, 50, 117 and 250 ms has respectively elapsed since the first top image.

Bursting bubbles aerosols

37

REFERENCES

- AITKEN, J. 1881 Dust, fog, and clouds. *Nature* **23**, 384–385. 1
- AMAROUCHE, Y. & KELLAY, H. 2004 Batchelor scaling in fast-flowing soap films. *Phys. Rev. Lett.* **93** (21), 214504(4). 34
- ANDREAS, E. L., EDSON, J. B., MONAHAN, E. C., ROUAULT, M. P. & SMITH, S. D. 1995 The spray contribution to net evaporation from the sea: a review of recent progress. *Boundary Layer Meteorol.* **72**, 3–52. 1, 2
- ARADIAN, A., RAPHAËL, E. & DE GENNES, P. G. 2001 "marginal pinching" in soap films. *Europhys. Lett.* **55** (6), 834–840. 2, 11, 12
- BIRD, J. C., DE RUITER, R., COURBIN, L. & STONE, H. A. 2010 Daughter bubble cascade produced by folding of ruptured thin films. *Nature* **465**, 759–762. 23
- BLANCHARD, D. 1963 *The electrification of the atmosphere by particles from bubbles in the sea*. PhD Thesis, Woods Hole Oceanographic Institution. 2
- BLANCHARD, D. C., BILOFSKY, H. S. & BRIDGMAN, W. B. 1972 The effervescence of ocean surf. *J. Chem. Educ.* **49** (1), 29–30. 6
- BLANCHARD, D. C. & SYSDEK, L. D. 1988 Film drop production as a function of bubble size. *J. Geophys. Res.* **93** (C4), 3649–54. 2, 4, 25
- BOUCHIAT, M. & MEUNIER, J. 1971 Spectre des fluctuations thermiques de la surface libre d'un liquide simple. *J. Physique* **32**, 561–571. 16
- BREWARD, C. J. & HOWELL, P. D. 2002 The drainage of a foam lamella. *J. Fluid Mech.* **458**, 379–406. 2
- BRUINSMA, R. 1995 Theory of hydrodynamic convection in soap films. *Physica A* **213**, 59–76. 3, 16
- BULL, L. 1904 Rupture d'un film de savon par un projectile. Environ 1500 images / seconde. Stereoscopic Movie - Institut E.-J. Marey. 3
- CASTELETTO, V., CANTAT, I., SARKER, D., BAUSCH, R., BONN, D. & MEUNIER, J. 2003 Stability of soap films: Hysteresis and nucleation of black films. *Phys. Rev. Lett.* **90** (4). 17
- COANTIC, M. 1980 Mass transfert across the ocean-air interface: small scale hydrodynamic and aerodynamic mechanisms. *Phys. Chem. Hydro.* **1**, 249–279. 1
- COUDER, Y., FORT, E., GAUTIER, C. H. & BOUDAUD, A. 2005 From bouncing to floating: Noncoalescence of drops on a fluid bath. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 177801–(4). 33
- CULICK, F. E. C. 1960 Comments on a ruptured soap film. *J. Appl. Phys.* **31**, 1128. 21
- DEANE, G. B. & STOKES, D. 2002 Scale dependence of bubble creation mechanisms in breaking waves. *Nature* **418**, 839–844. 4, 29
- DEBRÉGEAS, G., DE GENNES, P. G. & BROCHARD-WYART, F. 1998 The life and death of "bare" viscous bubbles. *Science* **279**, 1704–1707. 6
- DUPRÉ, A. 1869 *Théorie mécanique de la chaleur*. Gauthiers-Villars, Paris. 25
- EGGERS, J. & VILLERMAUX, E. 2008 Physics of liquid jets. *Rep. Prog. Phys.* **71**, 36601. 24
- FARADAY, M. 1861 *A course of six lectures on the chemical history of a candle*. Royal Society (Copyright 1988 Chicago Review Press). 31
- DE GENNES, P. G. 2001 "Young" soap films. *Langmuir* **17**, 2416–2419. 2
- HAGEN, G. 1846 Über die oberfläche der flüssigkeiten. *Ann. Poggendorf* **67**, 1,152. 6
- HOWELL, P. D. 1999 The draining of a two dimensional bubble. *J. Eng. Math.* **35**, 251–272. 2
- JACOBS, W. C. 1937 Preliminary reports on the study of atmospheric chlorides. *Mon. Weather Rev.* **65**, 147–151. 1
- KELLAY, H., WU, X. L. & GOLDBURG, W. I. 1995 Experiments with turbulent soap films. *Phys. Rev. Lett.* **74** (20), 3975(4). 34
- KNELMAN, F. H., DOMBROWSKI, N. & NEWITT, D. M. 1954 Mechanism of the bursting of bubbles. *Nature* **173**, 261. 2
- KRAICHNAN, R. 1967 Inertial ranges in two-dimensional turbulence. *Phys. Fluids* **10**, 1417–1423. 34
- LATHAM, J. & SMITH, M. H. 1990 Effect on global warming of wind-dependent aerosol generation at the ocean surface. *Nature* **347**, 372–373. 1
- LHUISSIER, H. & VILLERMAUX, E. 2009 Bursting bubbles. *Phys. Fluids* **21**, 091111. 4, 21
- LIDE, D. R. (ed.) 1999 *Handbook of Chemistry and Physics*, 79th edn. CRC. 8

- MARANGONI, C. & STEFANELLI, P. 1872 Monografia sulle bolle liquide. *Nuovo Cimento* **7-8** (1), 301–356. 3
- MARIS, H. J. 2006 Introduction to the physics of nucleation. *C. R. Physique* **7**, 946–958. 17
- MEUNIER, P. & LEWEKE, T. 2003 Analysis and minimization of errors due to high gradients in particle image velocimetry. *Exp. Fluids* **35**, 408–421. 18
- MONAHAN, E. C. & DAM, H. G. 2001 Bubbles: An estimate of their role in the global oceanic flux. *J. Geophys. Res.* **106**, 9377–9383. 1
- MYSELS, K. J., SHINODA, K. & FRANKEL, S. 1959 *Soap Films, Studies of their Thinning and a Bibliography*. Pergamon, New York. 3, 8, 12
- NEWITT, D. M., DOMBROWSKI, N. & KNELMAN, F. H. 1954 Liquid entrainment. 1. the mechanism of drop formation from gas or vapour bubbles. *Trans. Inst. Chem. Eng.* **32**, 244–261. 3, 6
- NIERSTRASZ, V. A. & FRENS, G. 1998 Marginal regeneration in thin vertical liquid films. *J. Colloid Interface Sci.* **207**, 209–217. 12
- O'DOWD, C. & DE LEEUW, G. 2007 Marine aerosol production: a review of the current knowledge. *Philos. Trans. R. Soc. A* **365**, 1753–1774. 1
- PLATEAU, J. 1873 *Satique expérimentale et théorique des liquides soumis aux seules forces moléculaires*. Ghauthier-Villard. 3
- PREOBRAZHENSII, L. 1973 Estimate of the content of spray-drops in the near-water layer of the atmosphere. *Fluid Mech. Sov. Res.* **2**, 95–100. 29, 30
- RESCH, F. & AFETI, G. 1991 Film drop distribution from bubbles bursting in seawater. *J. Geophys. Res.* **96** (C6), 10681–10688. 2, 4, 24, 25
- SCHWARTZ, L. W. & ROY, R. V. 1999 Modeling draining flow in mobile and immobile soap films. *J. Colloid Interface Sci.* **218**, 309–23. 2
- SPIEL, D. E. 1998 On the birth of film drops from bubbles bursting on seawater surfaces. *J. Geophys. Res.* **103** (C11), 24907–24918. 2, 3, 4, 16, 17, 19, 21, 24, 25, 28
- TOBA, Y. 1959 Drop production by bursting of air bubbles on the sea surface. ii theoretical study on the shape of floating bubbles. *J. Oceanogr. Soc. Jpn.* **15**, 121–130. 4, 31
- VAN KAMPEN, N. G. 1981 *Stochastic Processes in Chemistry and Physics*. North-Holland Publishing Company. 17
- VILLERMAUX, E. 2007 Fragmentation. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **39**, 419–446. 27
- VILLERMAUX, E., MARMOTTANT, P. & DUPLAT, J. 2004 Ligament-mediated spray formation. *Phys. Rev. Lett.* **92** (7). 27
- WORTHINGTON, A. M. & COLE, R. S. 1897 Impact with a liquid surface, studied by the aid of instantaneous photography. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* **189**, 149–166. 1
- WU, J., MURRAY, J. & LAI, R. 1984 Production and distributions of sea spray. *J. Geophys. Res.* **89** (C5), 8163–8169. 4, 29, 30
- XIA, H., SHATS, M. & FALKOVICH, G. 2009 Spectrally condensed turbulence in thin layers. *Phys. Fluids* **21**, 125101. 18
- ZHENG, Q. A., KLEMAS, V. & HSU, Y.-H. L. 1983 Laboratory measurements of water surface bubble life time. *J. Geophys. Res.* **88**, 701–706. 16, 20, 21

6.2 Article paru dans l'édition spéciale de *Physics of Fluids* [105]

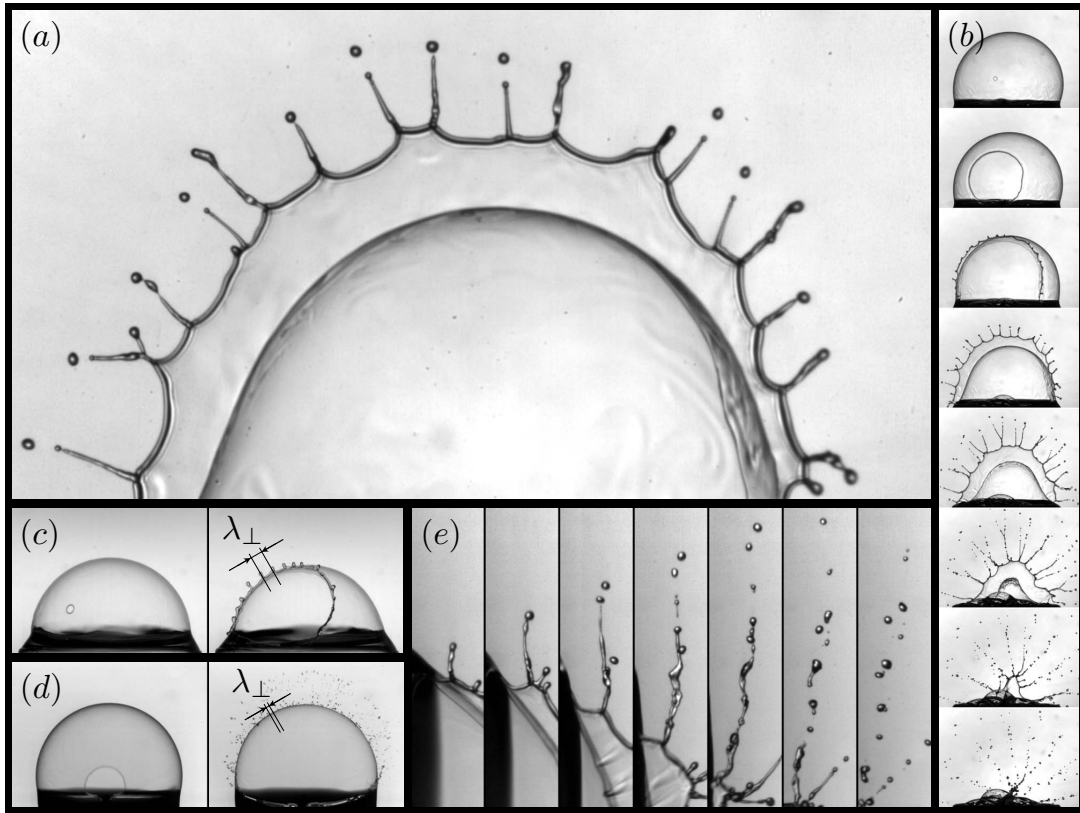


FIG. 1.

Bursting bubbles

Henri Lhuissier¹ and Emmanuel Villermaux^{1,2}

¹IRPHE, Aix-Marseille Université, 13384 Marseille Cedex 13, France

²Institut Universitaire de France, France

(Received 28 May 2009; published online 11 September 2009)

[doi:10.1063/1.3200933]

A young bubble is a piece of bare spherical liquid shell of radius R , with uniform thickness h , formed from an air volume rising underneath a water pool. It bursts by nucleating a hole, opening at the constant tangential velocity $V = \sqrt{2\sigma/\rho h}$ balancing inertia with surface tension forces, and collecting liquid in its rim. The centripetal acceleration $\gamma = V^2/R$ exerted on the rim perpendicular to the shell surface induces its Rayleigh–Taylor destabilization whose wavelength $\lambda_{\perp} \sim \sqrt{\sigma/\rho\gamma}$ scales as the geometrical mean of the only two lengthscales characterizing the bubble,

$$\lambda_{\perp} \sim \sqrt{Rh}. \quad (1)$$

Examples shown here include: [Fig. 1(a)] a snapshot of the rim instability and ligaments expulsion from the full

bursting sequence [Fig. 1(b)] of a $R=10$ mm radius bubble. $\Delta t=2$ ms between frames. Two water bubbles with distinct thicknesses h lead to different wavelengths λ_{\perp} : [Fig. 1(c)] $R=14$ mm, $\Delta t=5$ ms between frames and $\lambda_{\perp}=2$ mm; and [Fig. 1(d)] $R=11.5$ mm, $\Delta t=1.33$ ms between frames and $\lambda_{\perp}=0.8$ mm.

Ligaments emerge from the rim unstable crests and are stretched by centrifugation. They ultimately break by a capillary instability setting the resulting drop size distribution in the spray, as seen in Fig. 1(e). The distribution width is fixed by the relative ligament radius corrugations.¹ The drops thus formed are called “film drops.”² They originate in nature from bubbles entrained below breaking waves,³ and are believed to contribute significantly to the net water evaporation from the sea.⁴

¹E. Villermaux, “Fragmentation,” *Annu. Rev. Fluid Mech.* **39**, 419 (2007).

²D. C. Blanchard and L. D. Sysdek, “Film drop production as a function of bubble size,” *J. Geophys. Res.* **93**, 3649, DOI:10.1029/JC093iC04p03649 (1988).

³G. B. Deane and D. Stokes, “Scale dependence of bubble creation mechanisms in breaking waves,” *Nature (London)* **418**, 839 (2002).

⁴E. L. Andreas, J. B. Edson, E. C. Monahan, M. P. Rouault, and S. D. Smith, “The spray contribution to net evaporation from the sea: A review of recent progress,” *Boundary-Layer Meteorol.* **72**, 3 (1995).

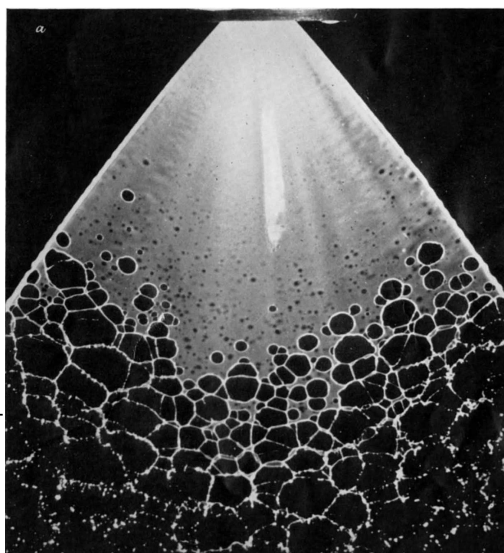
Quatrième partie

Atomisation effervescente

Introduction

À travers une expérience modèle sur une nappe de *Savart* inspirée des travaux de Dombrowski & Fraser [58] (image ci-contre), cette dernière partie aborde le procédé d'atomisation dite "effervescente" selon la terminologie due à Lefebvre [165]. Il s'agit de disperser une phase gazeuse au sein du liquide que l'on souhaite fragmenter dans le but de produire des gouttes de tailles réduites¹.

Ce procédé, en développement, est une alternative aux procédés traditionnels d'atomisation par co-courant gazeux. Il est considéré comme économe aussi bien en énergie qu'en quantité de gaz consommé et il permet de produire des gouttes de très petites tailles sous des pressions d'injection modestes par comparaison avec les procédés diphasiques traditionnels [165]. Son efficacité réside d'une part dans la topologie du volume liquide imposée par l'inclusion des bulles et d'autre part dans la dynamique d'expansion rapide des bulles à la sortie de l'injecteur.



Notre expérience se focalise sur le premier des deux effets. La configuration d'une nappe liquide planeensemencée en fines bulles facilite la visualisation et permet une description complète de chacune des étapes de la transition, depuis le volume liquide connexe jusqu'à la collection de gouttes ; à savoir :

- la nucléation des trous à travers la nappe par éclatement des bulles,
- la croissance de ces trous suivie de la réunion des bourrelets qui les ceinturent en un réseau de ligaments liquides,
- enfin, la brisure de ce réseau en gouttes.

¹ L'expérience est en fait accessible à tout un chacun depuis que les robinets domestiques sont massivement équipés d'aérateurs injectant par effet *Venturi* de l'air au sein du jet dès qu'un débit seuil est atteint ; leur fonction étant de diminuer le débit d'eau et en limiter ainsi la consommation.

Les propriétés statistiques de chacune de ces étapes sont mesurées et expliquées au sein d'un modèle géométrique inspiré de la cinétique de croissance des domaines cristallins [87, 6]. À partir des caractéristiques de la nucléation, ce modèle fournit des prévisions en accord quantitatif avec les mesures sur la distribution des trous, le rayon de la nappe et les diamètres des ligaments formant le réseau.

Enfin la confrontation des distributions du diamètre des gouttes à celles du diamètre des ligaments du réseau montre que la dernière étape de brisure est responsable de la dispersion des tailles autour de la moyenne. Cela tient à la dispersion au sein d'un ligament isolé et naturellement corrugué, mais aussi à l'interaction des ligaments au niveau des nœuds du réseau.

Chapitre 7

Atomisation effervescente

7.1 Dispositif expérimental et ordres de grandeur

7.1.1 L'expérience

Le dispositif sur lequel les nappes di-phasiques ont été étudiées est présenté sur la figure 7.1. Il a été conçu pour produire un mélange homogène d'eau et de fines bulles d'air en grande concentration. Ce mélange est ensuite dirigé vers un injecteur pour former la nappe.

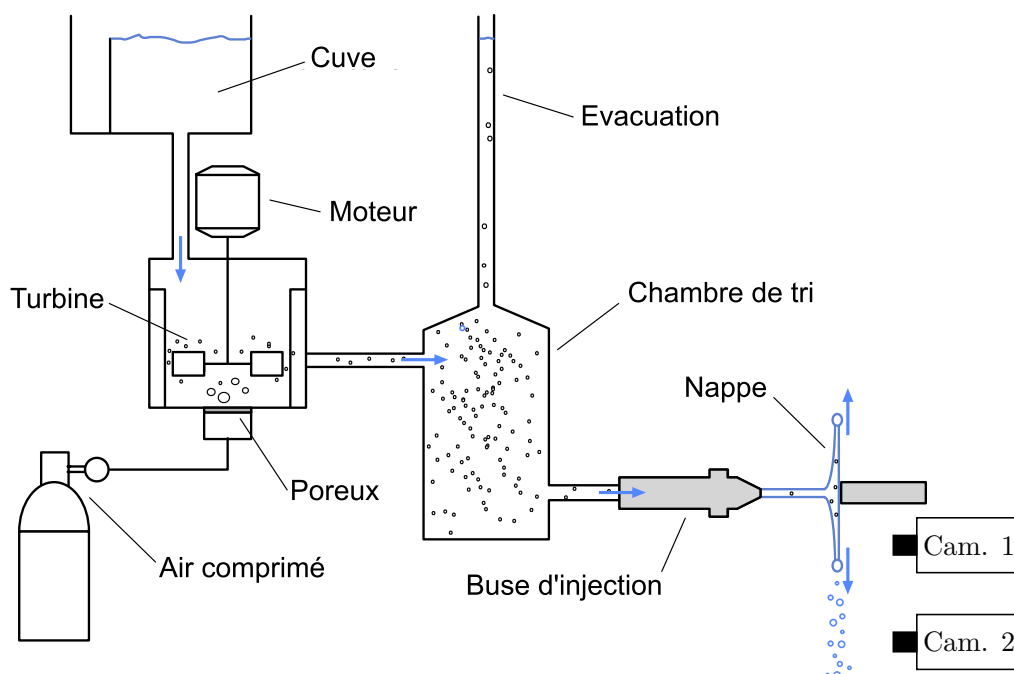


FIG. 7.1 – Dispositif expérimental utilisé pour la production des nappes ensemencées en bulles d'air.

L'écoulement gravitaire est assuré en continu par l'approvisionnement d'eau de-

puis un réservoir surélevé et à débordement. Les bulles d'air sont générées dans la première chambre en deux étapes : des bulles millimétriques sont d'abord produites au niveau d'un poreux séparant l'air sous pression de l'eau, puis elles sont fragmentées afin de réduire leurs dimensions. La fragmentation est assurée par la rotation rapide d'une turbine au milieu de la chambre. La forme de la turbine, de type *Rushton*, et les contre-pales fixées aux parois de la chambre sont choisies pour augmenter le cisaillement et réduire la taille des bulles.

