### Thèse de doctorat de l'université Lille 1

 ${\bf Sp\acute{e}cialit\acute{e}:} {\rm Microfluidique}, {\rm Acoustique}$ 

Présentée par : Adrien Bussonnière

### Pour obtenir le grade de DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ

Sujet de la thèse :

### Actionnement microfluidique par ondes acoustiques de surface : de la physique aux applications biologiques

Soutenance prévue le 11 décembre 2014

Menbre du jury :

Rapporteur	Elise LORENCEAU	Chargé de recherche
Rapporteur	Benjamin DOLLET	Chargé de recherche
Examinateur	Vincent SENEZ	Directeur de recherche
Examinateur	Valentin LEROY	Chargé de recherche
Examinateur	Pierre THIBAULT	Professeur
Invité	Philippe BRUNET	Chargé de Recherche
Invité	Rose-Marie SAUVAGE	Responsable du domaine
		Nanotechnologie à la DGA
Directeur de thèse	Alain MERLEN	Professeur
Directeur de thèse	Olivier BOU MATAR LACAZE	Professeur
Encadrant de thèse	Michaël BAUDOIN	Maître de conférences

 $N^{\circ}$  d'ordre : 41642

## Résumé

Les laboratoires sur puce visent à intégrer sur un substrat miniaturisé une ou plusieurs fonctions de laboratoire. Cette miniaturisation d'opérations élémentaires présente des avantages indéniables en termes de portabilité, de vitesse et de rendement des analyses chimiques ou biologiques. Il est ainsi nécessaire de pouvoir contrôler avec précision des petites quantités de liquide sous forme de gouttes. Les actionneurs à ondes acoustiques de surfaces permettent de réaliser la plupart des opérations requises en exploitant les interactions non linéaires entre une onde acoustique et un liquide. Toutefois la physique sous-jacente à ces microsystèmes n'est encore que partiellement comprise, limitant le développement de telles plateformes d'analyse. Nous nous proposons, dans ce travail, d'étudier de manière théorique et expérimentale l'oscillation et le déplacement d'une goutte soumise à des ondes acoustiques de surface. La réaction d'une goutte à une telle excitation ainsi que les transferts non linéaires d'énergie sont abordés dans une première partie. La deuxième partie est consacrée à la modélisation faiblement non linéaire de l'oscillation d'une goutte afin de prédire les résonances paramétriques d'une goutte soumise à une excitation périodique. Dans une troisième partie, la comparaison de la dynamique de gouttes pendantes et de gouttes posées sur des plans horizontaux et inclinés met en exergue l'influence de la gravité sur la dynamique de la goutte, et permet d'observer de nouvelles dynamiques complexes. Enfin dans la dernière partie, les dynamiques décrites dans les précédents chapitres sont utilisées pour trier des cellules en fonction de leur pouvoir d'adhésion.

### Abstract

A lab-on-a-chip aims at integrating on a miniaturized substrate one or several laboratory functions. This miniaturization of elementary functions has major advantages to design portable systems, to control precisely the experimental conditions or to reduce the environmental impact of industrial activities. In most of these microsystems, it is necessary to actuate a small amount of chemical or biological fluid under the form of droplets. In particular, it is often necessary to move, divide atomize or mix these small quantities of fluids. Surface Acoustic Wave actuators allow to perform all these elementary operations. They rely on the nonlinear interaction of a surface wave and a liquid. However a precise understanding of the underlying physics is still missing, hence restraining a widespread use of these microsystems. We present, in this thesis, a theorical and experimental study of the oscillation and the displacement of a droplet under a surface acoustic wave excitation. In the first part, we describe the droplet dynamics and nonlinear energy transfers that occur during actuation. The second part of the manuscript is dedicated to the development of a weakly nonlinear model to study parametric response of a droplet to periodic excitation. In a third part, the influence of the gravity is shown through the comparison of pendant and sessile droplet dynamics. A competition between acoustic forces and gravity appears when tilting the experimental device and allow us to observe new droplet dynamics. In the last part of the manuscript, the free surface drop deformations generated by surface acoustic waves, are used to viably sort cells based on their adhesion properties. A mon papy... A Malo...

### Remerciements

A l'issue de la rédaction de cette thèse, je me sens libéré mais surtout extrêmement reconnaissant envers toute les personnes qui m'ont soutenu, encouragé, quelque fois supporté, sans qui cette thèse n'aurait probablement jamais vu le jour et c'est avec beaucoup d'émotions que je leur exprime ici ma profonde gratitude.

Je tiens tout d'abord à remercier chaleureusement Michaël BAUDOIN, Olivier BOU-MATAR LACAZE et Alain MERLEN pour leur encadrement et la confiance qu'ils m'ont accordée au cours de ces trois années de thèse. Leur dynamisme et leur passion m'ont permis de m'épanouir à travers ce sujet de recherche. Leurs conseils, leur grande disponibilité ainsi que leur oeil critique ont enrichi mes connaissances et m'ont été très précieux pour structurer, rédiger et améliorer la qualité de ce manuscrit. Le chemin parcouru reflète l'importance des indications qu'ils ont su semer et des nouvelles routes qu'ils m'ont ouvertes, encore merci de m'avoir accompagné dans cet apprentissage scientifique. Je remercie tout particulièrement Michaël pour sa passion qui m'a donné l'envie de me lancer dans cette thèse et qui a su canaliser mon travail par sa rigueur.

Je tiens également à remercier les membres du jury : les rapporteurs Benjamin DOLLET et Elise LORENCEAU pour leurs commentaires approfondis et constructifs, ainsi que Valentin LEROY, Pierre THIBAULT et Vincent SENEZ qui me font l'honneur de juger ce travail.

Je remercie Rose-Marie SAUVAGE, responsable du domaine nanotechnologie à la DGA, dont le suivi m'a permis de prendre du recul sur mes travaux, nos discussions m'ont amené à me poser les bonnes questions.

J'adresse mes remerciements à Monsieur Lionel BUCHAILLOT, pour m'avoir accueilli, pour mes trois années de thèse, au sein du laboratoire IEMN dont il est le directeur.

Je voudrais remercier Philippe PERNOD en qualité de directeur de l'équipe LICS pour m'avoir accueilli dans son équipe mais également en qualité de professeur pour avoir su faire pétiller mes yeux et initier l'envie de continuer sur une thèse. Merci également à tous les membres de l'équipe LICS où la convivialité qui est de mise rend le travail agréable. Je tiens à remercier Stefano GIORDANO pour sa sympathie et ses explications théoriques qui ont permis d'ajuster mes calculs. Je remercie également Jean-Claude GERBEDOEN pour l'aide (voir l'assistance) qu'il m'a apportée lors de la micro-fabrication en salle blanche. J'en profite également pour remercier tout le personnel de l'IEMN, que je ne peux citer ici, pour l'expertise qu'ils m'ont apporté pendant ces trois ans.

Mon séjour de cinq mois au Québec n'aurait jamais vu le jour sans la collaboration d'Alan RE-NAUDIN, de Michel GRANDBOIS et de Michaël BAUDOIN. Je les remercie de m'avoir offert cette opportunité et suis reconnaissant envers Alan pour l'accueil qu'il m'a réservé au Québec et pour son encadrement au cours du projet. Je tiens à remercier Vincent AIMEZ et tout particulièrement Paul CHARETTE pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire de biophotonique et d'optoélectronique de l'université de Sherbrooke et pour la "fluidité déconcertante" qu'il a apporté à la publication. Je tiens à remercier Michel GRANDBOIS pour son accueil au sein du département de Pharmacologie de l'université de Sherbrooke ainsi que pour les discussions enrichissantes qui m'ont permis de mieux aborder le vaste domaine de la biologie. Je suis très reconnaissant envers Yannick MIRON, technicien cellulaire et un peu le "papa" de toutes les cellules utilisées dans cette thèse, qui m'a également accompagné au cours de ma découverte de la cellule.

Je remercie Philippe BRUNET pour m'avoir donné l'occasion de découvrir pendant deux mois le laboratoire MSC à Paris ainsi que pour sa convivialité. Je remercie par la même occasion tous mes collègues du thésarium pour les divers discussions devant le tableau à la pause café et en particulier Henri LHUISSIER qui a initié l'étude approfondie de la fréquence de goutte. Je suis maintenant convaincu que l'hydrodynamique est un des domaines de la physique que j'affectionne le plus.

J'aimerais remercier mes collègues thésards, "mon monsieur pression de radiation" Diego BA-RESCH qui a éclairci mes idées ainsi qu'Antoine RIAUD pour nos discussions passionnantes à l'origine de plusieurs idées exposées dans ce manuscrit.

Je souhaite remercier Marie BAUDOIN, Jennifer LAGUEYTE et Agathe L'HERMET pour leurs corrections.

Je voudrais, à travers ces quelques lignes, remercier tous mes amis qui m'ont redonné le sourire et ont su me faire oublier la rédaction lorsque la folie me guettait. Merci à toute ma famille pour leur soutien inconditionnel, mes parents dont les sacrifices m'ont permis de réaliser mes rêves, Juju mon modèle d'empathie qui fait une maman formidable et Seb la force sensible, j'espère que tu m'emboîteras le pas. Finalement, je remercie Agathe d'avoir été à mes côtés en toutes circonstances, d'avoir fait toutes ces concessions pour moi et de m'avoir épauler tout au long de cette épopée, merci.

Je dédie cette thèse à mon papy dont le mouvement de ces petites gouttes passionnait.

# Table des matières

R	Remerciements				
Table des matières			iv		
1	Intr	Introduction générale			
	1.1	Les origines de la microfluidique	1		
	1.2	2 Microfluidique par ondes acoustiques de surface			
	1.3	B Etat de l'art de l'actionnement microfluidique par ondes acoust	tiques de surface . 4		
		1.3.1 Mélange	4		
		1.3.2 Pompage	5		
		1.3.3 Concentration et tri de particules	7		
		$1.3.4$ Jet acoustique $\ldots$	9		
		1.3.5 Nébulisation	10		
		1.3.6 Echauffement	10		
		1.3.7 Déplacement de goutte			
	1.4	4 Objectifs de la thèse			
	1.5	5 Plan de la thèse			
2	Pri	rincipes généraux en acoustofluidique et application à l'act	ionnement d'une		
	gou	outte	15		
	2.1	Transmission d'énergie acoustique par ondes de surface			
		2.1.1 Ondes acoustiques dans les solides			
		2.1.2 Ondes de surface			
		2.1.3 Radiation d'énergie en présence d'un fluide			
	2.2	2 Champ acoustique généré dans une goutte			
		2.2.1 Caractéristique acoustique d'une goutte			
		2.2.2 Dissipation visqueuse : comparaison du champ acoustique	e incident et réfléchi $35$		
		2.2.3 Cavité normale et chaotique			
		2.2.4 Energie acoustique accumulée par une cavité chaotique	41		
	2.3 Actionnement de liquide par acoustique non linéaire		45		
		2.3.1 Lois de conservations pour un fluide et décomposition et	n modes 46		
		2.3.2 Couplage linéaire de modes aux frontières	47		
		2.3.3 Interaction non linéaire acoustique-acoustique	47		
		2.3.4 Propagation non linéaire			
		2.3.5 Pression de radiation acoustique	50		

		2.3.6	Couplage non linéaire entre mode visqueux et acoustique : streaming acoustique	56
		2.3.7	Régimes d'actionnement	63
	2.4	Micro	fluidique de goutte	65
		2.4.1	Introduction à la microfluidique	66
		2.4.2	Tension superficielle	66
		2.4.3	Vibration d'interface : ondes capillaires et modes propres d'une goutte	67
		2.4.4	Ligne de contact	68
		2.4.5	Dynamiques d'une goutte excitée par des ondes acoustiques de surface	70
	2.5	Concl	usion	76
3	Osc	illatio	n non linéaire de goutte : étude des résonances super-harmoniques	,
	har	moniq	ues et sous-harmoniques	79
	3.1	Introd	luction	80
	3.2	Déteri	mination de l'équation anharmonique	82
		3.2.1	Décomposition en modes propres	82
		3.2.2	Approche pertubative et adimensionnement	83
		3.2.3	Formalisme lagrangien	83
		3.2.4	Expression du lagrangien non linéaire	85
		3.2.5	Condition cinématique	90
		3.2.6	Puissance dissipée par viscosité	91
		3.2.7	Equation dynamique	92
		3.2.8	Couplage non linéaire des modes	94
		3.2.9	Equation anharmonique du mode fondamental	94
	3.3	Analy	se de l'équation anharmonique	96
		3.3.1	Oscillation libre et décalage de la fréquence propre	96
		3.3.2	Résonance harmonique	98
		3.3.3	Combinaison de fréquences	100
		3.3.4	Résonance paramétrique	103
	3.4	Concl	usion et perspective	112
4	Dyr	namiqu	1e de gouttes sessiles et pendantes sur des plans horizontaux et in-	
	clin	és : inf	luence de la gravité, surfaces glissantes et émergence de dynamiques	5
	com	plexes	5	115
	4.1	Introd	luction	116
	4.2	Dispos	sitifs expérimentaux	119
	4.3	Dynar	mique des gouttes pendantes et sessiles	120
		4.3.1	Détachement des gouttes	120
		4.3.2	Apparition de nouveaux régimes	123
		4.3.3	Comparaison de la dynamique des gouttes sessiles et pendantes	125
		4.3.4	Loi d'évolution de la vitesse de translation de la goutte dans le cas sessile.	138
	4.4	Dynar	mique de gouttes sur plans inclinés $(Bo\sin\alpha \neq 0)$ .	140
		4.4.1	Diagramme de phase	140
		4.4.2	Dynamique aux nombres de Weber les plus faibles	140
		4.4.3	Dynamique aux nombres de Weber acoustique les plus élevés	141
		4.4.4	Dynamiques complexes	143
	4.5	Conch	usion	146

5	Déc	Décollement et tri cellulaire en microfluidique digitale par ondes acoustiques				
	de s	surface 1	149			
	5.1	Contexte biologique et microfluidique	150			
		5.1.1 Méthodes conventionnelles de tri	150			
		5.1.2 Tri microfluidique	151			
		5.1.3 Décollement cellulaire	151			
		5.1.4 Microfluidique digitale	152			
	5.2	Matériels et méthodes	153			
		5.2.1 Dispositif et procédure expérimentaux	153			
		5.2.2 Dispositifs à ondes acoustiques de surface	154			
		5.2.3 Préparation cellulaire	155			
	5.3	Etude préliminaire	156			
	5.4	Dynamique de goutte et interaction cellules-écoulement	157			
		5.4.1 Régimes hydrodynamiques	157			
		5.4.2 Taux de détachement	159			
		5.4.3 Comparaison des différents régimes	160			
		5.4.4 Estimation du cisaillement imposé par le front liquide	161			
		5.4.5 Caractérisation de la méthode	162			
	5.5 Tri cellulaire					
	5.6	Conclusion et perspectives	164			
6	Con	nclusion générale et perspectives 1	167			
A	Cal	cul du nombre d'onde du champ dans le fluide 1	171			
B	Puis	ssance transmise à une goutte par des ondes de Rayleigh	173			
С	C Calcul du champ de pression de radiation induit par le champ incident					
D	D Calcul des énergies associées au lagrangien					
Е	E Décalage non linéaire de la fréquence de résonance					
_						
F	Coe	efficients des matrices B et C de l'étude de stabilité 1	185			

#### Bibliographie

189

# Chapitre 1

# Introduction générale

Le travail présenté dans cette thèse porte sur l'étude théorique et expérimentale de systèmes microfluidiques actionnés par ondes acoustiques de surface. Dans ce chapitre d'introduction, nous détaillons les enjeux de la microfluidique à travers un bref historique du domaine. Nous présentons ensuite un état de l'art sur les différentes opérations d'actionnement par ondes acoustiques de surface ainsi que leurs applications au sein d'un laboratoire sur puce. Nous finissons en détaillant d'une part les objectifs de cette thèse, et d'autre part le plan du manuscrit.

#### 1.1 Les origines de la microfluidique

La miniaturisation des technologies initiée en 1940 avec l'invention du transistor n'a cessé de se poursuivre, débouchant sur certaines avancées technologiques majeures de notre siècle. L'électronique a été le premier domaine à se lancer dans la course au petit afin de réduire les coûts, la consommation et surtout d'augmenter les capacités des composants, bouleversant la société avec l'apparition, entre autres, des ordinateurs. La mécanique lui emboite le pas dans les années 1980. Porté par les techniques de microfabrication développées pour la microélectronique, le concept de MEMS (*Microelectromechanical Systems*) voit rapidement le jour avec notamment le développement des accéléromètres, qui se retrouvent aujourd'hui au sein de tous nos téléphones et voitures (déclenchement des airbags).