Afin d'éviter qu'elles ne coalescent entre elles lors de cette étape ou ultérieurement, les bulles sont stabilisées par l'ajout d'un tensio-actif : du produit vaisselle Dreft¹. Celui-ci est incorporé en une fois au début de l'expérience, et les propriétés de la solution évoluent ainsi avec la dilution de la quantité initialement introduite. Cette évolution se fait sur un temps caractéristique supérieur à la minute, et pendant la durée d'une observation de l'ordre de la seconde les conditions peuvent alors être considérées stationnaires.

Le mélange diphasique transite ensuite par une chambre de tri des bulles. Pour les diamètres de bulles d_b concernés la vitesse terminale de remontée, prescrite par la viscosité η de la solution, est d'ordre $\rho g d_b^2 / \eta$. Cette dernière dépend fortement de d_b . En ajustant la hauteur au dessous de l'admission à laquelle le mélange est prélevé et le temps écoulé depuis le début de la production des bulles, il est possible d'exploiter ce différentiel de vitesse entre bulles de différent diamètres pour sélectionner une taille maximale entraînée par l'écoulement. Cette chambre permet d'obtenir à tout instant une distribution des tailles de bulles relativement piquée autour d'une valeur qui évolue lentement au cours de l'expérience.

Enfin le mélange est dirigé vers l'injecteur, à la sortie duquel le jet percute le disque d'impact et forme la nappe liquide planeensemencée de façon homogène en fines bulles d'air. De façon à faciliter les visualisations, la nappe est formée dans un plan vertical. La vitesse typique d'injection est $u_0 \sim 5 \text{ m.s}^{-1}$, et les nappes formées ont un rayon $R \sim 10 \text{ cm}$. Ainsi $u_0^2/gR \gg 1$ et la gravité peut être négligée. Le diamètre d'injection est $d_0 = 4 \text{ mm}$ et le nombre de *Weber* associé est d'ordre $We_0 \sim 10^3$.

7.1.2 État de base de la nappe

La nappe peut être vue comme le cas particulier $\theta_0 = \pi/2$ des cloches liquides étudiées dans la partie II. Dans la limite $u_0^2/gR \gg 1$, dans laquelle nous sommes, la vitesse du liquide est constante et la nappe demeure dans le plan perpendiculaire à l'axe du jet. Les champs d'épaisseur et de vitesse débitante prennent alors la forme suivante, simplification de l'équation (4.2) :

$$\begin{cases} h = \frac{d_0^2}{8r} \\ \mathbf{u} = u_0 \mathbf{e}_r \end{cases} \quad (7.1)$$

où, comme dans la partie II, d_0 et u_0 représentent respectivement le diamètre et la vitesse supposée uniforme du jet.

À la différence des cloches, la nappe ne rejoint pas l'axe du jet ; elle possède un bord libre à son extension radiale maximale R . Lorsqu'aucun autre processus de

¹ Voir note de bas de page 6 p. 16.

désintégration de la nappe n'est à l'œuvre, l'extension R est fixée par la rétraction permanente du bord à la vitesse de *Taylor-Culick* $V = \sqrt{2\sigma/\rho h}$ (introduite dans la partie I). Le rayon d'équilibre de la nappe est alors :

$$R = L = \frac{\rho d_0 u_0^2}{16 \sigma} d_0 = \frac{We_0}{16} d_0 \quad (7.2)$$

Ici, en revanche, ce sont les bulles qui fragmentent la nappe et la position du bord fluctue autour d'un rayon R plus faible que L ; typiquement d'un facteur 2 ou 3 (nous déterminerons R en fonction des caractéristiques de la nucléation des trous plus loin). Le comportement est analogue à celui observé à grand nombre de *Weber* en l'absence de bulles lorsque la déstabilisation par cisaillement avec l'atmosphère provoque la fragmentation de la nappe sur une distance plus courte que L [189, 27].

7.1.3 Taille et densité des bulles

L'expérience n'a pas été conçue pour pouvoir mesurer directement les tailles de bulle ni leur nombre. Il est cependant possible d'estimer les deux.

La taille des plus petites bulles produites est prescrite par l'écoulement au voisinage de la turbine. Étant donné le rayon $R_T = 3$ cm et la vitesse de rotation $\omega_T \simeq 100 \pi \text{ s}^{-1}$ de la turbine, la puissance dissipée par unité de volume est d'ordre $\varepsilon \sim \omega_T^3 R_T^2$. En considérant que la turbulence est développée et suit la loi d'échelle de *Kolmogorov* [94], le nombre de *Weber* caractéristique de chaque échelle l de structure turbulente s'écrit :

$$We = \frac{\rho u_l^2 l}{\sigma} = \frac{\rho \omega_T^2 R_T^3}{\sigma} \left(\frac{l}{R_T} \right)^{5/3} \quad (7.3)$$

Cette loi est valable jusqu'à l'échelle de dissipation visqueuse d'ordre $R_T (R_T^2 \omega_T / \nu)^{-3/4} \sim 1 \mu\text{m}$ plus petite que les bulles comme nous allons le vérifier. En considérant qu'une bulle se fragmente typiquement tant que le nombre de *Weber* de l'écoulement turbulent à l'échelle de son diamètre d_b est supérieur à 1 [43, 95, 79], la taille limite des bulles devient :

$$d_b \sim R_T \left(\frac{\rho \omega_T^2 R_T^3}{\sigma} \right)^{-3/5} \sim 30 \mu\text{m} \quad (7.4)$$

C'est l'ordre de grandeur de la résolution des images numériques de nos films. La dimension des plus petites bulles ne peut être mesurée, mais il est cependant possible d'affirmer que les tailles sont inférieures à $100 \mu\text{m}$. Elles sont vraisemblablement de l'ordre de l'épaisseur de la nappe à l'endroit où les trous se forment, c'est-à-dire de 20 à $40 \mu\text{m}$.

La fraction volumique en air peut être estimée à travers le nombre de ces plus grosses bulles visibles sur les films en supposant qu'elles totalisent la majeure partie du volume d'air. Dans les régimes étudiés, leur densité par unité de surface de nappe est de 10^5 à 10^6 m^{-2} pour une épaisseur à l'endroit de la mesure de $h \simeq 30 \mu\text{m}$. Ce qui donne une idée de la fraction volumique d'air dans la nappe :

$$\phi_b \sim \frac{d_b^3}{h} \times 10^6 \text{ m}^{-2} \sim 10^{-4} - 10^{-3} \quad (7.5)$$

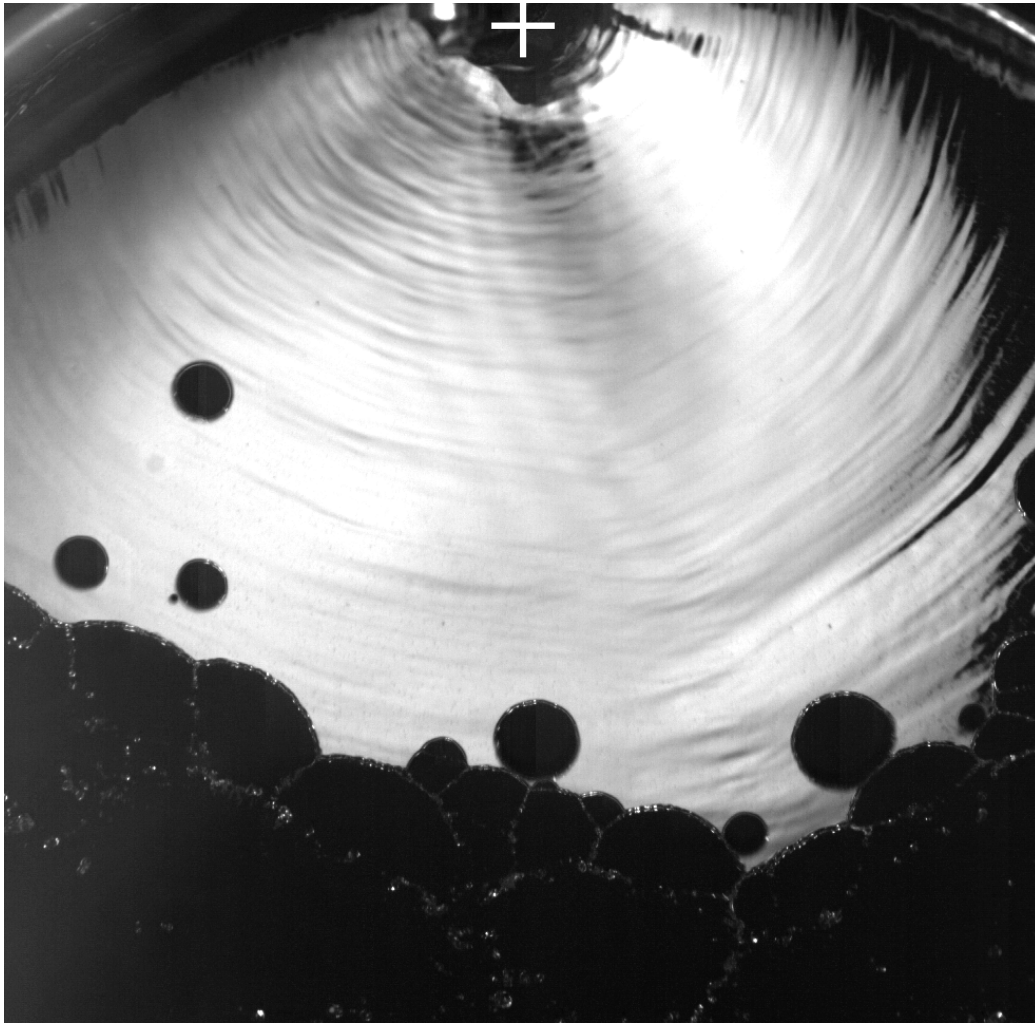


FIG. 7.2 – Vue perpendiculaire d'une portion de nappe liquide trouée telle que filmée par la caméra 1 (voir schéma de la figure 7.1). Le centre est indiqué par la croix blanche et la largeur de l'image est de 12 cm. Les ligaments liquides se devinent au bas de l'image. Ils sont d'avantage mis en évidence sur les figures 7.3 et 7.6.

7.1.4 Tension de surface et vitesse d'ouverture des trous

Comme nous l'avons vu la stabilisation des bulles nécessite l'ajout d'un tensio-actif au mélange. La tension de surface σ de la solution est donc abaissée par rapport à celle de l'eau. Néanmoins, du fait de l'étirement de l'interface accompagnant la formation de la nappe, la valeur de l'eau pure est retrouvée.

En effet, lorsqu'un élément de fluide s'éloigne de l'axe de la nappe, il est soumis au taux d'étirement transverse $\partial_t \ln r = u/r$ qui lui confère la loi d'épaisseur en r^{-1} de l'équation (7.1). Cet étirement s'applique aussi à l'interface dont l'aire augmente au même taux $u/r \geq u/L = 16 u/We_0 d_0 \sim 50 \text{ s}^{-1}$. Ce taux est nettement plus élevé que celui de diffusion-adsorption des molécules de tensio-actif à travers

l'épaisseur du film² d'ordre 1 s^{-1} , et la quantité de tensio-actifs adsorbés à l'interface peut être considérée constante. La concentration surfacique à un rayon r donné est alors plus faible d'un facteur $2r/d_0$ qu'à la surface du jet. Au niveau de la circonférence de la nappe, le facteur vaut par exemple $2L/d_0 = We_0/8 \geq 10^2$. Or quel que soit le type de tensio-actif utilisé², une dilution des molécules adsorbées en surface d'un facteur 3 depuis la compaction maximale suffit à ce que la tension de surface retrouve la valeur du liquide pur. Dans les traces de [114, 19, 128] nous avons vérifié expérimentalement la validité de cette assertion sur les nappes formées.

La tension de surface est mesurée à travers la vitesse d'ouverture de la nappe après qu'un trou ait nucléé spontanément. Afin de limiter l'influence de la divergence des lignes de courant orientées partout selon la direction radiale locale \mathbf{e}_r , nous avons mesuré la vitesse du bord là où il progresse selon cette direction \mathbf{e}_r . De même nous avons minimisé l'erreur sur la vitesse d'ouverture due au gradient d'épaisseur de la nappe en ne considérant que le bord quasi-stationnaire remontant le courant vers l'axe de la nappe à la vitesse v_b . En se plaçant dans une région proche de la circonférence de la nappe, ce bord progresse peu, de $v_b \Delta t = -(u - V) \Delta t$ dans l'intervalle de temps Δt de la mesure, et il le fait sur une nappe dont le gradient d'épaisseur est localement faible. L'hypothèse d'une épaisseur uniforme est alors une bonne approximation.

Par cette méthode la moyenne de la tension de surface $\sigma = \rho h V^2 / 2$ estimée sur neuf mesures indépendantes est $\sigma = 76\text{ mN.m}^{-1}$ et l'écart type associé est de 4%. L'incertitude importante tient notamment à ce que la tension de surface s'exprime comme le carré de la différence des valeurs effectivement mesurées u et v_b . La valeur est néanmoins en bon accord avec la valeur attendue $\sigma_{H_2O} = 72\text{ mN.m}^{-1}$ et fort éloignée de la valeur à saturation $\sigma_{CMC} \simeq 25\text{ mN.m}^{-1}$.

7.2 Trous, ligaments et gouttes

La figure 7.2 montre une portion de nappe typique obtenue avec le dispositif précédemment décrit. Au voisinage de l'axe, la nappe est intègre. Puis, à mesure que l'on s'en éloigne, la proportion de trous devient plus forte jusqu'à un certain rayon R où les trous se rejoignent et occupent tout l'espace. À cette distance la nappe est intégralement convertie en un réseau de ligaments liquides. Ces ligaments se fragmentent ensuite comme sur les figures 7.3 et 7.6 pour donner la collection finale de gouttes. Le but de cette étude est de décrire cette collection de gouttes.

7.2.1 Trous et surface de la nappe

a/ Distribution des trous

La première étape concerne les trous dans la nappe. Pour leur étude, la nappe est filmée en vue perpendiculaire, un éclairage puissant est réglé de façon à se refléter dans la nappe et un fond noir absorbant est placé en arrière plan. Les trous se dessinent alors en noir sur le fond lumineux de la nappe. Les images obtenues, très contrastées, sont enfin rendues binaires par seuillage de l'intensité

² Voir préambule section 1.3.

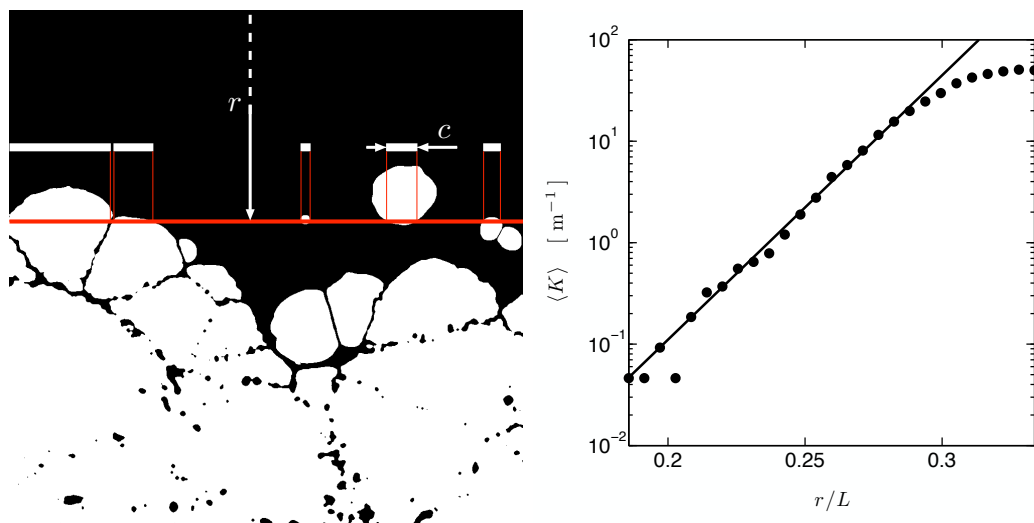


FIG. 7.3 – **Gauche** : Mesure de la longueur c des cordes définies par l'intersection des trous avec une portion de droite située à une distance r de l'axe. **Droite** : Densité linéique moyenne $\langle K \rangle$ de trous "coupés" par la portion de droite en fonction de r (●) et fit par une loi exponentielle $\langle K \rangle = K_0 e^{kr}$ (—).

lumineuse. En filmant la nappe quelques secondes on obtient ainsi l'information de l'état de la nappe (intégrale ou trouée) en chaque point et pour un grand nombre de réalisations indépendantes des mêmes conditions d'injection. Les valeurs reportées ici sont moyennées sur plus de 300 images.

Ces images sont exploitées de plusieurs façons. Les caractéristiques des trous sont tout d'abord mesurées à partir de leur intersection avec des portions de droites tracées à divers rayons de la nappe (voir figure 7.3). Le nombre K de trous traversés par unité de longueur et la longueur c des cordes des trous interceptés sont relevés sur chaque image pour chaque segment. Les segments sont transverses à la direction radiale et le rayon r est essentiellement constant sur chacun des segments. Les figures 7.3 et 7.4 présentent une mesure typique de $\langle K \rangle$ et de $\langle c \rangle$ pour la même nappe en fonction du rayon r ; les moyennes sont effectuées sur le temps.

Pour les faibles rayons r , correspondant à la portion de la nappe sur laquelle les trous n'interagissent pas, on constate que la croissance de $\langle K \rangle \simeq K_0 e^{kr}$ est exponentielle. Or la probabilité qu'un trou de diamètre D soit intercepté par un segment étant proportionnelle à D , $\langle K \rangle$ s'exprime à partir de la densité surfacique de trous Γ selon :

$$\langle K \rangle = \int_0^\infty \langle \Gamma \rangle D p(D) dD = \langle \Gamma \rangle \langle D \rangle \quad (7.6)$$

où $p(D)$ est la densité de probabilité qu'un trou quelconque ait un diamètre D .

La variation de $\langle K \rangle$ avec r est donc a priori le résultat de deux facteurs ; à savoir l'augmentation de la densité surfacique $\langle \Gamma \rangle$ liée à l'apparition de nouveaux trous, et la variation de leur taille moyenne $\langle D \rangle$. Néanmoins la figure 7.4 montre que $\langle c \rangle$ n'évolue que très lentement ; de moins d'un facteur 2 lorsque $\langle K \rangle$ est multipliée par

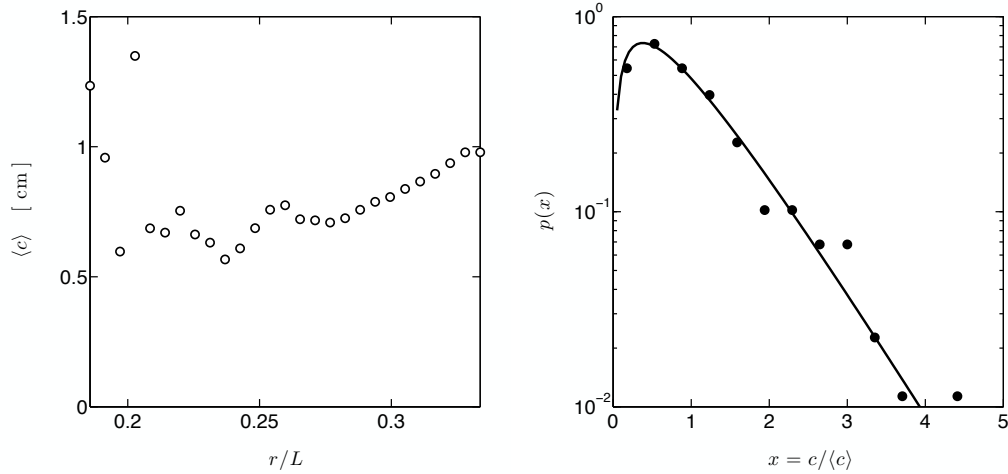


FIG. 7.4 – **Gauche** : Longueur moyenne $\langle c \rangle$ des cordes des trous en fonction de r pour la nappe étudiée. **Droite** : Distribution des longueurs de corde c à un rayon r fixé (●) et comparaison à la distribution (7.11) normée en $\tilde{q}(x) = (\pi^2 x/4) \mathcal{K}_0(-\pi x/2)$ (—).

10^3 . Or pour des trous circulaires $\langle c \rangle$ et $\langle D \rangle$ sont reliés par :

$$\langle c \rangle = \int_0^1 \frac{x}{\sqrt{1-x^2}} dx \frac{\langle D^2 \rangle}{\langle D \rangle} = \frac{\pi}{4} \frac{\langle D^2 \rangle}{\langle D \rangle} \quad (7.7)$$

En supposant que la forme de la distribution de D n'évolue pas singulièrement (ce que nous vérifierons plus loin), il vient $\langle D \rangle \sim \langle c \rangle$ et donc $\langle D \rangle$ évolue peu lui aussi. Ce qui veut dire que l'augmentation de $\langle K \rangle$ est essentiellement due à celle de $\langle \Gamma \rangle$:

$$\frac{\partial \langle K \rangle}{\partial r} \simeq \langle D \rangle \frac{\partial \langle \Gamma \rangle}{\partial r} = \frac{\langle D \rangle}{u} \frac{d \langle \Gamma \rangle}{dt} = \frac{\langle D \rangle}{u} \langle f \rangle \gamma \quad (7.8)$$

où l'on a introduit le taux de nucléation de trous par unité de temps et de surface γ et la fraction surfacique de nappe intègre f qui vérifient par définition $d_t \langle \Gamma \rangle = \langle f \rangle \gamma$. Aux faibles rayons $\langle f \rangle \simeq 1$ et donc, puisque $\langle D \rangle$ est essentiellement constant, on trouve que γ est une fonction exponentielle de r :

$$\gamma = \frac{ukK_0}{\langle D \rangle} e^{kr} = \gamma_0 e^{kr} \quad (7.9)$$

Puisque les trous croissent et sont advectés aux vitesses constantes V et u respectivement, la distribution des tailles de trous à un rayon r donné est directement liée à "l'historique" de la nucléation sur les rayons $r' \leq r$. Un trou ayant nucléé en r' possède ainsi un diamètre $D = 2(r - r')V/u$ une fois rendu en r , et la densité de probabilité des diamètres s'écrit :

$$p(D) = \frac{1}{2V \langle \Gamma \rangle} \gamma(r') = \frac{uk}{2V} e^{-\frac{uk}{2V} D} \quad (7.10)$$

Où l'on a utilisé le fait que la densité de trous croît comme le taux de nucléation pondéré par la fraction intègre; c'est-à-dire $u \partial_r \langle \Gamma \rangle = \langle f \rangle \gamma \simeq \gamma$. Les diamètres des

trous suivent donc une distribution exponentielle dont la moyenne $\langle D \rangle = 2V/uk$ est constante comme nous l'avons supposé pour la dérivation et alors $\langle c \rangle = \pi\langle D \rangle/2 = \pi V/uk$ d'après l'équation (7.7). La valeur obtenue à partir des mesures indépendantes de u , V et k (sur la figure 7.3) est $\langle c \rangle = 8.5$ mm en bon accord avec les mesures de la figure 7.4 qui font état d'une valeur dérivant lentement de 6 à 10 mm.

La densité de probabilité des longueurs de cordes peut alors être inférée de celle des diamètres D et de la distribution des cordes sur un cercle selon :

$$q(c) = \int_0^1 \frac{c}{\langle D \rangle x} p\left(\frac{c}{x}\right) \frac{x}{\sqrt{1-x^2}} \frac{dx}{x} = \frac{c}{\langle D \rangle^2} \mathcal{K}_0\left(\frac{c}{\langle D \rangle}\right) \quad (7.11)$$

où \mathcal{K}_0 est la fonction de *Bessel* modifiée de second espèce et d'ordre nul. Cette distribution est comparée aux mesures sur la figure 7.4.

b/ Surface et rayon de la nappe

Si à un instant donné le rayon R de la nappe n'est pas clairement défini comme la figure 7.2 l'illustre, il peut néanmoins être caractérisé par une position moyenne au cours du temps. Dans cette optique, la fraction f de nappe intègre à un rayon r est la grandeur pertinente la plus simple à mesurer. La figure 7.5 présente la mesure de $\langle f \rangle$, là encore moyennée sur le temps. Il est possible de relier $\langle f \rangle$ au taux de nucléation des trous et à leur vitesse d'ouverture. $\langle f \rangle$ passe de 1 à 0 sur une distance Δr courte devant le rayon local r ($\Delta r/r \simeq 1/3$) et l'on considérera par la suite que l'écoulement \mathbf{u} est localement uniforme, et que la vitesse d'ouverture $V \propto h^{-1/2} \propto r^{1/2}$ est elle aussi uniforme sur cette portion Δr .

Par définition $\langle f \rangle = 1 - \langle K \rangle \langle c \rangle$. Pour les faibles rayons, c'est-à-dire lorsque les trous sont libres d'interaction, l'expression de $\langle f \rangle$ peut être approchée à partir des équations (7.6) et (7.7) qui ne sont valides que dans cette limite. Néanmoins il est possible d'obtenir une expression plus générale valide pour tous les rayons, même lorsque $\langle f \rangle \ll 1$. De façon analogue à l'établissement de la distribution (7.10), $\langle f \rangle$ s'exprime à partir de l'historique des événements de nucléation sur les rayons inférieurs, correspondant à des instants passés.

La fraction intègre de la nappe à un rayon r est égale à la probabilité qu'un lieu quelconque situé à r ne soit *pas* atteint par un trou. Cela revient à ce que pour chacun des rayons inférieurs $0 \leq r' \leq r$ aucun trou n'ait nucléé dans un disque \mathcal{D} de rayon $V(r-r')/u$ centré en r' . En supposant que chacune de ces probabilités élémentaires $\int_{\mathcal{D}} \gamma d\Sigma \times \Delta t' \simeq \gamma(r') \int_{\mathcal{D}} d\Sigma \times \Delta t'$, c'est-à-dire que le taux de nucléation sur l'ensemble du disque \mathcal{D} peut être pris égal à celui en son centre situé en r' ³, la fraction intacte s'écrit :

$$\langle f \rangle = \lim_{\Delta t' \rightarrow 0} \prod_{t'/\Delta t'=0}^{t/\Delta t'} \left[1 - \pi \frac{V^2}{u^2} (r-r')^2 \gamma(r') \Delta t' \right] = e^{-\pi \frac{V^2}{u^3} \int_0^r \gamma(r') (r-r')^2 dr'} \quad (7.12)$$

exprimant simplement que $\langle f \rangle$ est le produit des probabilités de *non*-nucléation dans chacune des zones susceptibles de propager un trou jusqu'au lieu considéré. Ce résultat est une extension de celui de Johnson & Mehl [87] obtenu lors de l'étude

³ Cette approche est valide tant que $u \gg V$.

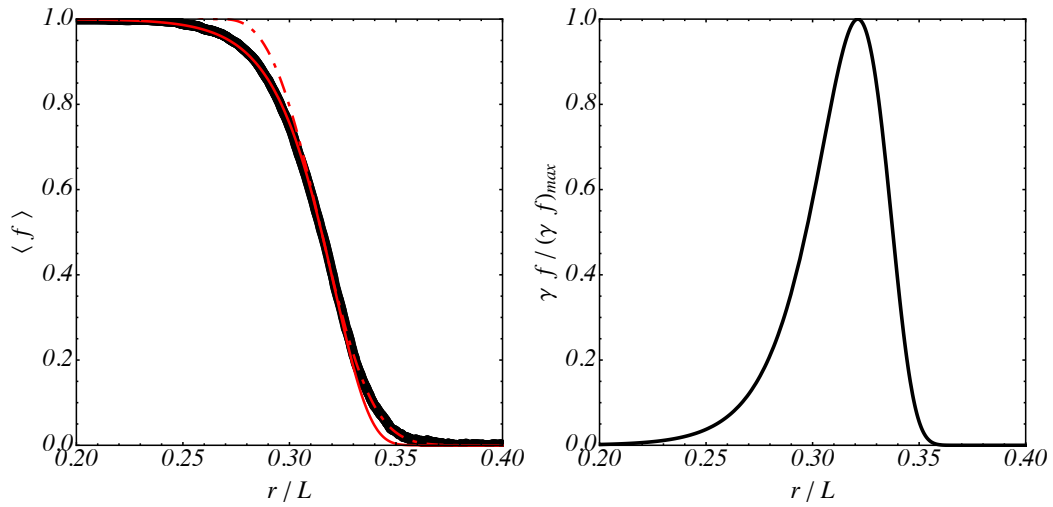


FIG. 7.5 – **Gauche** : Fraction surfacique $\langle f \rangle$ de nappe intègre en fonction du rayon r . Moyenne sur 300 images indépendantes (\bullet) et comparaison avec la loi (7.13) correspondant à un taux de nucléation exponentiel (—). La valeur de k est mesurée indépendamment sur la figure 7.3 ($k = 60/L$) et le meilleur fit est réalisé pour $\mathcal{A} = 2.13 \times 10^{-9}$ qui se compare favorablement à la valeur prédite $\pi\gamma_0 V^2 / (uk)^3 = 2.89 \times 10^{-9}$ déterminée à partir des mesures indépendantes de u , V , K_0 et k . À titre comparatif la meilleure loi $\langle f \rangle = \exp[-\mathcal{A}(r - r_0)^3]$ correspondant à un taux de nucléation nul jusqu'à r_0 puis constant ensuite est représentée (---). **Droite** : Taux de nucléation effectif $\gamma \langle f \rangle$ en fonction de r d'après les expressions (7.9) et (7.13). La courbe est adimensionnée par la valeur maximale $\gamma_0 / 2\mathcal{A}e$ atteinte en $r = R$.

des propriétés des joints de grains et des domaines cristallins dans le contexte de la solidification des métaux⁴. Il est parfois connu sous le nom de Avrami [6, 7, 8] qui a généralisé l'approche de Johnson & Mehl. Pour le taux de nucléation exponentiel $\gamma = \gamma_0 e^{kr}$ on obtient :

$$\ln \langle f \rangle = -\mathcal{A} \left[2(e^{kr} - 1) - kr(2 + kr) \right] \quad (7.13)$$

où l'on a noté $\pi\gamma_0 V^2 / (uk)^3 = \mathcal{A}$. Cette loi est comparée aux mesures sur la figure 7.5. Elle est quantitativement en accord avec les autres mesures, étant données les approximations utilisées, puisque la valeur de \mathcal{A} ajustée sur la courbe expérimentale est à 30 % près égale à $\pi\gamma_0 V^2 / (uk)^3$ déterminé à partir des mesures indépendantes sur le nombre de trous coupés par un segment (figure 7.3).

Le rayon R de la nappe découle directement de l'équation (7.13). Il correspond à la transition entre nappe intègre et désintégrée ; à laquelle la fraction $\langle f \rangle$ passe brusquement de 1 à 0. En utilisant le fait qu'à cette transition $e^{kr} \gg kr$, puisque $kr \simeq 20$, le rayon R est défini par $\ln \langle f \rangle \sim -1$; soit :

$$R \simeq -\frac{\ln(2\mathcal{A})}{k} \quad (7.14)$$

dont la valeur correspondant à la nappe de la figure 7.5 est $R = 0.32 L$.

⁴ Johnson & Mehl ont considéré un milieu infini homogène et un taux de nucléation γ constant dans le temps ; ils obtiennent ainsi en dimension 2 la loi $\langle f(t) \rangle_x = A e^{-Bt^3}$, aussi représentée sur la figure 7.5.

c/ Densité de trous

Enfin, la prédiction essentielle pour la qualité de l'atomisation est certainement Γ_∞ : la densité finale de trous lorsqu'ils se sont tous rejoints et que la nappe est entièrement désintégrée. C'est en effet elle qui fixe la dimension typique des trous et donc des ligaments à partir desquels les gouttes sont formées. Par définition Γ_∞ est la somme du nombre de trous créés à chacun des rayons r sur une portion de nappe voyageant à la vitesse u ; soit :

$$\Gamma_\infty = \int_0^\infty \gamma(f) \frac{dr}{u} \quad (7.15)$$

Si la loi exponentielle du taux de croissance est valide jusqu'au bout une expression de Γ_∞ peut être obtenue en utilisant à nouveau le fait que $e^{kR} \gg kR$. Soit⁵ :

$$\Gamma_\infty \simeq \frac{\gamma_0}{u} \int_0^\infty e^{kr - \mathcal{A}e^{kr}} dr = \frac{\gamma_0}{uk} \frac{e^{-\mathcal{A}}}{\mathcal{A}} \quad (7.16)$$

Pour le cas présenté cela conduit à $\Gamma_\infty = 4.4 \times 10^4 \text{ m}^{-2}$, ce qui laisse à penser qu'approximativement $1/10^6$ des bulles visibles donnent naissance à un trou. Cette estimation est compatible avec les observations directes où il apparaît qu'une majorité des bulles est collectée dans un bourrelet avant d'avoir engendré un trou.

7.2.2 Le réseau de ligaments

Lorsqu'un trou se forme et croît, le liquide de la nappe est collecté dans un bourrelet se formant sur le pourtour du trou. Si de nombreux trous nucléent sur un court intervalle de temps, ceux-ci s'étendent jusqu'à réaliser un pavage du plan de la nappe. Les bourrelets des trous adjacents se rencontrent et fusionnent pour donner un réseau de ligaments liquides à partir duquel les gouttes seront formées comme la figure 7.6 le montre. Il est ainsi nécessaire de détailler les propriétés statistiques de ce réseau pour comprendre celles de la collection finale de gouttes.

La question est ici de déterminer la longueur (par unité de surface de la nappe) des ligaments présentant un diamètre donné, c'est-à-dire compris entre d_l et $d_l + dd_l$. Les ligaments contiennent le liquide qui "remplissait" les trous, et le diamètre d'une portion de ligament vaut simplement (voir figure 7.7) :

$$d_l = \sqrt{\frac{2h(l_1 + l_2)}{\pi}} \quad (7.17)$$

où l_1 et l_2 sont les distances de la tangente du ligament aux deux lieux de nucléation que celui-ci sépare.

Dans le cas général où la nucléation est *Poissonienne* dans l'espace et dans le temps, cette distribution s'avère ardue à exprimer. Les seuls résultats analytiques connus concernent le problème uni-dimensionnel ; c'est-à-dire la croissance, à partir de lieux de nucléation répartis sur une droite, de segments dont les frontières se

⁵ Pour comparaison, le cas d'un taux de nucléation γ et d'une vitesse d'ouverture V tous deux uniformes donne $\Gamma_\infty = \int_0^\infty \gamma(f) dt = \Gamma_f \left(\frac{4}{3}\right) \left(\frac{3\gamma^2}{\pi V^2}\right)^{1/3}$.

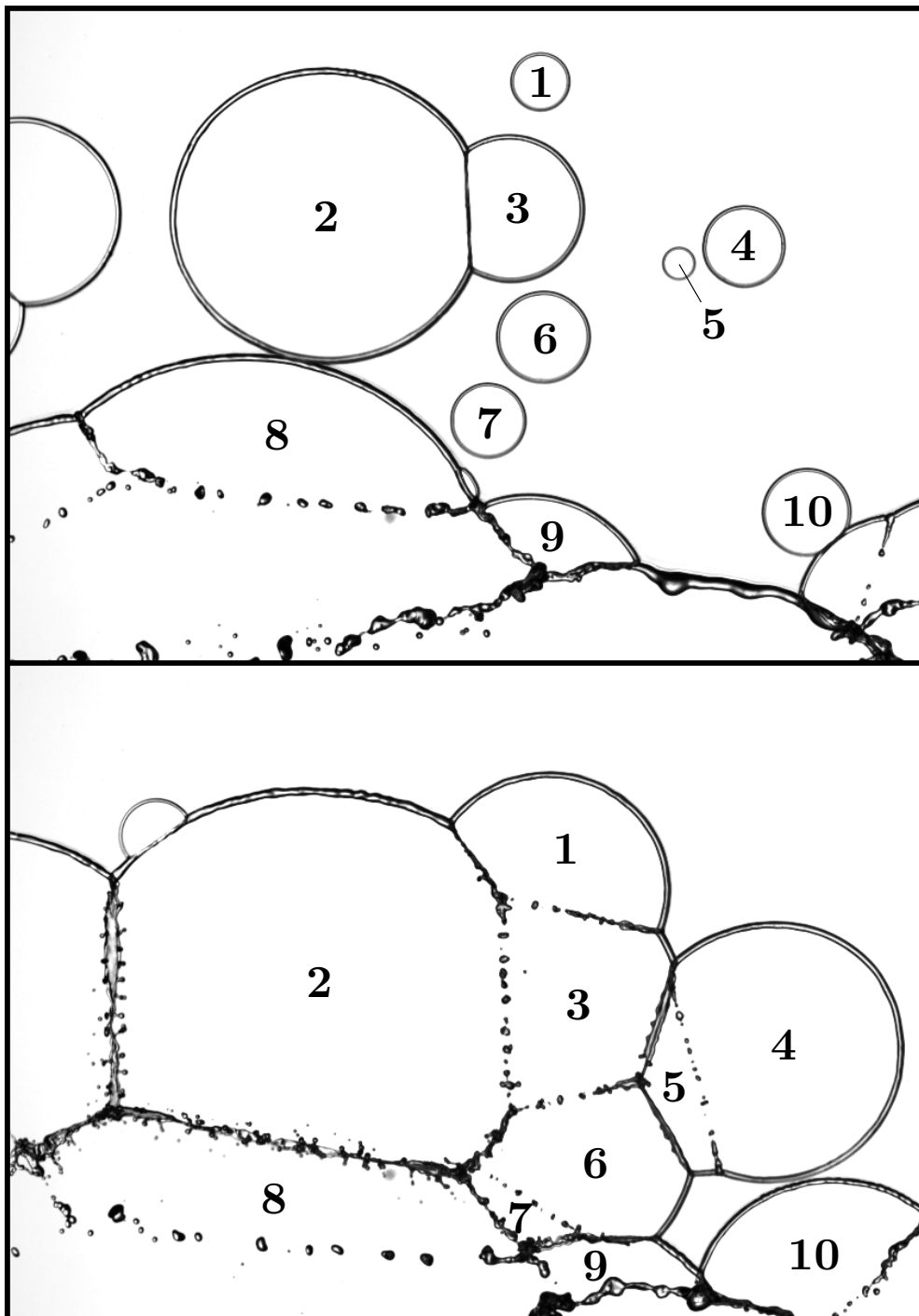


FIG. 7.6 – Détails de la rencontre de trous formés dans la nappe. Les trous numérotés de 1 à 10 croissent de façon isotrope en même temps qu'ils sont advectés à la vitesse u de l'écoulement, dirigée globalement vers le bas sur cette vue. À leurs frontières communes se forme un réseau de ligaments liquides approximativement rectilignes qui se résout en une collection de gouttes. Les deux images sont séparées de 2 ms et leur largeur correspond à 50 mm.

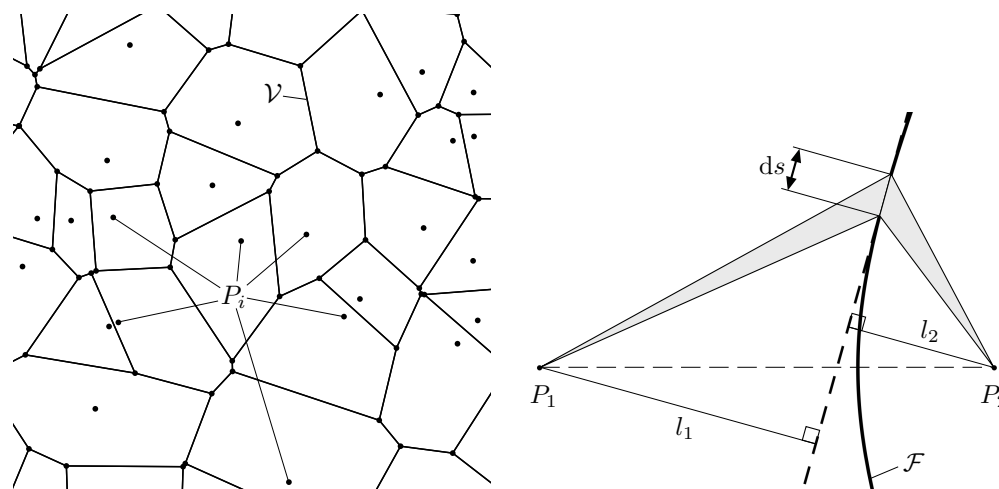


FIG. 7.7 – **Gauche** : Exemple de diagramme de Voronoï⁶ \mathcal{V} réalisé à partir de points P_i répartis aléatoirement sur le plan. Il représente le réseau des ligaments lorsque la nucléation des trous s'opère de façon synchrone en ces points P_i . **Droite** : Portion de ligament \mathcal{F} mitoyenne de deux trous ayant nucléés aux points P_1 et P_2 dans le cas où la nucléation est étalée dans le temps; \mathcal{F} est alors un arc d'hyperbole. La quantité de liquide par unité de longueur du ligament est proportionnelle à la surface grisée divisée par ds ; c'est-à-dire à la somme $(l_1 + l_2)/2$ qui intervient dans l'expression (7.17). Pour une nucléation synchrone, \mathcal{F} est sur la médiatrice du segment P_1P_2 et alors $l_1 = l_2 = l$ sur l'ensemble du ligament qui a donc une section uniforme.

résumé à des points [87, 130]. En dimension 2 la frontière des trous, c'est-à-dire le réseau de ligaments, est composé de portions d'hyperboles ce qui rend l'analyse complexe.

Nous considérerons ici, que la nucléation intervient sur un intervalle de temps très court (c'est-à-dire concentré autour d'un rayon donné de la nappe) devant le temps de croissance des trous. Cette hypothèse n'est pas exactement vérifiée, car si la nucléation est bien concentrée autour d'un rayon particulier comme nous l'avons vu dans la section précédente, le diamètre des trous n'en est pas moins relativement distribué. Nous poursuivons néanmoins avec cette hypothèse simplificatrice qui se prête à une résolution et demeure fort pertinente pour illustrer le rôle de la géométrie du réseau de ligament sur la distribution des tailles de gouttes comme nous le verrons par la suite.

Le cas limite est celui où les trous apparaissent tous au même instant et la nucléation est alors un processus *Poissonien* uniquement dans l'espace; c'est-à-dire que la probabilité de nucléation sur une surface infinitésimale $d\Sigma$ ne dépend que de $d\Sigma$ et vaut $\beta d\Sigma$. Le réseau de ligament est alors l'ensemble \mathcal{V} des côtés des polygones de Voronoï⁶ associés aux lieux de nucléation (voir figure 7.7). Là encore les résultats analytiques sont peu nombreux. Seules les moyennes et éventuellement les premiers moments des distributions des surfaces, périmètres ou nombres de côtés des cellules sont connus [155]. Néanmoins nous sommes parvenus à exprimer la densité de probabilité des distances l sous forme intégrale (dont le calcul est présenté en annexe C). Son intégration numérique montre qu'elle est indiscernable d'une distribution

⁶ Le polygone de Voronoï associé à un lieu de nucléation P est l'ensemble des points du plan qui sont plus proches de P que de n'importe quel autre lieu de nucléation.

de *Rayleigh* avec laquelle elle sera donc confondue :

$$p\left(x = \frac{l}{\langle l \rangle}\right) = \frac{\pi}{2} x e^{-\frac{\pi x^2}{4}}, \quad \langle l \rangle = \frac{\beta^{-1/2}}{2} \quad (7.18)$$

où p représente la densité de probabilité qu'une portion de ligament de longueur infinitésimale ds prise aléatoirement sur le réseau soit à une distance l du lieu de nucléation le plus proche.