La mécanique des fluides n'échappant pas à cet engouement pour la miniaturisation, une nouvelle discipline est créée : la microfluidique. Cette branche de la fluidique dédiée à l'étude des écoulements aux petites échelles connait des débuts difficiles (1975-1990) [1]. Malgré le développement de systèmes innovants [2], peu d'intérêt y est accordé. Il faut attendre les années 90 pour que cette discipline connaisse un essor considérable grâce aux succès des méthodes analytiques au format capillaire propre à la microfluidique [3] et à l'avènement du séquençage du génome humain en biologie moléculaire [4]. Se profile alors le concept de laboratoire sur puce (ou *micrototal analysis system*  $\mu$ TAS) [5], avec la promesse d'améliorer le rendement et la vitesse des analyses chimiques ou biologiques par l'intégration de multiples étapes au sein d'une puce et permettant ainsi de travailler sur des volumes inférieurs au microlitre. Dès lors, la recherche de moyens pour actionner des petits échantillons de liquide et réaliser différentes analyses biologiques fait émerger de nombreuses solutions technologiques [6]. La technologie à ondes acoustiques de surface (SAW pour Surface Acoustic Wave en anglais) constitue un candidat prometteur grâce à sa capacité à effectuer la plupart des opérations d'actionnement élémentaires tels que le pompage, le mélange, le déplacement de goutte, l'atomisation ou encore la manipulation de particules à distance.

#### 1.2 Microfluidique par ondes acoustiques de surface

Ce domaine à l'interface entre la microfluidique et l'acoustique exploite les effets d'acoustique non linéaire pour mettre en mouvement un liquide à petite échelle. Le développement de la microfluidique par SAW est marqué par 4 dates importantes (figure 1.1).



FIGURE 1.1: Frise retraçant les étapes importantes du développement de la microfluidique par onde acoustique de surface.

Comme souvent au cours de cette thèse, l'histoire commence avec Lord Rayleigh qui étudie en 1885 [7] un type d'onde élastique inhomogène dont l'énergie est confinée à l'interface d'un solide. Ces ondes dites de Rayleigh se propagent le long d'une surface libre en créant un mouvement des particules dans le plan sagittal (le plan contenant la normale à la surface et la direction de propagation). Cette découverte fait tout d'abord écho en sismologie, où elle permet d'expliquer l'une des composantes reçue par un sismographe lors d'un tremblement de terre. Elle initie alors l'étude d'autres types d'ondes de surface telle que l'onde de Love [8]. Ces ondes s'atténuant moins rapidement que les ondes de volumes (confinées dans la croute terrestre) sont généralement les plus destructrices. Notons qu'elles peuvent parcourir plusieurs fois le tour du globe avant de s'atténuer et donc exciter les modes propres de vibration de la terre. Les premières applications de ces ondes apparaissent dans les années 1960 avec le traitement du signal [9] qui est marqué par l'invention des peignes interdigités par White et Voltmer [10] en 1965. Ces peignes sont composés d'un réseau d'électrodes métalliques déposé par des techniques de microfabrication bas coût (lithographie) sur un substrat piezoélectrique. L'application d'une tension alternative à une fréquence déterminée par l'espacement entre les électrodes génère une onde de Rayleigh à la surface du substrat qui peut être reconvertie en signal électrique par une seconde électrode placée sur le chemin de l'onde. Le confinement de l'énergie dans une faible épaisseur et la vitesse relativement lente de ces ondes permettent de créer des lignes à retard compactes. De plus, des fonctions plus complexes comme le filtrage peuvent être réalisées par une simple modification de la géométrie des peignes. Commence alors l'ère des technologies SAW qui vont bouleverser le monde de la télécommunication et sont, à l'heure actuelle, présentes au sein de nos téléphones portables et télévisions [9].

Dès les débuts de la microfluidique et grâce aux solides développements des technologies SAW, les ondes acoustiques de surface s'imposent comme une technologie prometteuse d'actionnement au sein d'un laboratoire sur puce. L'année 1989 marque le début de la microfluidique par ondes acoustiques de surface avec l'article de Shiokawa *et al.* [11] qui utilise des peignes interdigités pour déplacer ou encore atomiser une goutte d'eau. S'en suivent des études consolidant le potentiel de la microfluidique par SAW. Moroney, du groupe de White, démontre en 1990 l'efficacité de ces ondes à créer un écoulement au sein d'une cavité fermée [12] et la nébulisation d'un film liquide est rapportée en 1995 par Kurosawa et Watanabe [13] pour ne citer que quelques exemples.

Finalement, un nouveau cap est franchi avec Wixforth [14] en 2003 qui réalise l'une des premières application biologique : l'hybridation d'ADN. Le laboratoire sur puce à SAW n'est plus un rêve et la communauté s'agrandit alors rapidement conduisant au développement de nombreuses applications exploitant des effets non linéaires originaux.

Soulignons que l'essor de la microfluidique par SAW est le résultat du développement conjoint des ondes de surface d'actionnement (fort couplage avec un liquide) et des ondes de détection, type ondes de Love. Ces ondes n'interagissent que faiblement avec le liquide dans la couche limite visqueuse et peuvent donc être utilisées comme capteur. Elles sont également générées par des peignes interdigités et ont subi un développement similaire aux ondes d'actionnement. Le lecteur désirant se renseigner plus en détails sur ces ondes pourra se reporter à la revue de Länge *et al.* [15].

### 1.3 Etat de l'art de l'actionnement microfluidique par ondes acoustiques de surface

La différence essentielle entre les écoulements classiques et microfluidiques tient évidemment dans la réduction des échelles caractéristiques. Une conséquence directe est l'augmentation du rapport surface/volume mis en jeu, qui est multiplié par un facteur d'un million lorsqu'on passe d'un objet de dimensions métriques à un objet de dimensions micrométriques. Ainsi les effets d'interface apparaissant dans les milieux multiphasiques (telles que les forces capillaires à l'interface entre deux fluides) vont devenir prépondérants. De plus le nombre de Reynolds (qui compare les effets inertiels aux effets visqueux) étant proportionnel à la taille caractéristique du système, celui-ci va devenir très petit aux échelles micrométriques, et les écoulements deviennent donc généralement laminaires.

L'efficacité de l'actionnement microfluidique par ondes acoustique de surface repose sur deux piliers. Tout d'abord, le couplage fort entre une onde acoustique de surface et un liquide permet de transférer une quantité importante d'énergie sur de courtes distances. Une centaine de micromètres suffit pour transmettre l'énergie d'une onde de surface d'une fréquence de 100 MHz à de l'eau. Le second atout provient de la nature volumique (streaming acoustique) et surfacique (pression de radiation acoustique) des forçages non linéaires acoustiques engendrés par cette transmission efficiente. Ceux-ci permettent de générer un écoulement interne et d'autre part de déformer une interface ou déplacer des particules.

Dans cette partie, les différentes réponses possibles d'un liquide actionné par des ondes acoustiques de surfaces sont présentées à travers les opérations élémentaires nécessaires à l'élaboration d'un laboratoire sur puce. Nous en donnons également les applications, afin d'illustrer le fort potentiel de cette technologie en plein essor, comme en témoigne le nombre de revues consacrées au sujet [16-21].

#### 1.3.1 Mélange

Les écoulements microfluidiques étant très souvent laminaires, le temps des différentes analyses ou réactions nécessaires au sein d'un laboratoire sur puce est limité par la diffusion. Le streaming acoustique induit par des ondes acoustiques de surface permet de générer un mélange dans des échantillons de fluides, et donc de diminuer le temps de ces opérations. Cet avantage a largement contribué au développement des ondes de surfaces en microfluidique avec des observations expérimentales dès l'année 1990 [12]. Cet effet va alors être largement étudié en microcanaux [22–29], en goutte [30–32] et en micropuits [33].

Remarquons un travail original de Frommelt [34] qui par l'utilisation de deux peignes interdigités perpendiculaires et déphasés induit un mélange chaotique au sein d'une goutte (figure 1.3).



FIGURE 1.2: Visualisation de l'écoulement de streaming acoustique par une encre fluorescente [30].