En plus de cette distribution, la longueur \mathcal{L} de ligaments par unité de surface est connue. Elle s'exprime comme le produit de la moitié du périmètre moyen d'un trou $4\beta^{-1/2}/2$ (car chaque ligament est commun à deux trous) par la densité de trous β ; soit $\mathcal{L} = 2\beta^{1/2}$.

Puisque le réseau de ligaments est le diagramme de *Voronoi* des lieux de nucléation, $l_1 = l_2 = l$ et donc l'équation (7.17) se résume à $d_l = \sqrt{4lh/\pi}$. La densité de probabilité des diamètres des ligaments d_l (toujours relative à une portion quelconque de ligament) s'écrit alors :

$$\tilde{q}\left(x = \frac{d_l}{\langle d_l \rangle}\right) = 4\Gamma_f\left(\frac{5}{4}\right)^4 x^3 e^{-[\Gamma_f\left(\frac{5}{4}\right) x]^4}, \quad \langle d_l \rangle = \frac{2\sqrt{2}}{\pi^{3/4}} \Gamma_f\left(\frac{5}{4}\right) \sqrt{\langle l \rangle h} \quad (7.19)$$

où $\Gamma_f(x) = \int_0^\infty t^{x-1} e^{-t} dt$ est la fonction *gamma*. Il convient de noter que la forme de cette distribution en $x^3 e^{-x^4}$ est particulièrement piquée autour de la moyenne, ce que nous discuterons par la suite.

7.2.3 Les gouttes

Enfin nous avons mesuré la distribution des diamètres d des gouttes formées par la fragmentation du réseau de ligaments. En même temps que la nappe et les trous sont observés à l'aide d'une première caméra, les gouttes sont filmées à l'aide d'une seconde caméra placée suffisamment en contrebas (voir figure 7.1) pour qu'elles aient eu le temps de relaxer vers une forme sphérique. La profondeur de champs des images est volontairement réduite et la mise au point est faite dans le plan de la nappe si bien que les gouttes situées hors de ce plan apparaissent floues. Seules les gouttes nettes sélectionnées par traitement d'image (présenté en annexe B) sont comptabilisées pour les mesures de distributions.

Une distribution typique des diamètres de gouttes d est présentée sur la figure 7.8. Elle correspond à la nappe sur laquelle ont été effectuées les mesures de la section précédente. Pour interpréter cette distribution finale des tailles de gouttes, qui est celle qui caractérise le processus d'atomisation, il est nécessaire de comprendre la fragmentation des ligaments. Ceux-ci se brisent naturellement du fait de leur géométrie cylindrique par le mécanisme de *Plateau-Rayleigh*. Pour un ligament infini et de section uniforme la longueur d'onde sélectionnée par l'instabilité est $\lambda_{PR} \simeq 4.51 d_l$ [111].

Dans un premier temps, il est intéressant de négliger l'influence des nœuds du réseau (à la jonction de trois ligaments), pour ne considérer que celle des ligaments eux-même. La vision schématique selon laquelle la brisure d'un ligament engendre

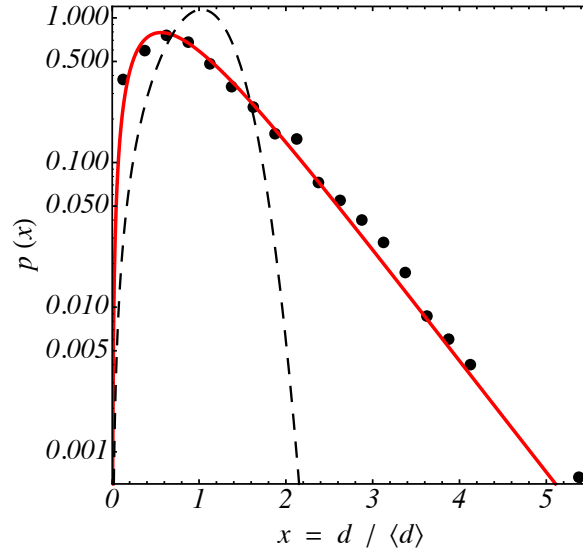


FIG. 7.8 – Densité de probabilité normée des diamètres d mesurée au bord de la nappe (\bullet) sur plus de 6000 gouttes et comparaison avec la fonction normée (7.24) tracée pour $n = 3$ (—). La valeur moyenne est $\langle d \rangle = 0.60$ mm. Pour comparaison, la fonction (7.21) résultant d'un modèle de brisure mono-disperse des ligaments est représentée (- -).

une collection de gouttes de taille mono-disperse conduit alors à la densité de probabilité des diamètres d :

$$r_0(d) \propto \frac{1}{d_l} q(d_l) , \quad d_l = \left(\frac{2 d_l}{3 \lambda_{PR}} \right)^{1/3} d = b_0 d \quad (7.20)$$

qui se réécrit après normalisation :

$$\tilde{r}_0 \left(x = \frac{d}{\langle d \rangle} \right) = \frac{4 x^2}{\Gamma_f(\frac{3}{4})^4} e^{-[x/\Gamma_f(\frac{3}{4})]^4} , \quad \langle d \rangle_0 = \frac{2\sqrt{2}}{\pi^{3/4} \Gamma_f(\frac{3}{4}) b_0} \sqrt{\langle l \rangle h} \quad (7.21)$$

Cette vision fournit une bonne estimation de la taille moyenne des gouttes. En effet une prédiction de la valeur expérimentale peut être faite en considérant que le réseau de Voronoï à partir duquel a été établie la distribution (7.18) possède la même densité de trous que celle de la nappe : c'est-à-dire $\beta = \Gamma_\infty$, où Γ_∞ est la valeur déterminée sur la base des expériences dans la section précédente. Cela conduit à :

$$\langle d \rangle_0 = \frac{2\sqrt{2}}{\pi^{3/4} \Gamma_f(\frac{3}{4}) b_0} \sqrt{\frac{h}{2 \Gamma_\infty^{1/2}}} \simeq 1.31 \times \sqrt{\frac{h}{\Gamma_\infty^{1/2}}} \quad (7.22)$$

Dont la valeur numérique, pour l'exemple suivi depuis le début, est $\langle d \rangle_0 = 0.43$ mm du même ordre de grandeur que la valeur expérimentale $\langle d \rangle = 0.60$ mm.

Cette relative concordance sur la moyenne ne doit pas cacher le profond désaccord sur la distribution des tailles autour de cette moyenne. La distribution (7.21) est très étroite. Cela tient à ce que la distribution des diamètres d_l des ligaments, elle-même piquée car s'exprimant à partir de la racine carrée de l , a été convoluée

avec une fonction de *Dirac* représentative d'une distribution mono-disperse, pondérée par le facteur géométrique x^{-1} . La confrontation de (7.21) avec la distribution expérimentale de la figure 7.8 montre qu'elle est un mauvais modèle de la fragmentation de la nappe : la distribution expérimentale est nettement plus large.

Notre point de vue est que cette différence n'est *pas* imputable aux simplifications qui ont été effectuées sur la géométrie du réseau en considérant un diagramme de *Voronoi* plutôt qu'un réseau plus complexe d'arcs d'hyperboles engendré par une nucléation répartie dans le temps. En effet dans ce dernier cas, les distances l_1 et l_2 parcourues par deux bourrelets qui se rencontrent pour donner un ligament (voir figure 7.7) ne sont plus nécessairement égales. La section d_l^2 du ligament ainsi généré faisant intervenir la somme $l_1 + l_2$, sa densité de probabilité s'obtient par auto-convolution de celle de l , et elle est donc nécessairement plus piquée que cette dernière. De même pour la distribution de d_l qui est à son tour nécessairement plus piquée que celle de d_l^2 . Ainsi tous les ingrédients concourant à ce que $\tilde{q}(d_l/\langle d_l \rangle)$ soit piquée se retrouvent dans un modèle de nucléation répartie dans le temps et il est fort à parier que la distribution de d_l dans ce dernier cas soit semblable à $\tilde{q}(d/\langle d_l \rangle)$ établie en (7.18).

La différence entre les mesures et l'expression (7.21) est en revanche une illustration de la brisure de chaque ligament en une large population de tailles de gouttes mais aussi de l'interaction entre ligaments. Les observations directes indiquent notamment que les nœuds du réseau (à la jonction d'un triplet de ligaments) sont la source des gouttes les plus grosses. Pendant la durée de la brisure des ligaments d'ordre $(\rho d_l^3/\sigma)^{1/2}$, ceux-ci, reliés par leurs extrémités, se vidangent partiellement les uns dans les autres. Le sens de la vidange est imposée par la différence de la pression capillaire $2\sigma/d_l$ entre chacun des ligaments. Par ce mécanisme, les ligaments fins s'amincissent au profit des gros ligaments. Il serait illusoire de chercher à déterminer la distribution résultante, mais une chose est sûre, la distribution des diamètres d_l après interaction est plus large que la distribution (7.19) déterminée à partir de la seule géométrie des trous.

La dispersion intrinsèque à la brisure d'un ligament isolé est habituellement bien prise en compte par une distribution *gamma* autour de la moyenne $\langle d \rangle_{lig}$ propre à ce *même* ligament ([190, 29] et voir par exemple section 6.1) :

$$\tilde{s}_n \left(x = \frac{d}{\langle d \rangle_{lig}} \right) = \frac{n^n}{\Gamma_f(n)} x^{n-1} e^{-nx} \quad (7.23)$$

dont l'ordre n , qui pilote la largeur de la distribution, dépend de la corrugation du ligament source. Un ligament lisse donne un ordre élevé et donc une distribution piquée ; on retrouve ainsi dans la limite des grands n une distribution mono-disperse. Inversement un ligament fortement corrugué donne un n petit et une distribution large.

Sans être à même de déterminer la forme de la distribution résultant des interactions entre ligaments nous nous contenterons de l'englober dans un modèle de distribution large (c'est à dire à n faible) des gouttes résultant d'un ligament isolé.

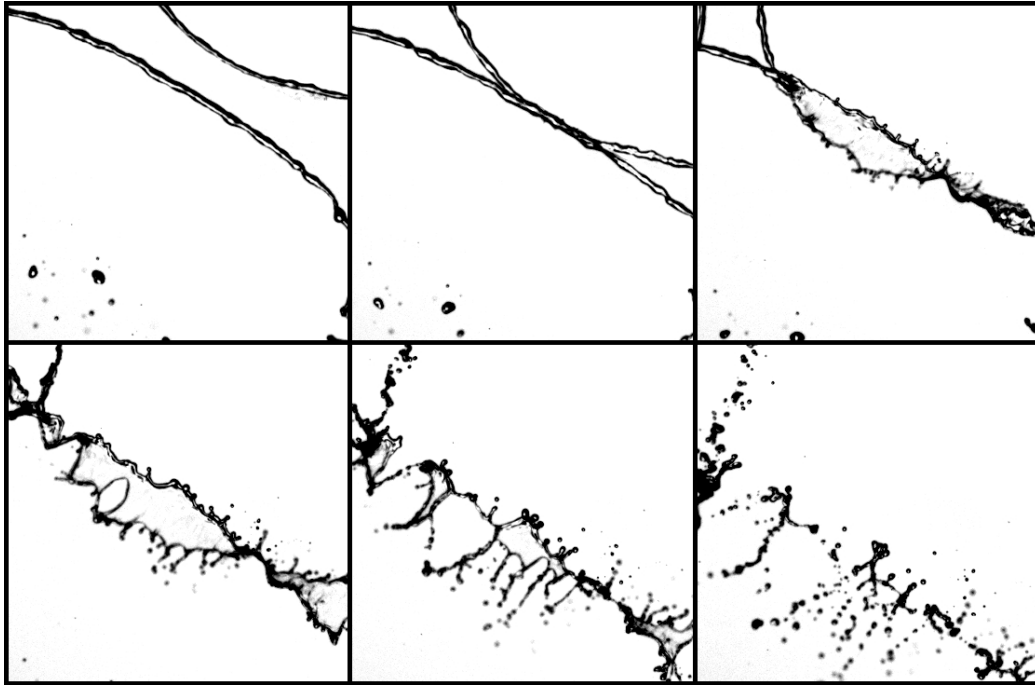


FIG. 7.9 – Illustration de l'impact des bourrelets bordant les trous lorsque la nucléation de ces derniers est clairsemée. Les distances l parcourues sont alors grandes et la collision à grand nombre de Weber donne naissance à une nappe secondaire, essentiellement transverse à la nappe primaire comme le suggère le flou sur la dernière image. La nappe se déstabilise en une série de ligaments (de façon analogue à une couronne de Worthington [193]) pour former une collection de gouttes de diamètres sensiblement inférieurs à ceux des bourrelets. Les images sont espacées de 1 ms et leur largeur correspond à 36 mm.

La distribution des diamètres d des gouttes prend alors la forme :

$$r(d) = \int_0^\infty \tilde{s}_n \left(\frac{d}{b_n d_l} \right) q(d_l) \frac{1}{b_n d_l} dd_l \quad (7.24)$$

où $b_n = d_l / \langle d \rangle_{lig}$ est le rapport du diamètre d_l du ligament au diamètre moyen $\langle d \rangle_{lig}$ des gouttes résultant de sa fragmentation et $q(d_l) = \tilde{q}(d_l / \langle d_l \rangle) / \langle d_l \rangle$ est la distribution dimensionnée des diamètres. La figure 7.8 montre que la distribution (7.24) se compare favorablement aux mesures uniquement si l'on choisit un ordre particulièrement faible : $n = 3$. C'est un signe de ce que les interactions entre ligaments affectent significativement la taille de ceux-ci.

Enfin nous concluons en soulignant une autre source de poly-dispersité entre les gouttes. Lorsque les bourrelets de deux trous adjacents se rejoignent pour former un ligament, ils sont animés de vitesses de rapprochement non négligeables. Le nombre de Weber associé à la collision est alors $\rho V^2 d_l / \sigma \sim \sqrt{l/h}$. Pour des distances l entre trous suffisamment importantes, la collision engendre une nappe secondaire transverse à la nappe primaire. Comme il apparaît sur la figure 7.2.3 cette nappe se déstabilise ensuite pour se fragmenter en une collection de gouttes de tailles très diverses et sensiblement plus petites que le diamètre des bourrelets sources. Ainsi

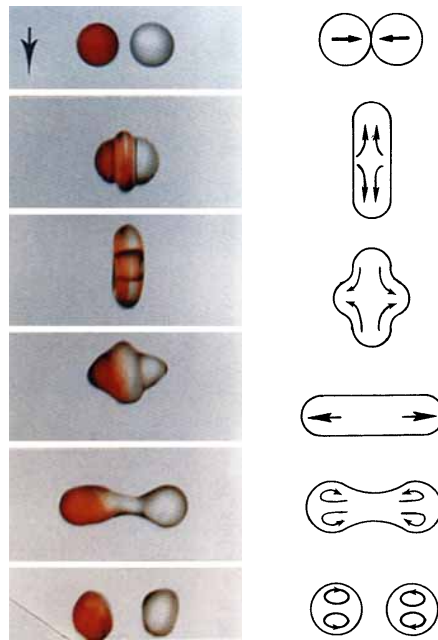


FIG. 7.10 – **Gauche** : Impact frontal de deux gouttes d'eau colorées pour un nombre de Weber de 23, à peine supérieur à la limite de séparation. **Droite** : Schéma de l'impact. On remarquera que la seconde étape correspond à une nappe circulaire alors que la quatrième correspond à un ligament à partir duquel s'opère la séparation. Les deux figures sont issues de Ashgriz & al [5].

lorsque la densité de trous diminue, le diamètre caractéristique d_l des ligaments augmente, mais paradoxalement il faut s'attendre à ce qu'à partir d'un certain seuil celui des gouttes diminue.

Cette dernière remarque permet de délimiter l'étude présentée dans cette partie. Celle-ci se base sur la formation d'un réseau ligamentaire issu de la *coalescence* des bourrelets et exclu de facto la fragmentation liée à ces nappes transverses. Elle suppose donc que la concentration en trous β soit encadrée selon :

$$\frac{16}{\pi^2} \left(\frac{4}{We_c} \right)^4 \lesssim \beta h^2 \lesssim 1 \quad (7.25)$$

où la borne supérieure traduit simplement le fait que les trous ne peuvent avoir un diamètre inférieur à l'épaisseur h , tandis que la borne inférieure fait intervenir le nombre de *Weber* critique $We_c = \rho(2V)^2 d_b / \sigma$, basé sur le diamètre d_b des bourrelets et leur vitesse de rencontre $2V$, à partir duquel une nappe transverse se forme et se désintègre. On s'attend, comme mentionné plus haut, à un nombre critique d'ordre 1. Néanmoins la borne de l'équation (7.25) faisant intervenir sa puissance quatrième, il est souhaitable d'affiner l'estimation et de considérer les pré-facteurs. À notre connaissance, les seules données expérimentales disponibles concernent le cas voisin de l'impact de deux gouttes, c'est-à-dire de deux boules liquides au lieu de deux cylindres comme c'est ici le cas. Ashgriz & al [5] puis Qian & al [147] ont mesuré le nombre de *Weber* délimitant les régimes de coalescence et de séparation après impact pour différents liquides et pressions ambiantes. Lors d'une collision

frontale, ils observent que ce nombre dépend très peu de ces dernières conditions et vaut approximativement 20.

Il n'est a priori pas évident d'inférer We_c de la valeur précédente. Il semble néanmoins que l'on puisse s'attendre à une valeur supérieure. En effet, dans la configuration goutte/goutte (voir figure 7.2.3), la séparation n'intervient pas sur la nappe transverse à la direction d'approche générée immédiatement après l'impact, mais sur le ligament formé à la suite de la rétractation de cette nappe transverse. La géométrie goutte/goutte favorise donc la brisure après une oscillation complète ("extension-rétractation-extension") de la goutte réunion parce qu'elle ramène le système dans une configuration instable au sens de *Plateau-Rayleigh*. En revanche dans la configuration cylindre/cylindre qui nous concerne, une oscillation complète ne conduit pas à une forme cylindrique mais éventuellement à une nouvelle nappe (cette fois ci dans le plan initial) plus stable que la première nappe transverse. On s'attend alors à $We_c > 20$.

Dans l'exemple suivi tout au long de cette partie, nous avons pu constater par observation directe l'absence de nappe transverse. Le nombre de *Weber* typique des collisions y-vaut $We = 8(\pi^2\beta h^2)^{-1/4} \simeq 60$, qui est ainsi inférieur mais sûrement proche de la valeur critique.

Conclusion

Le problème de l'atomisation des films liquides a été abordé dans cette thèse. Sur quatre configurations expérimentales différentes les changements de forme et de topologie conduisant à la fragmentation ont été observés.

Dans chacun des cas cette évolution, et la taille λ des structures qu'elle fait apparaître, peuvent être expliquées par un mécanisme d'instabilité linéaire classique de l'interface de type *Kelvin-Helmoltz* ou *Rayleigh-Taylor* selon le cas. Le développement de ces structures conduit à la formation de ligaments liquides dont la fragmentation par une instabilité de type *Plateau-Rayleigh* produit les gouttes. La taille caractéristique de ces gouttes peut alors être déterminée simplement à partir des deux longueurs du problème ; à savoir l'épaisseur h du film et la taille λ des structures. Dans le cas présent de films se désintégrant sans source d'énergie autre que celle stockée à l'interface lors de la formation du film, les tailles des structures et des gouttes sont nécessairement plus grandes que l'épaisseur du film, et cette dernière représente donc une taille minimale du processus de fragmentation.

Au delà de la simple déformation de l'interface, l'évolution jusqu'aux gouttes implique deux types de changements de topologie : d'une part la formation d'un ou plusieurs trous à travers le film, et d'autre part la fragmentation des ligaments liquides déjà mentionnée.

Le premier demeure inexpliqué lorsque les épaisseurs sont de l'ordre du micromètre ou supérieures, comme c'est le cas pour l'éclatement des bulles d'air à la surface de l'eau. Les observations effectuées ont néanmoins permis de restreindre les possibilités ; les événements conduisant au perçage sont localisés dans un rayon de quelques épaisseurs h et sur une durée de quelques temps capillaires $\sqrt{\rho h^3 / \sigma}$. Il a aussi été montré que l'énergie cinétique d'agitation du film à petite échelle (d'ordre h) est petite devant l'énergie d'activation σh^2 attendue pour la nucléation, et ne peut expliquer celle-ci. L'hypothèse la plus probable est certainement celle d'inclusions ou impuretés présentes dans le film et favorisant la nucléation. Sa confirmation appelle des expériences où le degré de pureté de l'eau serait contrôlé. De tels expériences devront paradoxalement rendre compte du comportement très similaire des bulles d'eau de mer ou du robinet. La dernière partie montre en tout les cas que la présence de bulles peut être responsable d'une nucléation intense ; la rupture d'un film épais étant alors ramenée à celle d'un film mince par la bulle d'air occupant l'essentiel de l'épaisseur du film.

Le principe du mécanisme moteur du second changement de topologie (*Plateau-Rayleigh*) est lui connu depuis longtemps. Néanmoins pour les ligaments réels, c'est-à-dire nécessairement irréguliers, que l'on rencontre dans les expériences, la brisure

ne peut être assimilée à celle d'un cylindre liquide uniforme et infini sous peine de perdre la caractérisation essentielle du processus d'atomisation : la distribution des tailles de gouttes autour de la moyenne. Les réarrangements permanents le long d'un ligament, ou entre ligaments lorsqu'ils sont reliés par les noeuds d'un réseau comme dans la dernière partie, façonnent la dispersion des tailles de gouttes. Les preuves expérimentales sont nombreuses de ce que cette dispersion est bien décrite par une distribution *gamma*, attractrice du processus d'auto-convolution ; une justification complète de ce constat reste néanmoins à produire. Cette étape est d'autant plus cruciale, que la dispersion intrinsèque à ce dernier mécanisme est souvent prépondérante devant celle induite par la dispersion de la taille des structures elle-même.

Annexes

Annexe A

Rappels sur l'instabilité de *Rayleigh-Taylor* en couche mince

Un milieu fluide initialement au repos et de densité non homogène est susceptible de se déstabiliser lorsqu'il subit une accélération. Ainsi une interface plane entre un liquide et un gaz tend à se déformer lorsque l'accélération est dirigée vers la phase dense : le liquide. L'impossibilité de conserver plein un verre que l'on a retourné en est un exemple courant où la gravité \mathbf{g} joue le même rôle qu'une accélération opposée $-\mathbf{g}$. Cette instabilité inertielle désormais classique est connue sous le nom d'instabilité de *Rayleigh-Taylor* en hommage aux travaux de ces derniers.

La majorité des processus de fragmentation étudiés dans cette thèse invoquant ce mécanisme de déstabilisation inertielle, nous présentons ici brièvement son développement historique ainsi qu'un traitement mathématique usuel dans le cas moins classique mais plus riche de la configuration en couches minces.

1.1 Développement historique

Le phénomène est imaginé et étudié pour la première fois par Lord Rayleigh en 1883 [113]. Celui-ci traite le cas analytique de deux milieux semi-infinis, ① et ② (tels que $z_1 < z_2$), soumis à l'action de la gravité et séparés par une interface plane et sans tension de surface. Il considère l'évolution des perturbations harmoniques de la position de l'interface $\zeta = \zeta_0 e^{i(kx + \omega t)}$ soumise à l'accélération $\boldsymbol{\gamma} = \gamma \mathbf{e}_z = -g \mathbf{e}_z$ et obtient l'équation de dispersion suivante :

$$\omega^2 = \gamma k \frac{\rho_1 - \rho_2}{\rho_1 + \rho_2} \quad (\text{A.1})$$

Deux problèmes surgissent alors : l'interface est instable pour tous les modes lorsque $\gamma(\rho_2 - \rho_1) > 0$, c'est-à-dire lorsque l'accélération est dirigée vers le milieu le plus dense, et de plus les taux de croissance associés divergent pour les petites longueurs d'onde. Rayleigh, conscient de cette faiblesse, obtient une régulation sur les temps de croissance en considérant non plus un saut de densité mais un raccord continu entre les deux milieux. Pour une zone de transition située entre $z = 0$ et

$z = h$ à l'intérieur de laquelle la densité varie selon $\rho(z) = \rho_1 e^{-\beta z}$, il obtient une saturation de la pulsation pour les faibles longueurs d'onde indépendante de k et de h .

$$\lim_{kh \rightarrow \infty} \omega^2 = \gamma\beta \quad (\text{A.2})$$

La frontière entre les deux milieux est là encore instable pour tous les modes k lorsque $\beta < 0$, c'est-à-dire lorsque le gradient de densité est orienté dans la direction de l'accélération. Il n'y a donc toujours pas de mécanisme sélectionnant une longueur d'onde qui serait la plus instable, mais cette fois le taux de croissance est borné.

L'étape suivante est réalisée par Taylor en 1950 [173] qui généralise en considérant une accélération quelconque et non plus uniquement la gravité. Il décrit une couche liquide d'épaisseur finie h accélérée par une différence de pression s'exerçant sur chacune de ses faces. Il ne résout que le cas $kh \gg 1$ correspondant aux expériences menées conjointement par Lewis [104]. Dans cette limite, les deux interfaces sont découplées : l'une se déstabilise tandis que l'autre demeure plane. Taylor retrouve donc pour l'interface instable le résultat obtenu par Rayleigh en profondeur infinie.

Il faut attendre Keller et Kolodner en 1954 [90] pour qu'un ingrédient majeur soit ajouté au problème : la tension de surface σ qui stabilise les interfaces et introduit une longueur d'onde de coupure au dessus de laquelle les perturbations décroissent. Le modèle sélectionne alors une longueur d'onde la plus instable, celle dont le taux de croissance est maximal, ce qui permet des prédictions lorsque l'interface est initialement perturbée par un bruit blanc. De plus Keller et Kolodner ne se limitent pas au cas $kh \gg 1$ comme l'avait fait Taylor mais résolvent le cas plus subtil où les mouvements des deux interfaces sont couplés ce qui ralentit fortement le développement des grandes longueurs d'onde. Ils obtiennent l'équation de dispersion suivante que nous ré-établirons et détaillerons plus loin :

$$\omega^2 = k^3 \left[\coth(kh) \pm \sqrt{\operatorname{csch}^2(kh) + \frac{1}{k^4}} \right] \quad (\text{A.3})$$

Enfin Richtmyer publie en 1960 [150] une étude, réalisée en 1954 mais classée jusqu'alors, dans laquelle il traite le cas où l'accélération est fournie de façon impulsionnelle par une onde de choc atteignant un film au repos. [131].

D'autres études ont apporté des contributions notables mais elles concernent toutes, dans la lignée des travaux de Fermi et von Neumann [65], la phase de croissance non linéaire ultérieure à la sélection de modes. Nous ne nous y intéresserons pas.

1.2 Cas d'une couche mince

Dans cette section nous nous contenterons de ré-établir de façon très détaillée la relation de dispersion (A.3) établie par Keller et Kolodner.

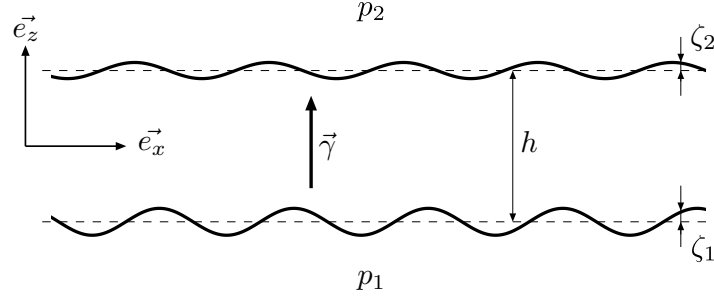


FIG. A.1 – Schéma d'une couche mince accélérée.

Considérons un film liquide de densité ρ et de tension de surface σ initialement compris entre les plans $z = \pm h/2$ (voir le schéma de la figure A.1). Il sépare le milieu environnant de densité négligeable en deux espaces semi-infinis dans lesquels règnent les pressions constantes p_1 et p_2 . Si les pressions sont différentes, le film subit l'accélération permanente γ telle que :

$$p_2 = -\rho\gamma h \quad (\text{A.4})$$

où l'on a pris $p_1 = 0$ comme référence des pressions. Cherchons l'évolution au cours du temps d'une perturbation infinitésimale quelconque de la position des interfaces, définie par les parties réelles de ζ_1 et ζ_2 . Celle-ci peut, quelle que soit sa forme, être décomposée en série de *Fourier* et l'on est donc ramené à l'étude d'une modulation harmonique. En appelant x la direction de propagation de cette modulation, il est possible de choisir $\{\zeta_{01}, \zeta_{02}\} \in \mathbb{R}^2$ tels que :

$$\left\{ \begin{array}{l} \zeta_1 = \zeta_{01} e^{i(kx + \omega t)} \\ \zeta_2 = \zeta_{02} e^{i(kx + \omega t + \psi)} \end{array} \right. \quad (\text{A.5a})$$

$$\quad (\text{A.5b})$$

ψ représente alors le déphasage entre les deux interfaces que l'on conserve comme paramètre libre.

La viscosité est négligeable aussi bien dans le liquide que dans le milieu environnant. À partir d'un écoulement infinitésimal dont on peut négliger le rotationnel, le théorème de *Kelvin* implique que ce dernier demeure nul à tout instant. En appelant ϕ le potentiel dont dérivent les vitesses, l'incompressibilité du fluide se traduit par $\Delta\phi = 0$ dont les solutions harmoniques sont :

$$\phi = (A e^{kz} + B e^{-kz}) e^{i(kx + \omega t)}, \quad \{A, B\} \in \mathbb{C}^2 \quad (\text{A.6})$$

A et B sont déterminés par les conditions aux limites du domaine liquide. La condition cinématique de continuité des vitesses à l'interface $w - u \zeta_x = \zeta_t$, où les indices x et t représentent les dérivations partielles par rapport à x et t respectivement, se linéarise en :

$$\left\{ \begin{array}{l} A e^{-\frac{kh}{2}} - B e^{\frac{kh}{2}} = \frac{i\omega}{k} \zeta_{01} \\ A e^{\frac{kh}{2}} - B e^{-\frac{kh}{2}} = \frac{i\omega}{k} \zeta_{02} e^{i\psi} \end{array} \right. \quad (\text{A.7a})$$

$$\quad (\text{A.7b})$$

et la condition dynamique d'équilibre des contraintes $[[p]] = \sigma \kappa \simeq -\sigma \zeta_{xx}$ s'écrit :

$$\begin{cases} p(-\frac{h}{2}) = \sigma \zeta_{1,xx} & \text{(A.8a)} \\ p(\frac{h}{2}) = -\rho \gamma h - \sigma \zeta_{2,xx} & \text{(A.8b)} \end{cases}$$

Enfin la pression p du liquide en tout point du film peut être reliée à l'écoulement par l'intermédiaire de l'équation de *Bernoulli*, $\phi_t + p/\rho + \gamma z = -\gamma h/2$, qui prend la forme :

$$p = -\rho \left[\gamma \left(z + \frac{h}{2} \right) + \phi_t \right] \quad \text{(A.9)}$$

Le problème est maintenant correctement posé d'un point de vue mathématique. En exprimant la pression p au niveau des interfaces, en $z = \pm h/2$, une nouvelle expression de l'équation (A.8) est obtenue :

$$\begin{cases} A e^{-\frac{kh}{2}} + B e^{\frac{kh}{2}} = \frac{\gamma + \frac{\sigma}{\rho} k^2}{i\omega} \zeta_{01} & \text{(A.10a)} \\ A e^{\frac{kh}{2}} + B e^{-\frac{kh}{2}} = \frac{\gamma - \frac{\sigma}{\rho} k^2}{i\omega} \zeta_{02} e^{i\psi} & \text{(A.10b)} \end{cases}$$

(A.7) et (A.10) forment alors un système de quatre équations à quatre inconnues B , ζ_{01} , ζ_{02} , ψ , si l'on suppose par exemple que l'amplitude et la phase de A sont connues. En adimensionnant les longueurs et les temps par $\sqrt{\sigma/\rho\gamma}$ et $(\sigma/\rho\gamma^3)^{1/4}$ respectivement, A s'exprime en fonction de ζ_{01} et ζ_{02} selon :

$$\begin{cases} A = \frac{-\omega^2 + k + k^3}{ik\omega} \frac{\zeta_{01}}{2} e^{\frac{kh}{2}} & \text{(A.11a)} \\ A = \frac{-\omega^2 + k - k^3}{ik\omega} \frac{\zeta_{02}}{2} e^{-\frac{kh}{2}} e^{i\psi} & \text{(A.11b)} \end{cases}$$

Les amplitudes ζ_{01} et ζ_{02} ayant été choisie réelles l'équation (A.11) implique $\psi = 0$ ou $\psi = \pi$, si $[0, 2\pi[$ est pris comme ensemble de définition de ψ . Dans le premier cas, $\psi = 0$, les deux interfaces ondulent en phase et l'on nomme *sinueux* le mode associé. Dans le second cas, $\psi = \pi$, les interfaces évoluent en opposition de phase et l'on parle du mode *variueux* ou *péristaltique*. De la même façon que précédemment, B s'exprime en fonction de ζ_{01} et ζ_{02} :

$$\begin{cases} B = \frac{\omega^2 + k + k^3}{ik\omega} \frac{\zeta_{01}}{2} e^{-\frac{kh}{2}} & \text{(A.12a)} \\ B = \frac{\omega^2 + k - k^3}{ik\omega} \frac{\zeta_{02}}{2} e^{\frac{kh}{2}} e^{i\psi} & \text{(A.12b)} \end{cases}$$

et les amplitudes des ondes se propageant sur chacune des interfaces sont alors dans le rapport (exprimé à partir de (A.11) et (A.12) successivement) :

$$\begin{cases} \frac{\zeta_{01}}{\zeta_{02}} = \frac{\omega^2 - k + k^3}{\omega^2 - k - k^3} e^{-\frac{kh}{2}} e^{i\psi} & \text{(A.13a)} \\ \frac{\zeta_{01}}{\zeta_{02}} = \frac{\omega^2 + k - k^3}{\omega^2 + k + k^3} e^{\frac{kh}{2}} e^{i\psi} & \text{(A.13b)} \end{cases}$$

D'où l'on tire l'équation :

$$\omega^4 - 2k^3 \coth(kh)\omega^2 + k^6 - k^2 = 0 \quad (\text{A.14})$$

que l'on résout pour obtenir la relation de dispersion suivante :

$$\omega^2 = k^3 \left[\coth(kh) \pm \sqrt{\text{csch}^2(kh) + \frac{1}{k^4}} \right] \quad (\text{A.15})$$

analogue au résultat de Keller et Kolodner.

1.3 Discussion et limites

Le mode sinueux, correspondant à la solution pour laquelle le signe \pm vaut $+$ est toujours stable. En revanche le mode variqueux, correspondant à la solution pour laquelle le signe \pm vaut $-$, est linéairement instable dès lors que l'accélération est non nulle. Il introduit en effet une modulation de l'épaisseur à laquelle est associée une modulation de l'inertie locale susceptible d'amplifier la perturbation initiale. Pour ce mode instable ω^2 est négatif pour toute valeur de k comprise entre 0 et 1, et positif partout ailleurs si l'on se limite, sans perte de généralité, aux valeurs de k positives. La longueur de coupure correspondante s'écrit alors $k_c^{-1} = \sqrt{\sigma/\rho\gamma}$ en variables dimensionnées. Cette longueur est la même que celle du problème en profondeur infinie.

L'équation (A.15) s'y ramène d'ailleurs lorsque l'accélération est suffisamment importante pour que l'épaisseur h devienne grande devant la longueur de coupure k_c^{-1} , c'est-à-dire lorsque $\sqrt{\rho\gamma/\sigma} h \gg 1$. La longueur h sort alors du problème et l'équation de dispersion et le taux de croissance maximal se résument à :

$$\omega^2 = k^3 - k \quad (\text{A.16})$$

$$\text{avec } s_m = \left(\frac{4}{27} \right)^{1/4} \text{ pour } k_m = \frac{1}{\sqrt{3}}$$

Dans la limite inverse $kh \ll 1$, la longueur de coupure n'est pas modifiée comme nous l'avons déjà souligné, mais les taux de croissance des modes les plus instables sont considérablement réduits par le confinement imposé au liquide interstitiel. L'épaisseur h rentre alors directement en compte, et pour k proche de 1 l'équation de dispersion peut se simplifier en :

$$\omega^2 = \frac{h}{2} (k^4 - 1) \quad (\text{A.17})$$

$$\text{avec } s_m \simeq \sqrt{\frac{h}{2}} \text{ pour } k_m \gtrsim \frac{h^{1/3}}{\sqrt{2}}$$

Au lieu d'une relation de dispersion présentant un maximum bien déterminé, la courbe des taux de croissance s'aplatit considérablement si bien que pour la majorité des nombres d'onde, le taux de croissance est comparable au taux de croissance maximal s_m . La figure A.3, où sont tracés les taux de croissance pour différentes valeurs de $k_c h$ illustre ce résultat.

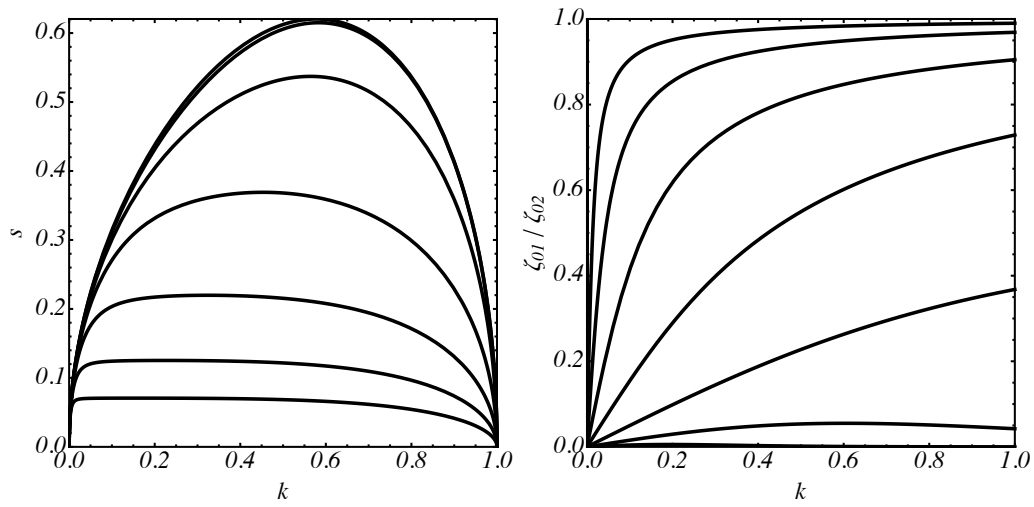


FIG. A.2 – **Gauche** : Taux de croissance adimensionné du mode variqueux pour des valeurs de $k_c h$ en progression géométrique de 10^{-2} à 10 (de bas en haut). **Droite** : Rapport des amplitudes des ondulations sur chacune des interfaces pour les mêmes valeurs de $k_c h$ (croissant de haut en bas). Le couplage est fort lorsque $k_c h \ll 1$.

Enfin lorsque l'accélération γ est nulle, on est ramené au cas des ondes présenté dans le chapitre 1. Leur équation de dispersion s'obtient en prenant la limite de l'équation (A.15) lorsque le nombre d'onde de coupure tend vers 0, c'est-à-dire en y faisant tendre k vers l'infini ; soit :

$$\frac{\omega^2}{k^2} = k [\coth(kh) \pm \operatorname{csch}(kh)] \quad (\text{A.18})$$

Annexe B

Méthodes expérimentales

Cette annexe détaille les méthodes de mesures de la tension de surface et des distributions de tailles de gouttes utilisées pour l'une ou l'autre dans chacune des quatre parties de la thèse.

2.1 Mesure de la tension de surface : méthode de la goutte pendante

Il est possible de mesurer la tension de surface d'un liquide dans l'air en observant la forme statique qu'adopte une goutte de ce liquide sous l'influence de la gravité. Seules la masse volumique ρ du liquide et la valeur de la gravité g sont alors requises pour déterminer σ . Nous avons utilisé cette méthode pour mesurer la tension de surface de notre solution de "Dreft"¹.

La disposition choisie est généralement celle d'une goutte pendante à l'extrémité d'un fin tuyau car elle offre une forte dépendance de la forme à σ et autorise ainsi une mesure précise de cette dernière. Si l'extrémité du tuyau est circulaire et disposée horizontalement, toutes les directions radiales sont équivalentes, car également perpendiculaires à \mathbf{g} , et la goutte présente une symétrie de révolution. La forme de l'interface ne dépend plus alors que de deux paramètres. Par exemple le volume de la goutte et la longueur capillaire $a = \sqrt{\sigma/\rho g}$ qui fixe l'échelle de variation de la forme et à partir de laquelle σ peut être déterminée.

La forme d'une telle goutte satisfait l'équilibre entre pression hydro-statique et pression capillaire. En appelant z la verticale ascendante dont l'origine est placée à l'extrémité basse de la goutte, l'équation de *Young-Laplace* conduit à :

$$p_0 - \rho g (z - z_0) = p_a + 2(\kappa_1 + \kappa_2) \quad (\text{B.1})$$

où p_a et p_0 sont les pressions respectivement dans l'atmosphère et dans le liquide à l'extrémité basse de la goutte, et κ_1 et κ_2 sont les courbures principales de la surface. Puisque l'on ne souhaite pas mesurer les pressions, il nous faut introduire une autre longueur que l'on puisse relier à l'inconnue p_0 . En choisissant R_0 le rayon de courbure de l'interface à l'extrémité basse de la goutte, il vient $p_0 = p_a + 2\sigma/R_0$.

¹ Voir note de bas de page 6 p. 16.