FIGURE 1.3: Principe de mélange chaotique par l'utilisation de deux peignes interdigités (gauche). Image du mélange pour différentes fréquences de modulation pour le peigne TIDT II [34].

L'application historique de réactions en chaîne par polymérase (PCR) permettant de dupliquer l'ADN de Wixforth [35, 36] exploite ce mélange pour améliorer la rapidité et la mesure de ce processus. S'en suivent plusieurs études sur l'amélioration du temps de réponse de certaines espèces chimiques ou des réactions chimiques [23, 37–40]. Nous pouvons souligner la compatibilité des SAW avec la détection par résonance de plasmon de surface qui ajoute un outil intéressant au laboratoire sur puce à ondes de surface [41, 42].

#### 1.3.2 Pompage

Une autre application découlant du streaming acoustique est le pompage de liquide au sein d'un laboratoire sur puce. Alors que la miniaturisation met en difficulté les micropompes conventionnelles [43, 44], les ondes acoustiques de surface s'imposent comme une alternative intéressante grâce à leur capacité à activer le liquide à distance (pas de contamination de la "pompe") et leur encombrement limité. Dans la lignée des travaux de Moroney *et al.* [12], Nguyen et White [45, 46] démontrent le potentiel de telles pompes par l'utilisation d'ondes de plaque. Efficace en géométrie ouverte [47–49], le pompage en microcanaux fermés rencontre des difficultés dues à l'atténuation de l'onde au sein du matériau le plus utilisé en microfluidique : le polydiméthylsiloxane (PDMS). Une solution proposée par Langelier *et al.* [50] consiste à remplacer le PDMS par du verre collé au matériau piezoélectrique par une résine epoxy, limitant ainsi l'émission d'ondes acoustiques dans les parois du microcanal. Cependant la fabrication d'un système microfluidique en verre est plus complexe et coûteuse que celle de microcanaux en PDMS. Une deuxième méthode compatible avec les microfabrications classiques emploie une couche de liquide comme jonction acoustique entre un dispositif SAW et un microcanal collé sur une plaque de verre [51, 52] (figure 1.4). Basée sur ce principe, une micropompe innovante a été développée par Dentry *et al.* [53] présentée sur la figure 1.4.



FIGURE 1.4: Gauche : Technique de transmission d'énergie dite "superstrate" via l'utilisation d'un film liquide entre le substrat piezoélectrique (niobate de lithium  $LiNbO_3$ ) et le dispositif à actionner, vue du dessus (a) et de côté (b) [51]. Droite : Micropompe à ondes acoustiques de surface [53].

Ces écoulements ont été utilisés au sein d'études biologiques fondamentales d'adhésion cellulaire [54, 55] et du comportement de protéines sous un écoulement cisaillant [56].

Un second effet, moins trivial, peut également être utilisé en microfluidique par SAW pour pomper un liquide. En plaçant un microcanal ouvert à ses extrémités et une goutte sur le chemin d'une onde (voir figure 1.5), Cecchini *et al.* ont observé un mouvement du liquide dans le sens opposé à la propagation de l'onde acoustique de surface. Cet effet est expliqué par Girardo *et al.* [57] en considérant l'atomisation de microgouttes à l'interface. Ce déplacement est provoqué par une cascade de coalescence avec les gouttes atomisées en avant du front liquide. Ce mécanisme est exploité pour guider un liquide au sein d'un réseau de microcanaux en deux dimensions [58] ou pomper un liquide en microfluidique sur papier [59].



FIGURE 1.5: Dispositif utilisé par Cecchini *et al.* à gauche et évolution du front de liquide dans le microcanal à droite [57].

#### 1.3.3 Concentration et tri de particules

La manipulation de particules de manière individuelle ou collective est une opération essentielle pour la conception d'un laboratoire sur puce. La communauté a largement exploré les différentes possibilités de manipulation d'objets au sein d'un système à SAW en goutte ou en microcanaux.

#### En goutte

L'exploration des possibilités offertes par les SAW pour le tri de particules dans une géométrie en goutte a été réalisée par Li *et al.* [60] qui ont mis en évidence différents régimes de concentration des particules ainsi que des intermittences entre ces régimes (figure 1.6). A faible puissance ("colloidal rings"), les particules s'organisent en cercles concentriques espacés d'une demi-longueur d'onde acoustique. Ce comportement correspond à la réponse linéaire de l'interface (ondes capillaires) à l'excitation acoustique. Un régime d'îlots colloïdaux apparait pour des puissances supérieures et correspond au déclenchement d'une vibration non linéaire de l'interface aux alentours de 500 Hz. Puis une intermittence entre un régime d'îlots et une rotation des particules est observée pour de plus fortes amplitudes d'excitations. Finalement, à des puissances extrêmes, les écoulements de streaming acoustique deviennent prédominants et concentrent les particules au centre d'une goutte. Cette étude expérimentale montre le potentiel d'un système à SAW pour manipuler des particules mais elle met surtout en évidence la complexité du champ acoustique s'établissant dans une goutte, son couplage avec la vibration d'interface et la compétition entre pression de radiation (motifs stationnaires) et le streaming (écoulement) au sein du liquide.



FIGURE 1.6: Motifs observés pour différents diamètres de gouttes et puissances acoustiques [21].

En brisant la symétrie du système (voir figure 1.7), il est possible de forcer la concentration des particules au centre de la goutte [61]. Comme le montre la figure 1.8, le mouvement circulaire

induit un écoulement secondaire emportant les particules vers le centre d'une goutte [62]. Cet effet a également été réalisé par l'utilisation de cristaux photoniques [63] ou par l'emploi de transducteurs focalisés [64]. La combinaison de ce mécanisme avec la pression de radiation exercée sur les particules par l'onde acoustique dans le liquide ont permis à Rogers *et al.* [65] de trier les particules selon leur taille, les particules les plus grosses étant emportées en périphérie par la pression de radiation. En modifiant la fréquence d'excitation, il est possible de moduler l'importance relative d'un effet par rapport à l'autre et ainsi changer le diamètre critique de tri des particules. Cet effet a été utilisé pour concentrer des globules rouges de lapin de manière viable [66].



FIGURE 1.7: Différentes méthodes pour briser la symétrie du système : (a) décalage d'une goutte par rapport aux peignes interdigités, (b) utilisation d'un substrat non-symétrique et (c) absorption de la moitié du faisceau acoustique [21].



FIGURE 1.8: Schéma de l'écoulement se développant à l'intérieur d'une goutte (gauche) [62]. Vue de dessus de la concentration des particules induite par les SAW. [64].

#### En microcanaux

Nous pouvons distinguer deux types de manipulations en microcanaux se basant respectivement sur la nature progressive ou stationnaire de l'onde acoustique utilisée.

En générant une onde progressive à l'aide d'un transducteur unique placé perpendiculairement à un microcanal, il est possible de créer une déflection d'un objet circulant au sein du canal via les forces de Stokes qui résultent du streaming acoustique. En plaçant une jonction en Y en aval, ce mécanisme est utilisé pour actionner le tri de gouttes, de cellules ou de particules circulant au sein du canal [67, 68]. Ce type de manipulation est indépendant des propriétés de l'objet et doit donc être couplé à un système de détection. Deux peignes positionnés face à face permettent de génèrer un champ acoustique stationnaire au sein du microcanal. Les particules vont alors se déplacer aux noeuds ou ventres de pression selon leurs caractéristiques acoustiques par les effets de pression de radiation [69], comme le montre la figure 1.9. Il est ainsi possible de focaliser [70–73] mais également de trier [74, 75] des objets par l'utilisation d'ondes de surface. Ces objets pouvant être des cellules vivantes, cette méthode a permis de trier deux types cellulaires selon leurs propriétés acoustiques [76–78].

En étendant ce principe à deux paires d'électrodes, il est possible de réaliser des pinces acoustiques à ondes de surfaces [79–81]. Pour ce faire, différentes techniques sont utilisées. Ding *et* al.[82] utilisent des transducteurs multi-fréquentiels (espacement entre deux électrodes variables) pour contrôler le déplacement d'une seule cellule, ouvrant les portes à des applications biologiques fondamentales (figure 1.9). Tran *et al.* [81] utilisent eux le déphasage entre les peignes opposés.



FIGURE 1.9: Gauche : Principe de fonctionnement du tri de particules par ondes acoustiques de surface stationnaires [76]. Droite : Pince acoustique utilisant deux paires de peignes interdigités multi-fréquentiels [82].