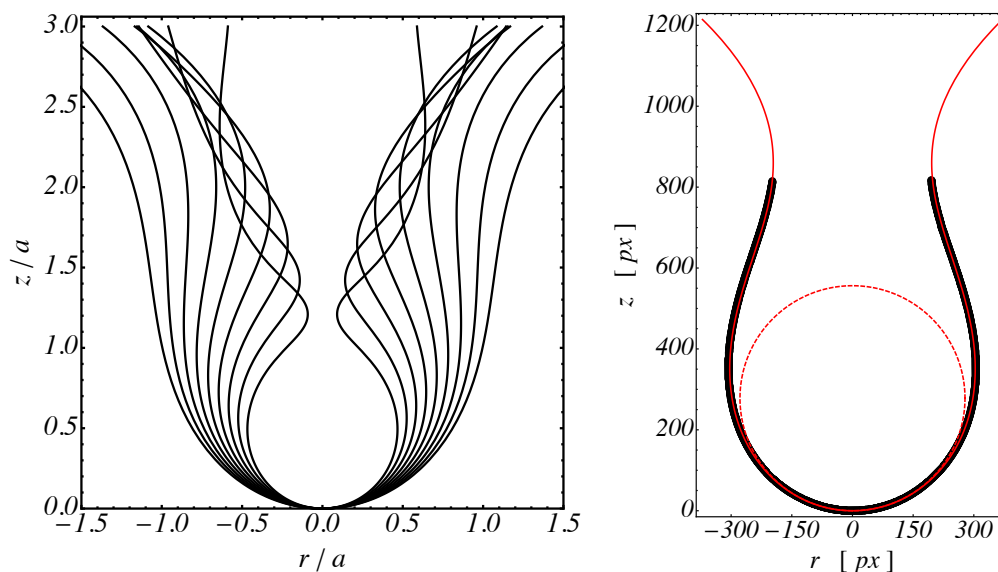


FIG. B.1 – **Gauche** : Profils de goutte pendante obtenus par intégration numérique du système (B.2) pour R_0/a variant par incrément de 0.05 entre 0.45 et 0.85. **Droite** : Contour d'une goutte d'eau extrait d'une photographie (•) et son fit par une solution du système (B.2) (—). Le cercle en pointillé rouges (---) est de rayon R_0 . L'échelle spatiale est la dimension correspondant à un pixel de l'image.

En fonction de la distance r du profil générateur de la surface de la goutte à l'axe vertical, de l'abscisse curviligne s de ce profil et de l'angle θ qu'il forme localement avec l'horizontale, l'équation (B.1) prend la forme :

$$\frac{\partial \theta}{\partial s} = \frac{2}{R_0} - \frac{\sin \theta}{r} - \frac{z}{a^2}, \quad \frac{\partial r}{\partial s} = \cos \theta, \quad \frac{\partial z}{\partial s} = \sin \theta \quad (\text{B.2})$$

que l'on résout avec la condition $\theta = r = z = 0$ à l'extrémité basse de la goutte, en $s = 0$. La figure B.1 montre quelques profils de goutte pendante obtenus par intégration numérique du système (B.2) pour différentes valeurs de R_0/a , ainsi que la comparaison avec un profil expérimental typique. Le profil est extrait d'une image numérique calibrée de la goutte. L'ajustement avec un profil solution de (B.2) fournit une mesure de a et donc de σ .

La méthode a été utilisée pour mesurer la tension de surface de la solution de "Dreft" en concentration supérieure à la c_{MC} ainsi que pour mesurer celle de l'eau du robinet. À 25°C les valeurs mesurées sont les suivantes :

- sur 10 gouttes de solution de "Dreft"², la moyenne est $\langle \sigma \rangle = 24.7 \text{ mN.m}^{-1}$ et l'écart type relatif de 1.1%,
- sur 16 gouttes d'eau du robinet, la moyenne est $\langle \sigma \rangle = 71.2 \text{ mN.m}^{-1}$ et l'écart type relatif de 0.6%.

En ajoutant les incertitude systématiques liées au grossissement et à la détection du contour, on peut estimer que ces valeurs sont fiables à $\pm 1 \text{ mN.m}^{-1}$.

² Voir note de bas de page 6 p. 16.

2.2 Traitement des images

Dans les travaux présentés, les images numériques ont souvent constitué le seul moyen d'observation et de quantification des phénomènes étudiés, que ce soit une conséquence de la rapidité des phénomènes, de la quantité d'information à traiter ou de la petitesse des déplacements par exemple. Si l'essentiel de la mesure réside bien entendu dans le choix et la qualité de la prise de vue, un traitement ultérieur des images que nous présentons ici s'avère parfois indispensable à la quantification. Dans cette section nous introduisons une des méthodes de traitement des images utilisée à travers un exemple : une mesure des diamètres des gouttes issues d'un processus de fragmentation.

Une image brute typique, telle que délivrée par le capteur de la caméra, est présentée en haut à gauche de la figure B.2. Elle est traitée dans le but de mesurer la section apparente de gouttes isolées, situées dans le plan focal (afin que le grossissement, et donc la taille absolue, soient connus) et surtout sans biais relatif à la taille de la goutte détectée pour ne pas fausser la distribution. Le déroulement du traitement est le suivant :

- la première étape consiste à s'affranchir des inhomogénéités de la luminosité ambiante, particulièrement marqués sur cet exemple. Pour ce faire, la différence à une image de référence prise en l'absence de gouttes est calculée. On obtient alors l'image B ,
- les gradients d'intensité sont ensuite détectés : un algorithme de *Sobel* est appliqué à l'image B dont le résultat est l'image C^3 ,
- les gradients les plus forts, correspondant aux gouttes les plus nettes, sont sélectionnés par seuillage de l'image C pour obtenir une image binaire D ,
- les contours fermés sont détectés et remplis pour former des surfaces connexes sur l'image E ,
- enfin le rapport *aire/périmètre* de ces surfaces est utilisé pour éliminer celles qui résultent de la superposition de plusieurs gouttes.

Les gouttes utilisées pour la mesure sont les gouttes restantes à l'issue de ce traitement ; elles sont représentées sur l'image F . Leur diamètre d est alors déterminé en supposant la sphéricité des gouttes selon :

$$d = \sqrt{\frac{4\mathcal{A}}{\pi}} \quad (\text{B.3})$$

où \mathcal{A} est l'aire de la surface mesurée sur l'image F .

³ L'algorithme de *Sobel* utilise le noyau $N = [(-1 \ -2 \ -1); (0 \ 0 \ 0); (1 \ 2 \ 1)]$. Une première image C_V est obtenue par convolution de N et B , et une seconde, C_H , par convolution de N^T et B . Elles "représentent" respectivement les gradients verticaux et horizontaux d'intensité. L'image C est alors obtenue en calculant chaque pixel selon $C_{ij} = (C_{V,ij}^2 + C_{H,ij}^2)^{1/2}$, afin de représenter les gradients dans toutes les directions. On notera que cet algorithme présente une légère anisotropie de détection.

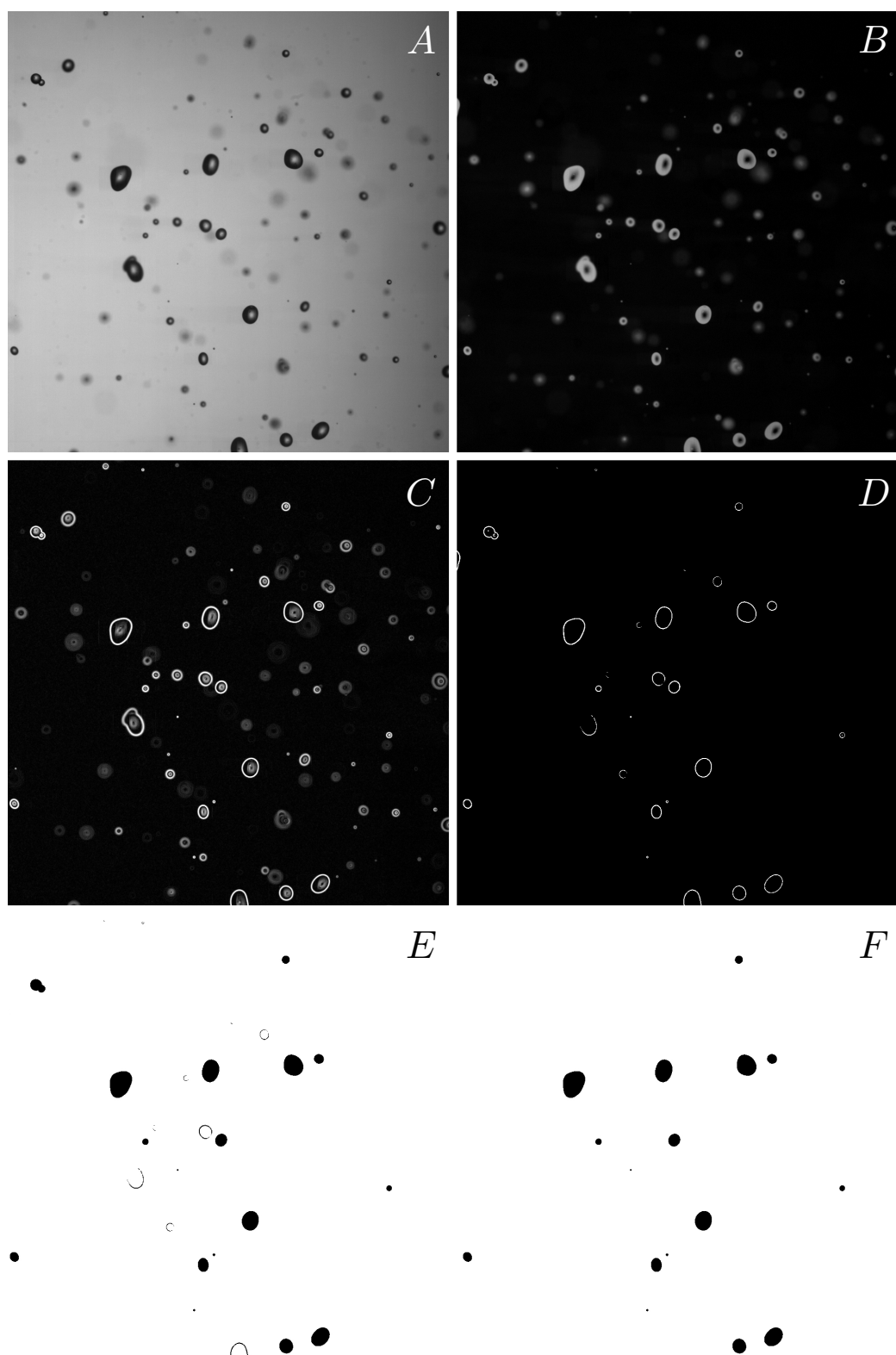


FIG. B.2 – De gauche à droite et de haut en bas : succession des étapes de traitement depuis l'image brute jusqu'à l'image binarisée sur laquelle les sections apparentes des gouttes sont mesurées.

Annexe C

Distribution des distances des ligaments aux lieux de nucléation

Dans cette annexe nous établissons la distribution des diamètres des ligaments formés par la désintégration d'une nappe liquide dans le cas simplifié où la nucléation est concentrée sur un temps très court devant la durée de croissance des trous. Ce résultat est appliqué directement dans la partie IV afin de déterminer la population des tailles de gouttes générée par un procédé d'*atomisation effervescente*.

Nous considérons ainsi la limite dans laquelle l'ensemble \mathcal{P} des lieux de nucléation apparaît à $t = 0$ sur la nappe assimilée à un espace bi-dimensionnel infini et homogène. Le phénomène de nucléation est considéré *Poissonien* vis-à-vis de l'espace, c'est-à-dire que la probabilité qu'un trou se forme sur une portion de nappe d'aire infinitésimale $d\Sigma$ ne dépend que de $d\Sigma$ et nous la noterons $\beta d\Sigma$.

Les trous croissent tous à la même vitesse depuis le même instant initial et se rencontrent donc à mi-distance des lieux de nucléation voisins. Le réseau de ligaments est alors l'ensemble des frontières \mathcal{V} des cellules de *Voronoi* définies à partir des points de \mathcal{P} (voir figure 7.7). Un point M quelconque de l'espace appartient à l'une de ces frontières si et seulement si il est à égale distance de deux points $\{P_1, P_2\} \in \mathcal{P}$ et qu'aucun autre point de \mathcal{P} n'est plus proche, c'est-à-dire n'est inclus dans le disque $\mathcal{D}(M, r)$ de rayon $r = \|\mathbf{MP}_1\|$ centré en M (voir figure C.1).

Considérons maintenant un point quelconque de \mathcal{P} que nous choisissons pour origine et nommons O . La probabilité qu'il existe un autre point de \mathcal{P} à une distance comprise entre $2l$ et $2(l + dl)$ de O est :

$$Pr(P \in \mathcal{P}) = 8\pi l \beta dl \quad (\text{C.1})$$

Supposons que ce point existe et notons le P . Choisissons le repère $(\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y)$ du plan de façon à ce que \mathbf{e}_x coïncide avec la direction \mathbf{OP} . En notant α_i l'angle formé par \mathbf{OM}_i avec \mathbf{e}_x (voir figure C.1), la probabilité que deux points M_1 et M_2 , situés sur la médiatrice \mathcal{M} de OP et tels que $\alpha_1 \leq \alpha_2$, appartiennent à \mathcal{V} s'écrit :

$$Pr(\{M_1, M_2\} \in \mathcal{V}^2 | \{M_1, M_2, P\} \in \mathcal{M}^2 \times \mathcal{P}) = e^{-\beta \Sigma(l, \alpha_1, \alpha_2)} \quad (\text{C.2})$$

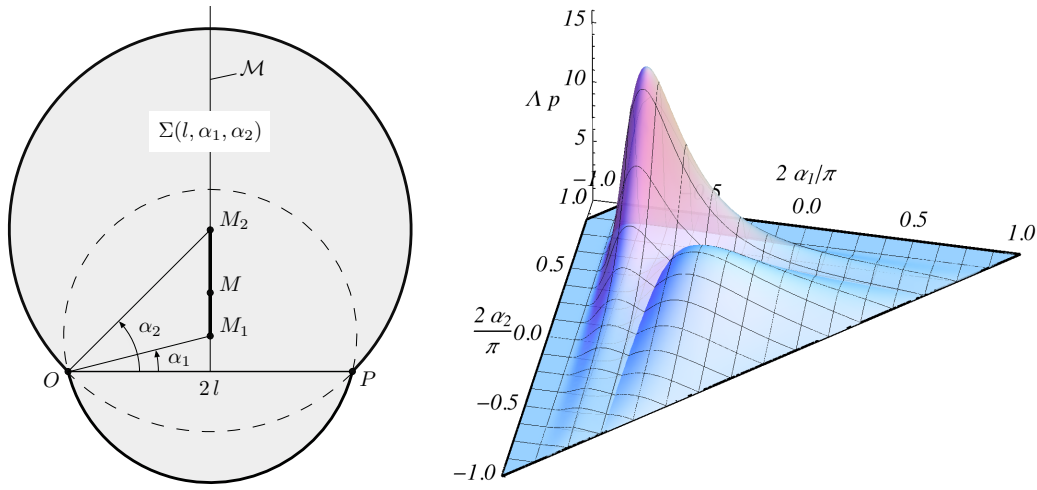


FIG. C.1 – **Gauche** : O et P sont deux lieux de nucléation appartenant à \mathcal{P} . Le segment M_1M_2 situé sur la médiatrice \mathcal{M} de OP appartient au réseau de Voronoï \mathcal{V} si et seulement si la surface grisée, réunion des deux disques centrés en M_1 et M_2 passant par O (et donc P), est vide de lieux de nucléation. **Droite** : $\Lambda p(\alpha_1, \alpha_2, l)$ définie à l'équation (C.5) en fonction de α_1 et α_2 pour $l = 3/8 \beta^{-1/2}$ (la surface présentant un maximum prononcé en $\alpha_2 = -\alpha_1 \simeq \pi/8$) et $l = 3/4 \beta^{-1/2}$.

où $\Sigma(l, \alpha_1, \alpha_2)$ est l'aire de l'union des disques $\mathcal{D}(M_1, \|M_1O\|)$ et $\mathcal{D}(M_2, \|M_2O\|)$, grisée sur la figure C.1, et s'écrit :

$$\Sigma(l, \alpha_1, \alpha_2) = \left(\frac{l}{\cos \alpha_1} \right)^2 \left[\frac{\pi}{2} - \alpha_1 - \cos \alpha_1 \sin \alpha_1 \right] + \left(\frac{l}{\cos \alpha_2} \right)^2 \left[\frac{\pi}{2} + \alpha_2 + \cos \alpha_2 \sin \alpha_2 \right] \quad (\text{C.3})$$

valide uniquement dans le cadre de la convention $\alpha_1 \leq \alpha_2$ adoptée.

Si deux points M_1 et M_2 de la médiatrice appartiennent au réseau \mathcal{V} alors tous les points situés entre eux aussi, c'est-à-dire si $\{M_1, M_2\} \in (\mathcal{M} \cap \mathcal{V})^2$ alors tout point $M \in \mathcal{M}$ tel que $\alpha_1 \leq \alpha \leq \alpha_2$ appartient à \mathcal{V} . La frontière $\mathcal{M} \cap \mathcal{V}$ commune à O et P est donc soit vide soit un segment ininterrompu et la probabilité (C.2) exprime alors non seulement le fait que $\{M_1, M_2\} \in \mathcal{V}^2$ mais aussi que le segment entier $M_1M_2 \subset \mathcal{V}$. Par dérivation de (C.2), il est alors immédiat d'exprimer la densité de probabilité $p(\alpha_1, \alpha_2, l)$ que M_1 et M_2 soient les extrémités de la frontière commune $\mathcal{M} \cap \mathcal{V}$ (c'est-à-dire des sommets du diagramme de Voronoï) :

$$p'(\alpha_1, \alpha_2, l) = -\frac{\partial^2}{\partial \alpha_1 \partial \alpha_2} \left[e^{-\beta \Sigma(l, \alpha_1, \alpha_2)} \right] \quad (\text{C.4})$$

Enfin en prenant en compte la densité de probabilité (C.1) qu'il existe réellement un point P à une distance l , on construit l'espérance $p(\alpha_1, \alpha_2, l)$ que la frontière de la cellule possède un segment situé à une distance l et dont les extrémités sont définies par le couple $\{\alpha_1, \alpha_2\}$:

$$p(\alpha_1, \alpha_2, l) = 8\pi l \beta \times p'(\alpha_1, \alpha_2, l) \quad (\text{C.5})$$

Si $M_1 M_2 = \mathcal{M} \cap \mathcal{V}$, la longueur de la frontière commune s'écrit $\Lambda = l(\tan \alpha_2 - \tan \alpha_1)$. La figure C.1 représente $\Lambda p(\alpha_1, \alpha_2, l)$ pour deux valeurs de $l\beta^{1/2}$.

L'intégrale de la densité (C.5) sur tout l'espace donne l'espérance du nombre de couples $\{M_1, M_2\}$ pour notre cellule représentative "centrée" en O , qui est aussi le nombre moyen de cotés N d'une cellule quelconque :

$$\langle N \rangle = \int_0^\infty \int_{-\frac{\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} \int_{\alpha_1}^{\frac{\pi}{2}} p(\alpha_1, \alpha_2, l) d\alpha_2 d\alpha_1 dl \quad (\text{C.6})$$

L'intégration *numérique* donne $\langle N \rangle = 6$, comme attendu de la limite à grand nombre de cellules du théorème de *Descartes-Euler* reliant le nombre total de faces, d'arrêtes et de sommets d'un pavage du plan.

Le périmètre moyen $\langle P \rangle$ s'écrit lui :

$$\langle P \rangle = \int_0^\infty \int_{-\frac{\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} \int_{\alpha_1}^{\frac{\pi}{2}} l(\tan \alpha_2 - \tan \alpha_1) p(\alpha_1, \alpha_2, l) d\alpha_2 d\alpha_1 dl \quad (\text{C.7})$$

dont l'intégration *numérique* donne $\langle P \rangle = 4\beta^{-1/2}$. La longueur moyenne d'un côté vaut alors $\langle \Lambda \rangle = \langle P \rangle / N = 2/3 \beta^{-1/2}$.

Nous cherchons ici à déterminer les diamètres des ligaments. Or les ligaments se situent sur la médiatrice des lieux de nucléation dont ils sont issus, et pour une nappe d'épaisseur uniforme leur diamètre d_l ne dépend que de la distance l de la médiatrice à ces deux lieux selon $d_l = \sqrt{4hl/\pi}$ (voir figure 7.7). La distribution des diamètres d_l se déduit donc directement de celle des distances l des frontières au centre de leur cellule.