#### 1.3.4 Jet acoustique

Initialement mis en évidence par Shiokawa *et al.* [11], le jet acoustique constitue l'un des phénomènes les plus impressionnants pouvant être obtenu en excitant une goutte de liquide avec des SAW. Pour obtenir ce jet, les amplitudes des ondes de Rayleigh doivent typiquement être de l'ordre du nanomètre (ce qui correspond à des fortes amplitudes à ces fréquences). Lorsqu'un seul transducteur est utilisé, la direction du jet est donné par l'angle de Rayleigh, *i.e.* la direction d'émission des ondes acoustique dans le liquide [83]. En utilisant deux transducteurs focalisés disposés l'un en face de l'autre, Tan *et al.* [84] produisent un jet perpendiculaire au substrat atteignant des déformations extrêmement importantes (figure 1.10). Lorsque la hauteur devient suffisamment élevée, la colonne de fluide ainsi formée se divise en gouttes via l'instabilité de Rayleigh-Plateau. Une application rhéologique de ce phénomène a été menée par Bhattacharjee *et al.* [85].



FIGURE 1.10: Formation d'un jet via l'excitation d'une goutte avec des ondes acoustiques de surface [84].

#### 1.3.5 Nébulisation

Lorsqu'une onde acoustique se propage au sein d'une goutte, des ondes capillaires apparaissent à l'interface liquide-air. Passé un certain seuil, il est possible de nébuliser le liquide à l'instar des nébuliseurs modernes. Cet effet a été mis en évidence par Kurosawa *et al.* en 1995 [13] et a largement été étudié au cours des dernières années [86–88], conduisant a des applications en spectroscopie de masse [89, 90], pour la génération rapide d'aérosols à base de protéines [91] ou bien encore les traitements par inhalation [92]. En combinant cet effet à la microfluidique sur papier Qi *et al.* ont montré le potentiel de ce phénomène pour trier des organismes biologiques [93].



FIGURE 1.11: Nébulisation d'une goutte produisant un "brouillard" pour des puissances importantes [87].

#### 1.3.6 Echauffement

La dissipation de l'énergie acoustique au sein du liquide engendre un échauffement du liquide. L'élévation de température associée peut être néfaste pour les analyses biologiques, motivant des études de ce phénomène dès les débuts de la microfluidique par SAW [94–97]. Au contraire, cet échauffement peut être nécessaire dans certaines applications. Ainsi, les SAW ont été utilisées pour activer des réactions chimiques [98] ou pour réaliser les cycles de température en duplication d'ADN [99]. Nous pouvons remarquer sur la figure 1.12 une répartition inhomogène de la température traduisant la transmission efficace d'énergie d'une onde acoustique de surface au liquide. L'écoulement de streaming généré à faible viscosité permet d'homogénéiser la température.



FIGURE 1.12: Visualisation par imagerie infrarouge de la température au sein d'une goutte soumise à des ondes acoustiques de surface pour une viscosité de 146 mPa.s et une puissance de 500 mW à gauche et une viscosité de 13,1 mPas.s sous une de puissance de 1,6 W à droite [95].

#### 1.3.7 Déplacement de goutte

Le déplacement de goutte est l'étape centrale de la microfluidique dite digitale (en goutte). Cette opération a largement contribué à l'essor des ondes acoustiques de surface en microfluidique. Initialement observé par Shiokawa *et al.* [11], ce phénomène a connu un regain d'intérêt depuis 2002 avec Strobl *et al.* [100]. La translation de goutte a alors été exploitée au sein des applications PCR du groupe de Wixforth [101], pour ensemencer des cultures cellulaires [102, 103] ou pour collecter des particules déposées à la surface [104].



 $\label{eq:Figure 1.13: Déplacement d'une goutte soumise à des ondes acoustiques de surface de 20 \mbox{ MHz}. Le mouvement est un couplage entre une oscillation et une translation [105].$ 

La translation d'une goutte intervient lorsque les effets non linéaires acoustiques transmettent une énergie suffisante à l'interface liquide-air pour dépasser les forces de rétention de la ligne de contact. Cependant, le mécanisme de mise en mouvement des gouttes n'est encore que partiellement compris malgré plusieurs études fondamentales sur le sujet [16, 105, 106]. Baudoin *et al.* ont mis en évidence l'existence d'oscillations inertio-capillaires qui accompagnent le déplacement des gouttes et leur comportement non linéaire. Ils ont montré que les nonlinéarités de la goutte permettent une excitation paramétrique de cette dernière [107] pouvant être exploitée pour optimiser le déplacement de goutte.

Enfin d'autres auteurs se sont intéressés à la localisation de la goutte [108–111]. En captant les échos émis par une goutte, ils ont montré qu'il est possible de déterminer sa position, ouvrant ainsi les portes à l'élaboration d'un système de positionnement à SAW précis.

#### 1.4 Objectifs de la thèse

Une grande variété d'applications microfluidiques basées sur l'actionnement par onde acoustique de surface ont vu le jour ces dernières années exploitant plusieurs effets non linéaires. Cependant, la physique gouvernant les différentes dynamiques observées est encore mal comprise. Ceci est dû notamment à la complexité des interactions non linéaires entre une onde acoustique de l'ordre du mégahertz et la dynamique du liquide beaucoup plus lente.

Nous pensons qu'une meilleure compréhension de la physique sous-jacente à ces systèmes, en plus d'être intrinsèquement intéressante d'un point de vue scientifique, ouvrira les portes à de nouvelles applications et contribuera à assurer un développement des technologies à ondes acoustiques de surface à plus grande échelle. Devant la richesse de comportements mise en évidence par cette synthèse bibliographique, nous nous restreignons dans ce travail à l'étude de l'oscillation et du déplacement d'une goutte soumise à des ondes de Rayleigh. Nous étudions en particulier la dynamique non linéaire d'oscillation d'une goutte et l'influence des effets gravitationnels sur son évolution. Enfin, nous montrons comment une bonne connaissance de la physique des gouttes peut permettre de concevoir des systèmes originaux répondant à des problématiques biologiques fondamentales telles que le tri cellulaire.

#### 1.5 Plan de la thèse

Le chapitre 2 dresse un bilan des différents mécanismes mis en jeu au sein de l'actionnement de goutte par ondes acoustiques de surface. Nous aborderons notamment le couplage entre une onde de Rayleigh et un liquide dans le but de mettre en évidence l'efficacité du transfert d'énergie s'effectuant à l'interface solide-liquide. L'organisation de l'énergie acoustique ainsi transmise est alors considérée en étudiant les différents champs acoustiques se développant au sein d'une goutte en fonction de la fréquence d'excitation. Les effets acoustiques non linéaires sont ensuite détaillés et leur influence sur le mouvement d'une goutte est discutée. Finalement, nous abordons les phénomènes de tension superficielle et décrivons la réaction d'une goutte à différentes fréquences d'excitation. Cette première partie nous permet d'expliciter les mécanismes non linéaires de transfert énergétique et l'apparition de plusieurs modes propres des gouttes s'opérant au cours d'un actionnement par ondes acoustiques de surface.

Suite à ces observations et motivés par la mise en évidence de la résonance paramétrique d'une goutte soumise à des ondes de surfaces par Baudoin *et al.* [107], nous développons, dans un troisième chapitre, un modèle faiblement non linéaire d'oscillation de gouttes afin de déterminer l'équation anharmonique régissant la déformation de l'interface. Les résonances sous-harmoniques et super-harmoniques du mode fondamental sont alors étudiées dans le but de fournir une base théorique aux comportements observés expérimentalement.

L'influence de la gravité sur la dynamique de la goutte est étudiée dans une quatrième partie via le renversement ou l'inclinaison du dispositif expérimental. La comparaison entre une goutte posée et une goutte pendante fait apparaitre l'importance de cet effet au sein du mouvement excité. Le modèle développé au chapitre 3 est alors utilisé pour expliquer les différentes lois obtenues. Dans une seconde partie, l'analyse des expériences en plan incliné fait apparaître une compétition entre le forçage acoustique et la gravité avec l'observation de déplacements de goutte opposés à la propagation de l'onde ou encore l'apparition de dynamiques complexes.

Dans un cinquième et dernier chapitre, le potentiel des ondes acoustiques de surface est exploité pour le décollement et le tri cellulaire en microfluidique digitale. Une déformation de la surface libre propre à ces systèmes est exploitée pour séparer deux types cellulaires en fonction de leur pouvoir d'adhésion à une surface.

Enfin, la conclusion de cette thèse dresse un bilan du travail accompli durant ces trois années et présente les perspectives envisagées pour expliquer et étudier d'une part le déclenchement spontané de l'oscillation de goutte soumise à des ondes de surface et d'autre part la dynamique asymétrique permettant le déplacement d'une goutte sur une surface.

Remarque : Le chapitre 5 a fait l'objet d'une publication dans le journal Lab on a Chip [112]. Les chapitres 3 et 4 feront l'objet de 2 publications actuellement en cours de rédaction.

## Chapitre 2

# Principes généraux en acoustofluidique et application à l'actionnement d'une goutte

L'acoustofluidique est une branche de la physique étudiant la réaction d'un liquide à une excitation acoustique intense. Elle se situe donc à la frontière entre l'acoustique non linéaire, qui est à l'origine du mouvement, et la mécanique des fluides décrivant la réaction du milieu. Ce domaine, offrant des moyens d'actionnement de liquide et de manipulation de particules aux échelles microscopiques, a connu un regain d'intérêt suite à l'avènement de la microfluidique. Ce chapitre pose les bases des différents phénomènes mis en compétition au sein d'un système microfluidique activé par des ondes acoustiques. Nous nous intéressons en particulier à l'actionnement d'une goutte par ondes acoustiques de surface.

Le plan de ce chapitre suit le cheminement de l'énergie lors d'un actionnement acoustofluidique. Le point de départ est l'énergie propagée par l'onde acoustique de surface dans un solide qui, transmise au liquide sous forme d'une onde acoustique longitudinale, actionne une goutte via des phénomènes non linéaires et des effets microfluidiques tels que la tension superficielle.

Nous commençons donc, dans une première section, par décrire les différents types d'ondes de surface, leurs caractéristiques, ainsi que leurs interactions avec un liquide. Nous mettons alors en exergue les conditions nécessaires pour une transmission d'énergie optimale entre une onde de Rayleigh et une goutte.

Dans une deuxième section, nous nous intéressons au devenir de cette énergie acoustique au sein d'une goutte. En comparant leurs ordres de grandeur, nous séparons les différents types de champs acoustiques pouvant se développer dans le volume et mettons en évidence les conditions requises pour qu'une goutte se comporte comme une cavité acoustique.

Les différents phénomènes acoustiques non linéaires sont alors passés en revue dans une troisième section. Nous distinguerons les effets de surface (pression de radiation) et de volume (streaming ou vent acoustique).

Finalement, dans une dernière section, la réaction du liquide et en particulier les effets capillaires sont abordés. Les différents comportements d'une goutte soumise à des ondes de surface sont alors décrits et interprétés à la lumière des régimes identifiés au cours du chapitre.

#### 2.1 Transmission d'énergie acoustique par ondes de surface

Le confinement de l'énergie au sein d'une petite épaisseur à la surface d'un matériau fait des ondes acoustiques de surface un moyen d'actionnement de liquide efficace. Nous partons de la propagation d'ondes élastiques dans un solide pour mettre en évidence les conditions d'apparition de ces ondes de surface. Nous passons ensuite en revue les différents types d'onde de surface ainsi que leur diverses applications en microfluidique. En dernier lieu, nous nous restreignons à la transmission d'énergie entre une onde de Rayleigh et une goutte.

#### 2.1.1 Ondes acoustiques dans les solides

La propagation d'une onde élastique (acoustique) au sein d'un matériau solide s'appuie sur un réseau ordonné d'atomes aux forces d'interactions importantes. Cette organisation limite le déplacement des atomes et autorise la propagation d'ondes longitudinales mais également transverses, les atomes ne peuvant pas glisser les uns par rapport aux autres.

#### Matériau isotrope

Pour un matériau isotrope, le déplacement d'une particule solide est régi par l'équation de Lamé-Navier :

$$(\Lambda_s + 2\mu_s)\vec{\nabla}(\vec{\nabla}.\vec{u}_s) - \mu_s\vec{\nabla}\times\vec{\nabla}\times\vec{u}_s = \rho_s\frac{\partial^2\vec{u}_s}{\partial t^2},\tag{2.1}$$

où  $\Lambda_s$  et  $\mu_s$  sont les coefficients de Lamé quantifiant les interactions du réseau cristallin excité en compression et en cisaillement,  $\rho_s$  la masse volumique du solide, et  $\vec{u}_s$  le champ de déplacement au sein du volume. Le premier terme de gauche correspond aux efforts de compression-traction exercés par le matériau sur la particule considérée. Le second terme représente les contraintes de cisaillement. La somme de ces "forces" est égale à l'inertie de la particule (terme de droite). Basée sur cette distinction des efforts, la décomposition de Helmholtz permet de séparer les déplacements engendrés par un cisaillement de ceux générés par une compression :

$$\vec{u}_s = \vec{u}_L + \vec{u}_T = \vec{\nabla}\psi_s + \vec{\nabla} \times \vec{A}_s$$

où  $\psi_s$  est le potentiel scalaire associé aux mouvements longitudinaux  $\vec{u}_L$  (compression/traction) et  $\vec{A}_s$  est le potentiel vecteur correspondant aux déplacements transverses  $\vec{u}_T$  (cisaillement). Notons qu'à une direction de propagation donnée est associée une onde de compression (potentiel scalaire) et une infinité d'onde transversales pouvant être décrite par la combinaison de deux ondes élémentaires (potentiel vecteur). L'introduction de cette décomposition dans l'équation 2.1 donne alors naissance à deux équations d'ondes :

$$\frac{\partial^2 \psi_s}{\partial t^2} - V_L^2 \Delta \psi_s = 0 \qquad \text{avec} \qquad V_L = \sqrt{\frac{\Lambda_s + 2\mu_s}{\rho_s}} \tag{2.2}$$

$$\frac{\partial^2 \vec{A_s}}{\partial t^2} - V_T^2 \vec{\Delta} \vec{A_s} = 0 \qquad \text{avec} \qquad V_T = \sqrt{\frac{\mu_s}{\rho_s}}.$$
(2.3)

La différence d'interaction mise en jeu au cours de la propagation de ces deux types de vibration engendre une différence de célérité des ondes.

#### Matériau anisotrope

En réalité, la structure cristalline du solide engendre généralement une anisotropie du matériau. La vitesse d'une onde élastique dépend alors de la direction de propagation, *i.e.* l'interaction des atomes dépend de l'orientation de la propagation par rapport aux axes cristallographiques. Le solide est alors décrit par un tenseur de rang 4 et la loi de Newton pour un matériau anisotrope s'exprime

$$\frac{T_{ij}}{\partial x_j} = \rho_s \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2},\tag{2.4}$$

où i, j=1,2,3 sont les indices des trois dimensions spatiales cartésiennes et  $T_{ij}$  est le tenseur des contraintes.  $T_{ii}$  représente les contraintes de traction-compression et  $T_{ij}$  avec  $i \neq j$  les contraintes de cisaillement. Ces efforts sont reliés aux déformations par la loi de Hooke :

$$T_{ij} = c_{ijkl}S_{kl}$$
 avec  $S_{kl} = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial u_k}{\partial x_l} + \frac{\partial u_l}{\partial x_k}\right).$  (2.5)

Le tenseur des déformations  $S_{kl}$  décrit la déformation induite par le déplacement du réseau, et le tenseur des rigidités  $c_{ijkl}$  exprime la répartition des contraintes imposée par la structure cristalline. Dans le cas d'un matériau isotrope, ce tenseur peut se ramener à une matrice  $3\times 3$ diagonale où seulement deux coefficients sont indépendants. La propagation des ondes dans un milieu anisotrope est finalement régie par un système de 3 équations de propagation

$$c_{ijkl}\frac{\partial^2 u_l}{\partial x_j \partial x_k} = \rho_s \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2}.$$
(2.6)

Remarquons que le tenseur de raideur  $c_{ijkl}$  peut généralement être simplifié par l'expression des propriétés de symétrie du réseau cristallin. En général, la propagation de l'énergie au sein d'un matériau anisotrope n'est pas parallèle à la direction de propagation de l'onde du fait des directions préférentielles induites par la maille élémentaire du solide.