Cette dernière s'exprime à partir de l'espérance à l fixé de Λ (par unité de l); c'est-à-dire la portion moyenne δP du périmètre d'une cellule située à une distance comprise entre l et $l + dl$ de son lieu de nucléation :

$$\delta P(l) = \int_{-\frac{\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} \int_{\alpha_1}^{\frac{\pi}{2}} l(\tan \alpha_2 - \tan \alpha_1) p(\alpha_1, \alpha_2, l) d\alpha_2 d\alpha_1 \quad (\text{C.8})$$

Il s'agit du volume délimité par la nappe représentée sur la figure C.1. La densité de probabilité $q(l)$ de la distance l des portions de ligaments au centre de leur cellule est alors :

$$q(l) = \frac{\delta P}{\langle P \rangle} \quad (\text{C.9})$$

dont l'espérance vaut :

$$\langle l \rangle = \int_0^\infty l q(l) dl = \frac{\beta^{-1/2}}{2} \quad (\text{C.10})$$

La densité de probabilité $q(l)$, *obtenue par intégration numérique* de l'expression (C.9), est représentée sur la figure C.2. Elle y est comparée à une distribution de *Rayleigh* normée définie par :

$$\tilde{r}(x) = \frac{\pi}{2} x e^{-\frac{\pi x^2}{4}} \quad (\text{C.11})$$

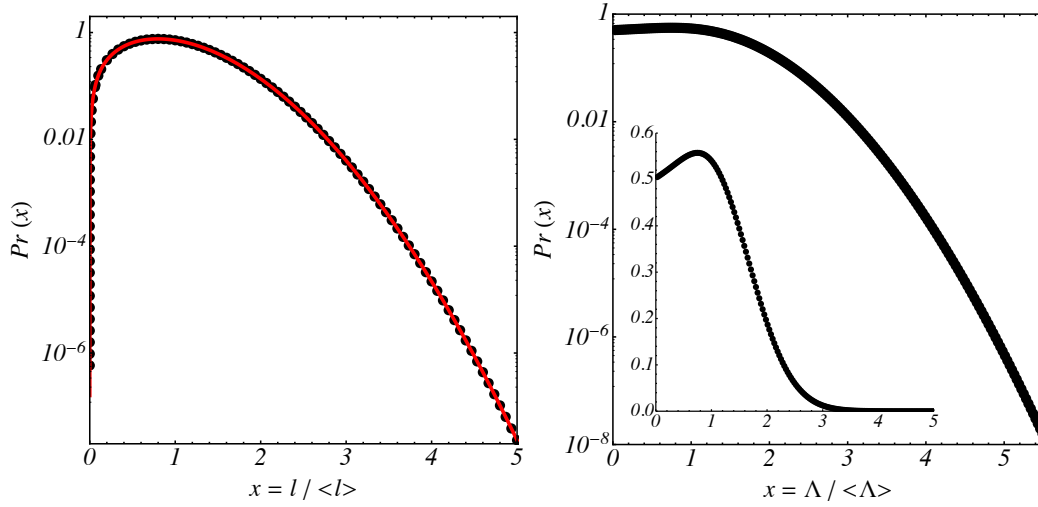


FIG. C.2 – **Gauche** : Densité de probabilité normée $\tilde{q}(l)$ obtenue par intégration numérique de (C.9) (●) et distribution de Rayleigh explicitée en (C.11) (—). **Droite** : Densité de probabilité normée de la longueur Λ des côtés des cellules obtenue par intégration numérique de (C.12).

Les deux courbes coïncident, et bien que nous ne parvenions pas à établir analytiquement le résultat nous considérons pour l'étude des distributions de gouttes qu'elles sont identiques.

Ce résultat est à notre connaissance nouveau. Il est directement utile dans cette étude puisqu'il engendre la distribution des tailles de ligaments, mais plus généralement il est susceptible d'être utile dans tous les systèmes où une substance se concentre à la périphérie des cellules : on pense notamment aux divers composés qui se retrouve préférentiellement aux joints de grains des domaines de solidification. Il est enfin surprenant qu'il coïncide avec une forme analytique aussi simple si l'on considère l'absence de résultats exacts sur les statistiques des cellules de *Voronoi* ; notamment sur les distributions de l'aire des cellules, et du nombre et de la longueur des côtés [155].

De la même façon il est possible d'exprimer la distribution des longueurs Λ des cotés :

$$s(\Lambda) = \frac{1}{\langle N \rangle} \int_{-\frac{\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} \int_{\alpha_1}^{\frac{\pi}{2}} \frac{1}{\tan \alpha_2 - \tan \alpha_1} p(\alpha_1, \alpha_2, \frac{\Lambda}{\tan \alpha_2 - \tan \alpha_1}) d\alpha_2 d\alpha_1 \quad (\text{C.12})$$

Cette fonction de densité de probabilité obtenue par *intégration numérique* est représentée à titre indicatif sur sur la figure C.2. Nous ne l'utilisons pas.

Références bibliographiques

- [1] J. Aitken. Dust, Fog, and Clouds. *Nature* **23** : 384–385 (1881). [95](#)
- [2] Y. Amarouchene and H. Kellay. Batchelor Scaling in Fast-Flowing Soap Films. *Phys. Rev. Lett.* **93** : 214504(4) (2004). [95](#)
- [3] E. L. Andreas, J. B. Edson, E. C. Monahan, M. P. Rouault, and S. D. Smith. The spray contribution to net evaporation from the sea : a review of recent progress. *Boundary Layer Meteorol.* **72** : 3–52 (1995). [95](#), [135](#)
- [4] A. Aradian, E. Raphaël, and P. G. de Gennes. "Marginal Pinching" in soap films. *Europhys. Lett.* **55** : 834–840 (2001). [23](#), [93](#), [95](#)
- [5] N. Ashgriz and J. Y. Poo. Coalescence and separation in binary collisions of liquid drops. *J. Fluid Mech.* **221** : 183–204 (1990). [159](#)
- [6] M. Avrami. Kinetics of Phase Change. I General Theory. *J. Chem. Phys.* **7** : 1103–1112 (1939). [142](#), [151](#)
- [7] M. Avrami. Kinetics of Phase Change. II Transformation-Time Relations for Random Distribution of Nuclei. *J. Chem. Phys.* **8** : 212–224 (1940). [151](#)
- [8] M. Avrami. Kinetics of Phase Change. III Granulation, Phase Change, and Microstructure. *J. Chem. Phys.* **9** : 177–184 (1941). [151](#)
- [9] H. Bénard. Les tourbillons cellulaires dans une nappe liquide. *Rev. Gen. Sci. pures et appl.* **11** : 1261–71,1309–1328 (1900). [26](#)
- [10] H. Bénard. Les tourbillons cellulaires dans une nappe liquide transportant de la chaleur par convection en régime permanent. *Ann. de chim. Phys.* **23** : 62–144 (1901). [26](#)
- [11] G. C. Benson and R. Shuttleworth. The Surface Energy of Small Nuclei. *J. Phys. Chem.* **19** : 130–131 (1951). [12](#), [22](#)
- [12] V. Bergeron. Forces and structure in thin soap films. *J. Phys. Condens. Matter* **11** : R215–R238 (1999). [22](#), [26](#)
- [13] D. Bernoulli. Theoremata de oscillationibus corporum filo flexili connexorum et catenae verticaliter suspense. *Comm. Acad. Sci. Imp. Petrop.* **6** : 108–122 (1738). [53](#)
- [14] J. C. Bird, R. de Ruiter, L. Courbin, and H. A. Stone. Daughter bubble cascades produced by folding of ruptured thin films. *Nature* **465** : 759–762 (2010). [95](#)
- [15] D. Blanchard. *The electrification of the atmosphere by particles from bubbles in the sea*. Ph.D. thesis, Woods Hole Oceanographic Institution (1963). [95](#)

- [16] D. C. Blanchard, H. S. Bilofsky, and W. B. Bridgman. The Effervescence of Ocean Surf. *J. Chem. Educ.* **49** : 29–30 (1972). [93](#), [95](#)
- [17] D. C. Blanchard and L. D. Sysdek. Water-to-Air Transfer and Enrichment of Bacteria in Drops from Bursting Bubbles. *Appl. Environ. Microbiol.* **43** : 1001–1005 (1982). [93](#)
- [18] D. C. Blanchard and L. D. Sysdek. Film drop production as a function of bubble size. *J. Geophys. Res.* **93** : 3649–3654 (1988). [95](#), [135](#)
- [19] N. Bohr. Determination of the Surface-Tension of Water by the Method of Jet Vibration. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* **209** : 281–317 (1909). [19](#), [20](#), [147](#)
- [20] W. N. Bond. The surface tension of a moving water sheet. *Proc. Phys. Soc.* **47** : 549–558 (1935). [63](#)
- [21] W. N. Bond and H. O. Puls. The change of surface tension with time. *Phil. Mag.* **24** : 864–888 (1937). [12](#), [20](#), [63](#)
- [22] H. Bouasse. *Capillarité*. Delagrave, Paris (1924). [53](#)
- [23] M. Bouchiat and J. Meunier. Spectre des fluctuations thermiques de la surface libre d'un liquide simple. *J. Physique* **32** : 561–571 (1971). [24](#), [95](#)
- [24] J. Boussinesq. Théories des expériences de Savart, sur la forme que prend une veine liquide après s'être choquée contre un plan circulaire I. *C. R. Acad. Sci. Paris* **69** : 45–48 (1869). [67](#)
- [25] J. Boussinesq. Théories des expériences de Savart, sur la forme que prend une veine liquide après s'être choquée contre un plan circulaire II. *C. R. Acad. Sci. Paris* **69** : 128–131 (1869). [67](#)
- [26] C. V. Boys. *Soap-Bubbles their Colours and the Forces which Mould them*. Society for Promoting Christian Knowledge, 2nd edn. (1916). [13](#), [53](#)
- [27] N. Bremond, C. Clanet, and E. Villermaux. Atomization of undulating liquid sheets. *J. Fluid Mech.* **585** : 421–456 (2007). [40](#), [53](#), [88](#), [145](#)
- [28] N. Bremond and E. Villermaux. Bursting Thin Liquid Films. *J. Fluid Mech.* **524** : 121–130 (2005). [53](#)
- [29] N. Bremond and E. Villermaux. Atomization by Jet Impact. *J. Fluid Mech.* **549** : 273–306 (2006). [36](#), [40](#), [157](#)
- [30] M. Brenner and D. Gueyffier. On the Bursting of Viscous Films. *Phys. Fluids* **11** : 737–739 (1999). [33](#), [53](#)
- [31] C. J. Beward and P. D. Howell. The drainage of a foam lamella. *J. Fluid Mech.* **458** : 379–406 (2002). [95](#)
- [32] R. Bruinsma. Theory of hydrodynamic convection in soap films. *Physica A* **213** : 59–76 (1995). [23](#), [95](#)
- [33] P. Brunet, C. Clanet, and L. Limat. Transonic liquid bells. *Phys. Fluids* **16** : 2668–2678 (2004). [63](#), [78](#)
- [34] R. Buckingham and J. W. Bush. Fluid Polygons. *Phys. Fluids* **13** : S10 (2001). [63](#)
- [35] L. Bull. Rupture d'un film de savon par un projectile. Environ 1500 images / seconde. Stereoscopic Movie - Institut E.-J. Marey (1904). [93](#), [95](#)

- [36] J. W. Bush and A. E. Hasha. On the collision of laminar jets : fluid chains and fishbones. *J. Fluid Mech.* **511** : 285–310 (2004). [36](#)
- [37] V. Casteletto, I. Cantat, D. Sarker, R. Bausch, D. Bonn, and J. Meunier. Stability of Soap Films : Hysteresis and Nucleation of Black Films. *Phys. Rev. Lett.* **90** : 048 302–(4) (2003). [24](#), [25](#), [95](#)
- [38] R. J. Cipriano and D. C. Blanchard. Bubble and Aerosols Spectra Produced by a Laboratory 'Breaking Wave'. *J. Geophys. Res.* **86** : 8085–8092 (1981). [93](#)
- [39] R. J. Cipriano, D. C. Blanchard, A. W. Hogan, and G. G. Lala. On the Production of Aitken Nuclei from Breaking Waves and Their Role in the Atmosphere. *J. Atmos. Sci.* **40** : 469–479 (1983). [93](#)
- [40] C. Clanet. Dynamics and stability of water bells. *J. Fluid Mech.* **430** : 111–147 (2001). [63](#), [65](#), [67](#), [68](#), [69](#)
- [41] C. Clanet. Waterbells and Liquid Sheets. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **39** : 469–496 (2007). [68](#), [69](#)
- [42] C. Clanet and E. Villermaux. Life of a smooth liquid sheet. *J. Fluid Mech.* **462** : 307–340 (2002). [36](#)
- [43] P. Clay. The mechanism of emulsion formation in turbulent flow. I. Experimental part. *Proc. R. Acad. Sci. Amsterdam* **43** : 852–865 (1940). [145](#)
- [44] M. Coantic. Mass transfert across the ocean-air interface : small scale hydrodynamic and aerodynamic mechanisms. *Phys. Chem. Hydro.* **1** : 249–279 (1980). [95](#)
- [45] Y. Couder. Two-dimensional grid turbulence in a thin liquid film. *J. Physique Lett.* **45** : L353–L360 (1984). [23](#)
- [46] Y. Couder, J. Chomaz, and M. Rabaud. On the Hydrodynamics of Soap Films. *Physica D* **37** : 384–405 (1989). [14](#), [19](#)
- [47] Y. Couder, E. Fort, C. H. Gautier, and A. Boudaoud. From Bouncing to Floating : Noncoalescence of Drops on a Fluid Bath. *Phys. Rev. Lett.* **94** : 177 801–(4) (2005). [22](#), [95](#)
- [48] G. D. Crapper, N. Dombrowski, W. P. Jepson, and G. A. D. Pyott. A note on the growth of Kelvin-Helmholtz waves on thin liquid sheets. *J. Fluid Mech.* **57** : 671–672 (1973). [40](#)
- [49] F. E. C. Culick. Comments on a ruptured soap film. *J. Appl. Phys.* **31** : 1128 (1960). [29](#), [34](#), [40](#), [53](#), [95](#)
- [50] J. T. Davies and E. K. Rideal. *Interfacial Phenomena*. Academic Press, 2nd edn. (1963). [17](#)
- [51] J. H. de Boer. *The Dynamical Character of Adsorption*. Clarendon Press, Oxford (1953). [16](#)
- [52] P. G. de Gennes. Mechanics of soft interfaces. *Faraday Discuss.* **104** : 1–8 (1996). [40](#)
- [53] P. G. de Gennes. "Young" Soap Films. *Langmuir* **17** : 2416–2419 (2001). [22](#), [95](#)

- [54] G. B. Deane and D. Stokes. Scale dependence of bubble creation mechanisms in breaking waves. *Nature* **418** : 839–844 (2002). [94](#), [95](#), [135](#)
- [55] G. Debrégeas, P. G. de Gennes, and F. Brochard-Wyart. The Life and Death of "Bare" Viscous Bubbles. *Science* **279** : 1704–1707 (1998). [22](#), [95](#)
- [56] G. Debrégeas, P. Martin, and F. Brochard-Wyart. Viscous Bursting of Suspended Films. *Phys. Rev. Lett.* **75** : 3886–3889 (1995). [33](#)
- [57] B. V. Derjaguin, N. V. Churaev, and V. M. Muller. *Surface Forces*. Plenum, New York (1987). [22](#)
- [58] N. Dombrowski and R. P. Fraser. A photographic investigation into the desintegration of liquid sheets. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* **247** : 101–130 (1954). [8](#), [141](#)
- [59] W. Drenckhan. *Stability and motion of Foams and Films in confined Geometries*. Ph.D. thesis, Univ. Dublin Trinity College (2005). [16](#)
- [60] A. Dupré. Théorie mécanique de la chaleur. *Ann. de chim. Phys.* **11** : 194 (1867). [34](#), [40](#), [53](#)
- [61] A. Dupré. *Théorie mécanique de la chaleur*. Gauthiers-Villars, Paris (1869). [95](#)
- [62] J. Eggers and E. Villermaux. Physics of liquid jets. *Rep. Prog. Phys.* **71** : 36 601 (2008). [40](#), [95](#)
- [63] L. J. Evers, S. Y. Shulepov, and G. Frens. Rupture of Thin Liquid Films from Newtonian and Viscoelastic Liquids. *Faraday Disc.* **104** : 335–344 (1996). [29](#)
- [64] M. Faraday. *A course of six lectures on the chemical history of a candle*. Royal Society (Copyright 1988 Chicago Review Press) (1861). [95](#)
- [65] E. Fermi and J. von Neumann. Taylor instability of incompressible liquids. Tech. rep., Atomic Energy Commission 2979 (1955). [ii](#)
- [66] A. T. Florence and G. Frens. Aureole Profile in Bursting Soap Films. Surface Tension and Surface Relaxation in Rapidly Compressed Monolayers. *J. Phys. Chem.* **76** : 3024–29 (1972). [53](#)
- [67] R. Fowler and E. A. Guggenheim. *Statistical Thermodynamics*. Cambridge University Press, UK (1952). [40](#)
- [68] S. Frankel and K. Mysels. The Bursting of Soap Films. II. Theoretical Considerations. *J. Phys. Chem.* **73** : 3028–3038 (1969). [40](#), [53](#)
- [69] G. Frens. Aerodynamic Drag on Bursting Bubbles. *J. Phys. Chem.* **78** : 1949–53 (1974). [53](#)
- [70] A. Frumkin. On a Simple Method of Testing the Gibbs Concepts. *Z Phys. Chem* **116** : 498 (1925). [16](#)
- [71] J. M. Fullana and S. Zaleski. Stability of a growing end rim in a liquid sheet of uniform thickness. *Phys. Fluids* **11** : 952–954 (1999). [36](#)
- [72] J. W. Gibbs. On the Equilibrium of Heterogeneous Substances. *Trans. Conn. Acad.* **III** : 108–248, 343–524 (1878). [18](#)
- [73] J. W. Gibbs. *The collected works*. Longmans and Green, New-York (1928). [16](#)

- [74] O. Greffier, Y. Amarouchene, and H. Kellay. Thickness Fluctuations in Turbulent Soap Films. *Phys. Rev. Lett.* **88** : 194 101(4) (2002). [23](#)
- [75] G. Hagen. Über die Oberfläche der Flüssigkeiten. *Ann. Poggendorf* **67** : 1–152 (1846). [19](#), [95](#)
- [76] W. W. Hagerty and J. F. Shea. A Study of the Stability of Plane Fluid Sheets. *J. Appl. Mech.* **22** : 509–514 (1955). [40](#)
- [77] F. Hauksbee. *Expériences Physico-Mécaniques sur Différens Sujets, 2nde partie*. C. A. Jombert, traduction M. de Brémond, 1765 edn. (1709). [12](#)
- [78] T. L. Hill. *An Introduction to Statistical Thermodynamics*. Addison-Wesley (1960). [16](#)
- [79] J. Hinze. Fundamentals of the Hydrodynamic Mechanism of Splitting in Dispersion Processes. *AIChE J.* **1** : 289–295 (1949). [145](#)
- [80] F. L. Hopwood. Water Bells. *Proc. Phys. Soc. B* **65** : 2–5 (1952). [63](#), [69](#)
- [81] P. D. Howell. The draining of a two dimensional bubble. *J. Eng. Math.* **35** : 251–272 (1999). [23](#), [95](#)
- [82] P. D. Howell and H. A. Stone. On the absence of marginal pinching in thin free films. *Eur. J. Appl. Math.* **16** : 569–582 (2005). [23](#)
- [83] J. C. P. Huang. The break-up of axisymmetric liquid sheets. *J. Fluid Mech.* **43** : 305–319 (1970). [40](#)
- [84] C. Isenberg. *The Science of Soap Films and Soap Bubbles*. Dover Publications, New York, 2nd edn. (1978). [40](#)
- [85] J. Israelachvili. *Intermolecular & Surface Forces*. Academic Press, 2nd edn. (1991). [16](#)
- [86] W. C. Jacobs. Preliminary reports on the study of atmospheric chlorides. *Mon. Weather Rev.* **65** : 147–151 (1937). [93](#), [95](#)
- [87] W. A. Johnson and R. F. Mehl. Reaction Kinetics in Processes of Nucleation and Growth. *Trans. A.I.M.E.E* **135** : 416–443 (1939). [142](#), [150](#), [154](#)
- [88] J. Jurin. An Account of Some Experiments Shown before the Royal Society; With an Enquiry into the Cause of the Ascent and Suspension of Water in Capillary Tubes. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* **30** : 739–747 (1719). [12](#)
- [89] H. Kellay, X. L. Wu, and W. I. Goldburg. Experiments with Turbulent Soap Films. *Phys. Rev. Lett.* **74** : 3975(4) (1995). [23](#), [95](#)
- [90] J. B. Keller and I. Kolodner. Instability of Liquid Surfaces and the Formation of Drops. *J. Appl. Phys.* **25** : 918–921 (1954). [ii](#)
- [91] J. B. Keller and M. Miksis. Surface Tension Driven Flows. *J. Appl. Math.* **43** : 268–277 (1983). [53](#)
- [92] J. G. Kirkwood and F. P. Buff. The Statistical Mechanical Theory of Surface Tension. *J. Phys. Chem.* **17** : 338–343 (1949). [22](#)
- [93] F. H. Knelman, N. Dombrowski, and D. M. Newitt. Mechanism of the Bursting of Bubbles. *Nature* **173** : 261 (1954). [93](#), [95](#)
- [94] A. Kolmogorov. The local structure of turbulence in incompressible viscous fluid for very large Reynolds' numbers. *C.R. Acad. Sci. U.R.S.S.* **30** : 301 (1941). [24](#), [145](#)