#### Matériau piezoélectrique

La génération d'ondes de surface est généralement réalisée par l'application d'un champ électrique local à la surface d'un solide piézoélectrique. La propagation des ondes élastiques au sein de ces matériaux est alors couplée à une onde électrique induite par la déformation du réseau. Les équations de propagation sont ainsi modifiées pour incorporer les termes de couplage inhérents à la structure cristalline du matériau, *i.e.* une déformation induit un champ électrique et viceversa. Le champ électrique associé à l'onde élastique dérive d'un champ scalaire  $\Phi$ , *i.e.* le champ magnétique résultant de la variation du champ électrique est quasi-nul [113]. Un terme supplémentaire vient alors s'ajouter à l'équation de propagation représentant la contrainte induite par le champ électrique.

$$c_{ijkl}^{E} \frac{\partial^2 u_l}{\partial x_j \partial x_k} + e_{kij} \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x_j \partial x_k} = \rho_s \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2}.$$
(2.7)

La propagation du champ électrique est couplée à la déformation du cristal par la condition d'apport de charge nul (matériau isolant) :

$$e_{jkl}\frac{\partial^2 u_l}{\partial x_j \partial x_k} - \varepsilon_{jk}^S \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x_j \partial x_k} = 0.$$
(2.8)

Les constantes diélectriques et piezoélectriques du solide,  $\varepsilon_{jk}^S$  et  $e_{kij}$ , peuvent également être simplifiées par des considérations de symétrie du cristal. Le couplage du champ électrique et de la déformation induit alors une anisotropie supplémentaire.

La propagation d'ondes élastiques au sein d'un matériau solide dépend donc de la direction de propagation et la direction du vecteur de Pointing (direction de l'énergie) peut différer de celle de l'onde. La représentation des surfaces de lenteur (inverse de la vitesse de propagation) constitue un moyen pratique permettant de mieux comprendre l'évolution de la vitesse de propagation en fonction de l'angle de propagation, et donc l'effet de l'anisotropie sur la direction de l'énergie [113].

#### 2.1.2 Ondes de surface

Ces ondes transversales et longitudinales peuvent se coupler lorsque le milieu de propagation est fini au travers des conditions aux limites donnant ainsi naissance à des ondes inhomogènes localisées proche des interfaces, appelées ondes de surface. Ce type d'onde fut prédit pour la première fois par Lord Rayleigh en 1885 [7] pour un matériau isotrope semi-infini.

#### L'onde de Rayleigh

Afin de mettre en évidence les conditions d'apparition d'une onde de Rayleigh, nous considérons le cas d'un matériau solide isotrope semi-infini borné par une surface libre (figure 2.1). Nous recherchons une onde localisée en surface se propageant suivant  $x_1$ , et représentée par une combinaison d'une onde transversale polarisée en  $x_3$  (vibration selon  $x_3$ ) et d'une onde longitudinale, *i.e.* nous omettons l'onde transversale polarisée en  $x_2$  qui n'est pas couplée avec l'onde longitudinale à l'interface. Nous ne considérons donc que la composante  $A_s$  selon  $x_2$  du potentiel vecteur  $\vec{A}_s$ . On peut alors poser :

$$\psi_s = F(x_3)e^{i(\omega t - kx_1)}, \quad \text{et} \quad A_s = G(x_3)e^{i(\omega t - kx_1)}.$$
 (2.9)

Les équations d'ondes (2.2)-(2.3) s'expriment alors :

$$\frac{\partial^2 F}{\partial x_3^2} - (k^2 - k_L^2)F = 0 \qquad \text{avec} \qquad k_L = \frac{\omega}{V_L}$$
(2.10)

$$\frac{\partial x_3^2}{\partial x_3^2} - (k^2 - k_L)F = 0 \quad \text{avec} \quad k_L = \frac{1}{V_L}$$

$$\frac{\partial^2 G}{\partial x_3^2} - (k^2 - k_T^2)G = 0 \quad \text{avec} \quad k_T = \frac{\omega}{V_T}$$
(2.10)

Si  $k < k_i$  (i = T, L) les solutions pour G et F sont périodiques et correspondent à la somme d'une onde incidente et d'une onde réfléchie à la surface libre. La recherche d'une onde de surface (décroissance en  $x_3$ ) impose donc la condition  $k > k_T > k_L$  ( $V_L > V_T$ ), *i.e.* l'onde de Rayleigh se propage à une vitesse inférieure aux ondes transversales et longitudinales.



FIGURE 2.1: Milieu solide isotrope borné par une surface libre.

Les solutions respectant la décroissance en  $x_3$  sont alors :

$$F(x_3) = F_0 e^{-\gamma_L x_3}$$
 et  $G(x_3) = G_0 e^{-\gamma_T x_3}$ , (2.12)

où  $\gamma_L^2 = k^2 - k_L^2$  et  $\gamma_T^2 = k^2 - k_T^2$ . La condition à la surface libre va alors expliciter le couplage entre les deux ondes et finalement la condition d'existence d'une onde de surface. L'annulation des contraintes à la surface libre s'exprime :

$$T_{33} = (\Lambda_s + 2\mu_s)\frac{\partial^2 \psi_s}{\partial x_3^2} + \Lambda_s \frac{\partial^2 \psi_s}{\partial x_1^2} + 2\mu_s \frac{\partial^2 A_s}{\partial x_3 \partial x_1} = 0$$
(2.13)

$$T_{31} = \mu_s \left( 2 \frac{\partial^2 \psi_s}{\partial x_3 \partial x_1} - \frac{\partial^2 A_s}{\partial x_3^2} + \frac{\partial^2 A_s}{\partial x_1^2} \right) = 0.$$
(2.14)

En utilisant l'expression des potentiels, il vient

$$((\Lambda_s + 2\mu_s)\gamma_L^2 - \Lambda_s k^2)F_0 + 2i\mu_s k\gamma_T G_0 = 0$$
(2.15)

$$2i\gamma_L kF_0 - (\gamma_T^2 + k^2)G_0 = 0. (2.16)$$

Ce système d'équation admet une solution non-triviale pour  $F_0$ ,  $G_0$  si :

$$4\mu_s \gamma_L \gamma_T k^2 = ((\Lambda_s + 2\mu_s)\gamma_L^2 - \Lambda_s k^2)(\gamma_T^2 + k^2).$$
(2.17)

En exprimant les  $\gamma_i$  et les  $k_i$ , en divisant par  $\omega^4$  et en multipliant par  $V_T^4$ , on retrouve alors l'équation de Rayleigh sur  $V = \frac{\omega}{k}$ :

$$4\left(\frac{V_T}{V}\right)^2 \left(\frac{V_T^2}{V^2} - 1\right)^{1/2} \left(\frac{V_T^2}{V^2} - \frac{V_T^2}{V_L^2}\right)^{1/2} = \left(2\frac{V_T^2}{V^2} - 1\right)^2.$$
 (2.18)

Cette équation admet 3 solutions dont une seule respecte  $k > k_T$  ( $V < V_T$ ) qui traduit la condition de non radiation de l'onde de Rayleigh, *i.e.* l'énergie reste localisée à l'interface. La solution  $V_R$  de cette équation, appelée onde de Rayleigh, existe pour tous les solides et est telle que  $0,87V_T < V_R < 0,96V_T$  par une considération sur le module de poisson.



FIGURE 2.2: Propagation d'une onde Rayleigh à la surface d'un matériau solide (droite). Le mouvement elliptique des particules s'inverse et décroit avec la profondeur [113] (gauche).

La combinaison de l'onde longitudinale et transversale résulte en un mouvement elliptique des particules dont la composante tangentielle à la surface est dirigée dans le sens inverse de la propagation (figure 2.2). L'onde transversale pénètre plus en profondeur ( $\gamma_L < \gamma_T$ ) et le sens de rotation des particules solides s'inverse lorsque  $u_1$  s'annule. Finalement, l'onde de Rayleigh est confinée dans une épaisseur de l'ordre de la longueur d'onde de surface  $\lambda_S$ .

Pour un matériau anisotrope et/ou piézoélectrique, ces ondes de surfaces existent également, mais exigent un mouvement en 3 dimensions de la surface, introduisant un couplage avec le déplacement parallèle à  $x_2$ . Pour le niobate de lithium utilisé au cours de cette thèse, la vitesse de l'onde de "quasi-Rayleigh" est déterminée numériquement et dépend de la direction de propagation.