- [95] A. Kolmogorov. On the breakage of drops in a turbulent flow. *Dokl. Akad. Nauk SSSR* **66** : 825–828 (1949). [145](#)
- [96] R. Kraichnan. Inertial Ranges in Two-Dimensional Turbulence. *Phys. Fluids* **10** : 1417–1423 (1967). [23](#), [95](#)
- [97] J. P. Kubitschek and P. D. Weidman. Helical instability of a rotating viscous liquid jet. *Phys. Fluids* **19** : 114108 (11) (2007). [8](#)
- [98] G. N. Lance and R. L. Perry. Water Bells. *Proc. Phys. Soc. B* **66** : 1067–1072 (1953). [63](#)
- [99] I. Langmuir. Modelisation of adsorption. *Phys. Rev.* **6** : 79–80 (1915). [16](#)
- [100] P.-S. Laplace. Supplément à la Théorie de l’action capillaire, *Traité de la mécanique céleste*, vol. IV, 1-78, (Œuvres complètes, t. IV, 419-498). *Procès-verbaux des séances de l’Institut* **III** (1806). [12](#)
- [101] P.-S. Laplace. Sur la théorie des tubes capillaires. *J. Physique* **62** : (Œuvres complètes t. XIV, 217–227) (1806). [12](#)
- [102] P.-S. Laplace. Théorie de l’action capillaire (premier supplément au livre X, *Traité de la mécanique céleste : sur l’action capillaire, comparaison de la théorie précédente avec l’expérience*, vol. IV, 1-65, Œuvres complètes, t. IV, 349-417). *Procès-verbaux des séances de l’Institut* **III** : 344 (1806). [12](#)
- [103] J. Latham and M. H. Smith. Effect on global warming of wind-dependent aerosol generation at the ocean surface. *Nature* **347** : 372–373 (1990). [95](#)
- [104] D. J. Lewis. The instability of liquid surfaces when accelerated in a direction perpendicular to their planes. II. *Proc. R. Soc. Lond. A* **202** : 81–96 (1950). [ii](#)
- [105] H. Lhuissier and E. Villermaux. Bursting Bubbles. *Phys. Fluids* **21** : 091111 (2009). [95](#), [135](#)
- [106] H. Lhuissier and E. Villermaux. Destabilization of flapping sheets : The surprising analogue of soap films. *C. R. Mécanique* **337** : 469–480 (2009). [39](#), [53](#)
- [107] H. Lhuissier and E. Villermaux. Soap Films Burst Like Flapping Flags. *Phys. Rev. Lett.* **103** : 054501–(4) (2009). [39](#), [40](#)
- [108] N. Y. Liang, C. K. Chan, and H. J. Choi. Dynamics of the Formation of an Aureole in the Bursting of Soap Films. *Phys. Rev. E* **54** : R3117–R3120 (1996). [40](#), [53](#)
- [109] D. R. Lide, editor. *Handbook of Chemistry and Physics*. CRC, 79th edn. (1999). [13](#), [19](#), [95](#)
- [110] S. P. Lin. *Breakup of liquid sheets and jets*. Cambridge University Press (2003). [40](#)
- [111] J. W. Lord Rayleigh. On the Instability of Jets. *Proc. R. Soc. Lond. A* **10** : 4–13 (1878). [9](#), [14](#), [37](#), [53](#), [155](#)
- [112] J. W. Lord Rayleigh. On the equilibrium of liquid conducting masses charged with electricity. *Phil. Mag.* **XIV** : 184–186 (1882). [20](#)

- [113] J. W. Lord Rayleigh. Investigation on the character of the equilibrium of an incompressible heavy fluid of variable density. *Proc. R. Soc. Lond. A* **14** : 170–177 (1883). [i](#)
- [114] J. W. Lord Rayleigh. On the tension of recently formed liquid surfaces. *Proc. R. Soc. Lond. A* **47** : 281–287 (1890). [19](#), [20](#), [147](#)
- [115] J. W. Lord Rayleigh. Some applications of photography. *Nature* **44** : 249–254 (1891). [8](#), [29](#), [34](#), [40](#), [53](#)
- [116] J. W. Lord Rayleigh. On the Instability of a Cylindre of Viscous Liquid under Capillary Forces. *Phil. Mag.* **34** : 145–155 (1892). [14](#)
- [117] J. W. Lord Rayleigh. On the Instability of Cylindrical Fluid Surfaces. *Phil. Mag.* **34** : 177–180 (1892). [14](#)
- [118] J. W. Lord Rayleigh. On convection current in horizontal layer of fluid, when the higher temperature is on the under side. *Phil. Mag.* **32** : 529–546 (1916). [26](#)
- [119] J. Lucassen, M. V. D. Tempel, A. Vrij, and F. T. Hesselink. Waves in Thin Liquid Films. I. The Different Modes of Vibration. *J. Phys. Chem. B* **73** : 109–123 (1970). [14](#), [53](#)
- [120] E. Lucassen-Reynders and J. Lucassen. Properties of Capillary Waves. *Adv. Colloid and Interface Sci.* **2** : 347–395 (1969). [40](#)
- [121] C. Marangoni. Difesa della teoria dell’elasticità superficiale dei liquidi. Plasticità superficiale. *Nuovo Cimento* **3** : 50–68 (1870). [18](#)
- [122] C. Marangoni. Difesa della teoria dell’elasticità superficiale dei liquidi. Plasticità superficiale. *Nuovo Cimento* **3** : 193–211 (1870). [18](#)
- [123] C. Marangoni. Difesa della teoria dell’elasticità superficiale dei liquidi. Plasticità superficiale. Parte II. *Nuovo Cimento* **3** : 97–115 (1870). [18](#)
- [124] C. Marangoni and P. Stefanelli. Monografia sulle bolle liquide. *Nuovo Cimento* **7-8** : 301–356 (1872). [29](#), [93](#), [95](#)
- [125] E.-J. Marey. *La Chronophotographie*. Ghauthier-Villars, Paris (1899). [8](#)
- [126] H. J. Maris. Introduction to the physics of nucleation. *C. R. Physique* **7** : 946–958 (2006). [95](#)
- [127] P. Marmottant and E. Villermaux. On Spray Formation. *J. Fluid Mech.* **498** : 73–111 (2004). [8](#), [39](#)
- [128] P. Marmottant, E. Villermaux, and C. Clanet. Transient Surface Tension of an Expanding Liquid Sheet. *J. Colloid Interface Sci.* **230** : 29–40 (2000). [20](#), [40](#), [147](#)
- [129] W. R. McEntee and K. Mysels. The Bursting of Soap Films. I. An Experimental Study. *J. Phys. Chem.* **73** : 3018–3028 (1969). [29](#), [34](#), [39](#), [40](#), [53](#)
- [130] J. L. Meijering. Interface Area, Edge Length and Number of Vertices in Crystal Aggregates with Random Nucleation. *Philips Res. Rep.* **8** : 270–290 (1953). [154](#)
- [131] E. E. Meshkov. Instability of the interface of two gases accelerated by a shock wave. *Sov. Fluid Dyn.* **4** : 151–157 (1969). [ii](#)

- [132] P. Meunier and T. Leweke. Analysis and minimization of errors due to high gradients in Particle Image Velocimetry. *Exp. Fluids* **35** : 408–421 (2003). 95
- [133] P. F. Mijnlief and R. Ditmarsch. Rate of Micelle Formation of Sodium Alkyl Sulphates in Water. *Nature* **208** : 889–891 (1965). 53
- [134] E. C. Monahan and H. G. Dam. Bubbles : An estimate of their role in the global oceanic flux. *J. Geophys. Res.* **106** : 9377–9383 (2001). 95
- [135] F. Muller, C. Bohley, and R. Stannarius. Second sound in freely suspended smectic-A films. *Phys. Rev. E* **79** : 046315 (10) (2009). 15
- [136] K. Mysels and B. R. Vijayendran. Film Bursting. V. The Effect of Various Atmospheres and the Anomaly of Newton Black Films. *J. Phys. Chem.* **77** : 1692–94 (1973). 53
- [137] K. Mysels and B. R. Vijayendran. The Bursting of Soap Films. VIII. Rim Velocity in Radial Bursting. *J. Phys. Chem.* **81** : 731–33 (1977). 34
- [138] K. J. Mysels, K. Shinoda, and S. Frankel. *Soap Films, Studies of their Thinning and a Bibliography*. Pergamon, New York (1959). 20, 23, 24, 93, 95
- [139] D. M. Newitt, N. Dombrowski, and F. H. Knelman. Liquid Entrainment. 1. The mechanism of drop formation from gas or vapour bubbles. *Trans. Inst. Chem. Eng.* **32** : 244–261 (1954). 95
- [140] V. A. Nierstrasz and G. Frens. Marginal Regeneration in Thin Vertical Liquid Films. *J. Colloid Interface Sci.* **207** : 209–217 (1998). 21, 23, 95
- [141] C. O’Dowd and G. de Leeuw. Marine aerosol production : a review of the current knowledge. *Philos. Trans. R. Soc. A* **365** : 1753–1774 (2007). 95
- [142] A. Oron, S. H. Davis, and S. G. Bankoff. Long-Scale evolution of thin liquid films. *Rev. Mod. Phys.* **69** : 931(50) (1997). 25, 26
- [143] J.-Y. Parlanges. A theory of water-bells. *J. Fluid Mech.* **29** : 361–372 (1967). 63
- [144] J. Plateau. *Satique expérimentale et théorique des liquides soumis aux seules forces moléculaires*. Ghauthier-Villard, Paris (1873). 9, 14, 29, 40, 95
- [145] L. Preobrazhenskii. Estimate of the content of spray-drops in the near-water layer of the atmosphere. *Fluid Mech. Sov. Res.* **2** : 95–100 (1973). 95
- [146] H. O. Puls. The surface tension of a moving mercury sheet. *Phil. Mag.* **22** (1936). 63
- [147] J. Qian and C. K. Law. Regimes of coalescence and separation in droplet collision. *J. Fluid Mech.* **331** : 59–80 (1997). 159
- [148] W. E. Ranz. Some experiments on the dynamics of liquid films. *J. Appl. Phys* **30** : 1950 (1959). 29, 40, 53
- [149] F. Resch and G. Afeti. Film drop distribution from bubbles bursting in seawater. *J. Geophys. Res.* **96** : 10681–10688 (1991). 95
- [150] R. D. Richtmyer. Taylor Instability in Shock Acceleration of Compressible Fluids. *Commun. Pure Appl. Maths* **13** : 297–319 (1960). ii
- [151] M. Rivera, P. Vorobieff, and R. Ecke. Turbulence in Flowing Soap Films : Velocity Vorticity and Thickness Fields. *Phys. Rev. Lett.* **81** : 1417–1420 (1998). 23

- [152] I. V. Roisman. On the instability of a free viscous rim. *J. Fluid Mech.* **661** : 206–228 (2010). [36](#)
- [153] A. Rozhkov, B. Prunet-Foch, and M. Vignes-Adler. Impact of water drops on small targets. *Phys. Fluids* **14** : 3485–3501 (2002). [36](#)
- [154] A. Rusanov and V. Krotov. Gibbs Elasticity of Liquid Films, Threads, and Foams. *Progress Surf. Sci.* **13** : 415–522 (1979). [16](#), [17](#), [53](#)
- [155] L. Santaló. *Integral Geometry and Geometric Probability*. Cambridge University Press, 2nd edn. (2004). [154](#), [xiv](#)
- [156] F. Savart. Mémoire sur le Choc de deux Veines liquides animées de mouvements directement opposés. *Ann. Chim.* **55** (1833). [40](#)
- [157] F. Savart. Mémoire sur le Choc d’une Veine liquide lancée contre un plan circulaire. *Ann. Chim.* **54** : 56–87 (1833). [40](#), [63](#), [64](#)
- [158] F. Savart. Suite du mémoire sur le Choc d’une Veine liquide lancée contre un plan circulaire. *Ann. Chim.* **54** : 113–145 (1833). [40](#), [63](#)
- [159] N. Savva and J. W. Bush. Viscous sheet retraction. *J. Fluid Mech.* **626** : 211–240 (2009). [33](#)
- [160] L. W. Schwartz and R. V. Roy. Modeling Draining Flow in Mobile and Immobile Soap Films. *J. Colloid Interface Sci.* **218** : 309–23 (1999). [23](#), [95](#)
- [161] L. E. Scriven and C. V. Sternling. The Marangoni Effect. *Nature* **187** : 186–189 (1960). [18](#), [26](#)
- [162] L. E. Scriven and C. V. Sternling. On cellular convection driven by surface-tension gradients : effects of mean surface tension and surface viscosity. *J. Fluid Mech.* **19** : 321–340 (1964). [26](#)
- [163] J. A. Segner. De figuris superficialium fluidarum. *Comm. Soc. Reg. Sci. Göttingensis* **1** : 301 (1751). [12](#)
- [164] J. Sommeria. Experimental study of the two-dimensional inverse energy cascade in a square box. *J. Fluid Mech.* **170** : 139–168 (1986). [23](#)
- [165] S. Sovani, P. Sojka, and A. Lefebvre. Effervescent Atomization. *Prog. Energy Combust. Sci.* **27** : 483–521 (2001). [141](#)
- [166] D. E. Spiel. On the birth of film drops from bubbles bursting on seawater surfaces. *J. Geophys. Res.* **103** : 24 907–24 918 (1998). [93](#), [95](#)
- [167] H. B. Squire. Investigation of the Stability of a Moving Liquid Film. *Br. J. of Appl. Phys.* **4** : 167–169 (1953). [40](#), [53](#)
- [168] D. J. Srolovitz and S. A. Safran. Capillary instabilities in thin films. I. Energetics. *J. Appl. Phys.* **60** : 247–254 (1986). [25](#)
- [169] D. J. Srolovitz and S. A. Safran. Capillary instabilities in thin films. II. Kinetics. *J. Appl. Phys.* **60** : 255–260 (1986). [25](#)
- [170] C. V. Sternling and L. E. Scriven. Interfacial Turbulence : Hydrodynamic Instability and the Marangoni Effect. *Amer. Inst. Chem. Eng. J.* **5** : 514–523 (1959). [26](#)
- [171] G. Sünderhauf, H. Raszillier, and F. Durst. The Retraction of the Edge of a Planar Liquid Sheet. *Phys. Fluids* **14** : 198–208 (2001). [53](#)

- [172] I. Szleifer, D. Kramer, and A. Ben-Shaul. Molecular theory of curvature in surfactant films. *J. Chem. Phys.* **92** (1990). 18
- [173] G. I. Taylor. The instability of liquid surfaces when accelerated in a direction perpendicular to their planes. I. *Proc. R. Soc. Lond. A* **201** : 192–196 (1950). ii
- [174] G. I. Taylor. The Dynamics of Thin Sheets of Fluid I. Water Bells. *Proc. R. Soc. Lond. A* **253** : 289–295 (1959). 40, 63
- [175] G. I. Taylor. The Dynamics of Thin Sheets of Fluid II. Waves on Fluid Sheets. *Proc. R. Soc. Lond. A* **253** : 296–312 (1959). 14, 40
- [176] G. I. Taylor. The Dynamics of Thin Sheets of Fluid III. Desintegration of Fluid Sheets. *Proc. R. Soc. Lond. A* **253** : 313–321 (1959). 29, 34, 40, 53
- [177] G. I. Taylor. Disintegration of Water Drops in a Electric Field. *Proc. R. Soc. Lond. A* **280** : 383–397 (1964). 20
- [178] S. T. Thoroddsen. High-Speed Imaging of Drops and Bubbles. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **40** : 257–285 (2008). 8
- [179] S. T. Thoroddsen, T. G. Etoh, and K. Takehara. Crown breakup by a thousand holes. *Phys. Fluids* **18** (2006). 8
- [180] S. T. Thoroddsen, T. G. Etoh, and K. Takehara. Crown breakup by Marangoni instability. *J. Fluid Mech.* **557** : 63–72 (2006). 26
- [181] Y. Toba. Drop Production by Bursting of Air Bubbles on the Sea Surface. II Theoretical Study on the Shape of Floating Bubbles. *J. Oceanogr. Soc. Jpn.* **15** : 121–130 (1959). 95
- [182] R. C. Tolman. The Effect of Droplet Size on Surface Tension. *J. Phys. Chem.* **17** : 333–337 (1949). 22
- [183] T. Tran, P. Chakraborty, N. Guttenberg, A. Prescott, H. Kellay, W. Goldberg, N. Goldenfeld, and G. Gioia. Macroscopic effects on the spectral structure in turbulent flows. *Nature Phys.* **6** : 438–441 (2010). 23
- [184] S. M. Troian, X. L. Wu, and S. A. Safran. Fingering Instability in Thin Wetting Films. *Phys. Rev. Lett.* **62** : 1496–00 (1989). 26
- [185] N. G. Van Kampen. *Stochastic Processes in Chemistry and Physics*. North-Holland Publishing Company (1981). 95
- [186] E. Villermaux. Fragmentation. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **39** : 419–446 (2007). 53, 95, 135
- [187] E. Villermaux. Single drop fragmentation determines size distribution of raindrops. *Nature Phys.* **5** : 697–702 (2009). 9
- [188] E. Villermaux and B. Bossa. Drop fragmentation on impact. *J. Fluid Mech.* **668** : 412–435 (2011). 36
- [189] E. Villermaux and C. Clanet. Life of a Flapping Liquid Sheet. *J. Fluid Mech.* **462** : 342–363 (2002). 40, 53, 66, 145
- [190] E. Villermaux, P. Marmottant, and J. Duplat. Ligament-Mediated Spray Formation. *Phys. Rev. Lett.* **92** (2004). 95, 157
- [191] P. Vorobieff, M. Rivera, and R. Ecke. Soap film flows : Statistics of two-dimensional turbulence. *Phys. Fluids* **11** : 2167–2177 (1999). 23

- [192] A. H. Woodcock, C. F. Kientzler, A. B. Arons, and D. C. Blanchard. Giant Condensation Nuclei from Bursting Bubbles. *Nature* **172** : 1144–45 (1953). [93](#)
- [193] A. M. Worthington and R. S. Cole. Impact with a Liquid Surface, Studied by the Aid of Instantaneous Photography. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* **189** : 149–166 (1897). [8](#), [95](#), [158](#)
- [194] J. Wu, J. Murray, and R. Lai. Production and Distributions of Sea Spray. *J. Geophys. Res.* **89** : 8163–8169 (1984). [94](#), [95](#)
- [195] H. Xia, M. Shats, and G. Falkovich. Spectrally condensed turbulence in thin layers. *Phys. Fluids* **21** : 125 101 (2009). [95](#)
- [196] J. L. York, H. E. Stubbs, and M. R. Tek. The Mechanism of Disintegration of Liquid Sheets. *Trans. ASME* **75** : 1279–1286 (1953). [40](#)
- [197] T. Young. An Essay on the Cohesion of Fluids. *Proc. R. Soc. Lond. A* **95** : 65–87 (1805). [12](#)
- [198] L. Zhang, P. Brunet, J. Eggers, and R. Deegan. Wavelength selection in the crown splash. *Phys. Fluids* **22** (2010). [36](#)
- [199] Q. A. Zheng, V. Klemas, and Y.-H. L. Hsu. Laboratory Measurements of Water Surface Bubble Life Time. *J. Geophys. Res.* **88** : 701–706 (1983). [95](#)

NAPPES, TROUS, LIGAMENTS ET GOUTTES

Resumé : Ce manuscrit aborde le problème de l'*atomisation* des films liquides à travers diverses expériences portant sur leur formation, déstabilisation et fragmentation.

Une première partie identifie et décrit deux mécanismes de désintégration à l'œuvre lors de la rétractation d'un film de savon. Lorsque le film se détache sur une frontière, le bord de *Plateau* est entraîné et son accélération explique la déstabilisation. Lorsque le perçage a lieu au centre, le battement du film résultant de l'interaction avec l'atmosphère au repos conduit à sa fragmentation.

Une seconde étude explique le plissement singulier de certaines cloches liquides par un ressaut hydraulique à interfaces libres assurant la transition d'un écoulement supercritique vis-à-vis des ondes capillaires à un écoulement subcritique. La courbure marquée associée à cette transition conduit à une accélération centripète du liquide susceptible de déstabiliser la cloche en aval.

La formation des embruns par l'intermédiaire de l'éclatement des bulles de surface est abordée dans une troisième partie. La géométrie des bulles, le mécanisme de drainage de leurs films et les événements de perçage sont étudiés afin de rendre compte de l'épaisseur de la bulle au début de l'éclatement. La dynamique ultérieure de fragmentation est détaillée conduisant à une caractérisation du spray produit.

Une dernière partie étudie l'*atomisation effervescente* sur une expérience modèle : une nappe liquide plane ensemencée en fines bulles d'air favorisant la nucléation de trous. Sur la base de mesures des taux de nucléation et croissance des trous, un modèle statistique du réseau de ligaments liquides formés par la réunion des bourrelets ceinturant les trous permet une description du spray issu de la fragmentation du réseau.

Mots-clés : film, interface, instabilité, fragmentation, distribution.

LIQUID SHEETS, HOLES, LIGAMENTS AND DROPS

Abstract: This thesis tackles the problem of liquid films *atomization* through various experimental configurations dealing with their formation, destabilization and fragmentation.

In a first part, two mechanisms of receding soap film disintegration are identified and described. When the film is released from a border, the acceleration sustained by the *Plateau* border explains the destabilization. When puncture occurs in the center, the film flapping is promoted by the interaction with the surrounding atmosphere which leads to its fragmentation.

In a second study, the singular folding of liquid bells is explained by an original free surfaces hydraulic jump insuring transition from a subcritical to a supercritical flow with respect to capillary waves. The strong curvatures associated with this transition, also implying strong centripetal acceleration of the flowing liquid, may induce the downstream sheet destabilization.

The question of marine aerosols formation via surface bubble bursting is investigated in a third part. Bubbles geometry, their film drainage mechanism and puncture events are studied in order to account for the film thickness at the onset of bursting. The subsequent bursting dynamics is detailed to characterize the spray production.

In a last part, *effervescent* atomization is studied on a model experimental set up: a flat liquid sheet seeded with small air bubbles acting as heterogeneous hole nuclei. On the basis of holes nucleation and growth measurements, a statistical model of the liquid ligament red resulting from the holes rims combination offers a description of the spray generated by the red fragmentation.

Keywords: film, interface, instability, fragmentation, distribution.