#### Différents types d'ondes de surface

L'onde de Rayleigh est la seule onde de surface se propageant à la surface d'un matériau isotrope non-piézoélectrique semi-infini. Cependant d'autres types d'ondes peuvent être excitées lorsque le matériau considéré est piézoélectrique, d'épaisseur finie ou encore lorsque le milieu de propagation est inhomogène.

Au sein d'un matériau fortement piezoélectrique possédant certaines propriétés de symétrie [113], des ondes de surface dite de Bleustein-Gulyaev purement transverses peuvent être excitées (figure 2.3). L'énergie de ces ondes est localisée dans une épaisseur plus importante qu'une onde de Rayleigh ~  $100\lambda_S$ .

Lorsque l'épaisseur du solide est comparable à la longueur d'onde  $\lambda_S$ , des ondes stationnaires peuvent se développer dans l'épaisseur et donner naissance à des ondes dites de plaques. Ces ondes se propagent à des fréquences discrètes dans la direction "longue" de la plaque (figure 2.3). On peut distinguer les ondes SH-APM (Shear Horizontal Acoustic-Plate-Mode) où l'onde stationnaire est transversale et les ondes de Lamb présentant une polarisation quasi-elliptique à l'instar des ondes de Rayleigh. Ces dernières peuvent être symétriques ou antisymétriques.

L'ajout d'une couche mince isotrope sur un matériau piézoélectrique semi-infini peut servir de guide pour des ondes transverses horizontales, appelées ondes de Love, à la condition que la vitesse des ondes transverses dans la couche guidante soit inférieure à celle dans le substrat piézoélectrique. L'énergie est alors principalement localisée dans la couche mince (figure 2.3).

Ces ondes de surfaces peuvent être séparées en deux catégories : les ondes transverses horizontales (SH) et les ondes polarisées quasi-elliptiques. Ces deux classes d'ondes sont utilisées en acoustofluidique, où un liquide est placé sur le solide, à des fins différentes [115]. Les ondes SH, transmettant peu d'énergie au fluide (cisaillement de la couche limite liquide), sont utilisées comme capteurs pour mesurer l'interaction de bio-molécule avec la surface, l'adhésion de cellules ou encore des propriétés physiques telles que la viscosité [115]. La seconde catégorie est utilisée, elle, pour actionner un liquide. En effet, ces ondes grâce à l'excitation de déplacements normaux à la surface peuvent générer une onde acoustique au sein du liquide et un transfert d'énergie efficace s'opère alors.



FIGURE 2.3: Différents types d'ondes de surface. Images des références [113] et [114].

#### Ondes d'actionnement microfluidique

Les ondes de Lamb sont excitées pour des épaisseurs e de l'ordre de la longueur d'onde. Pour une configuration où  $e < \lambda_S$ , ces ondes peuvent transporter plus efficacement l'énergie acoustique qu'une onde de Rayleigh où l'énergie est confinée dans une épaisseur plus importante  $\lambda_S$  [116]. De plus, dans les matériaux piézoélectriques utilisés pour la génération d'onde, les coefficients de couplage électromécanique, traduisant la conversion d'énergie électrique-mécanique, associés à des ondes de plaques sont généralement plus élevés que ceux associés à l'onde de Rayleigh.

Les fréquences d'actionnement d'un liquide étant de l'ordre du MHz, les ondes de plaques apparaissent lorsque le solide a une épaisseur inférieure à la centaine de microns, pour du niobate de lithium, une fréquence de 20 MHz correspond à une longueur d'onde de 175  $\mu$ m. Une telle épaisseur du substrat induit une fragilité au choc et nécessite des microfabrications plus complexes [117] ou un amincissement du substrat piézoélectrique. Cependant, les ondes de Lamb peuvent être générées grâce à l'excitation d'un plaque non-piézoélectrique (peu onéreuse) par un matériau piézoélectrique [118, 119]. Le moyen d'excitation est alors découplé du milieu de propagation qui peut aisément être changé. Les études sur l'influence des propriétés de volume ou de surface du solide sur la dynamique de goutte s'en retrouvent grandement facilitées.
Les différentes études menées dans cette thèse ont été réalisées par l'application d'ondes de Rayleigh mais l'utilisation d'ondes de plaque sera à considérer pour de futurs travaux.

## Génération d'onde de Rayleigh

Le principe de génération des ondes acoustiques de surface a été développé en premier lieu dans le domaine de la télécommunication pour l'élaboration de filtre efficace. Ces innovations ont permis alors à l'acoustofluidique par ondes de surface de se développer rapidement. La génération d'ondes de surface exploite le couplage entre le champ électrique et élastique d'un matériau piézoélectrique en appliquant une tension U à un réseau d'électrodes appelé peigne interdigité (figure 2.4). Le matériau piézoélectrique utilisé est un substrat de niobate de lithium permettant d'obtenir les meilleurs couplages électro-mécaniques [120].



FIGURE 2.4: Schéma d'un transducteur à onde de Rayleigh.

La fréquence de résonance de cette structure est alors déterminée par l'espacement a entre deux électrodes par la relation :

$$f_g = \frac{V_R}{\lambda} = \frac{V_R}{2a}.$$
(2.19)

Ainsi sous une excitation électrique de fréquence  $f_g$ , les dilatations-compressions générées par le champ électrique vont interférer de manière constructive propageant alors une onde de Rayleigh de part et d'autre des peignes interdigités. Par une modification de la géométrie, il est possible de générer des ondes de Rayleigh seulement dans une direction, on parle alors de SPUDT ("Single Phase UniDirectional Transducer"). Au cours de nos travaux, nous avons mis en place le design EWC ("Electrode Width Controled") [121] permettant de réduire l'émission à l'arrière du transducteur par l'utilisation de réflexion interne sur des électrodes plus larges insérées dans le réseau.

# 2.1.3 Radiation d'énergie en présence d'un fluide

Nous nous concentrons maintenant sur l'interaction entre une onde de Rayleigh et un fluide. Notons que les différents résultats exposés pourront être adaptés aux ondes de Lamb en raison des similarités des déplacements excités [122].

## Equation de Stoneley

Nous reprenons le problème exposé dans la section 2.1.2 en remplaçant le vide par un fluide. Une onde longitudinale peut donc également se propager dans le volume supérieur, le déplacement transverse transmis par effets visqueux étant, lui, atténué rapidement. Le champ de vitesse  $\vec{v}$  dans le fluide peut donc être considéré comme irrotationnel et découle d'un potentiel  $\psi_f$ respectant l'équation de propagation  $\frac{\partial^2 \psi_f}{\partial t^2} - c_f^2 \Delta \psi_l = 0$ , où  $c_f$  est la célérité du son dans le fluide. Nous recherchons alors des solutions de la forme :

$$\psi_f = H_0 \mathrm{e}^{\gamma_f x_3} \mathrm{e}^{i(\omega t - kx_1)}, \tag{2.20}$$

où  $\gamma_f^2 = k^2 - k_f^2$ , notons que l'onde dans le fluide se propage en  $-x_3$ . Les conditions de couplages sont alors modifiées par la présence du fluide. Les contraintes visqueuses dans le fluide étant négligeables devant le terme de pression [123], la continuité des contraintes en  $x_3 = 0$  s'écrit alors :

$$T_{33} = -p = \rho_f \frac{\partial \psi_f}{\partial t} \qquad \text{et} \qquad T_{31} = 0.$$
(2.21)

S'ajoute à ces équations la condition de continuité de la vitesse normale :

$$\frac{\partial u_3}{\partial t}\Big|_{Solide} = v_3|_{Fluide} \Leftrightarrow \frac{\partial^2 \psi_s}{\partial t \partial x_3} + \frac{\partial^2 A_s}{\partial t \partial x_1} = \frac{\partial \psi_f}{\partial x_3}, \tag{2.22}$$

conduisant au système suivant :

$$((\Lambda_s + 2\mu_s)\gamma_L^2 - \Lambda_s k^2)F_0 + 2i\mu_s k\gamma_T G_0 - i\rho_f \omega H_0 = 0$$
(2.23)

$$2i\gamma_L kF_0 - (\gamma_T^2 + k^2)G_0 = 0 (2.24)$$

$$-i\omega\gamma_L F_0 + \omega k G_0 - \gamma_f H_0 = 0. \tag{2.25}$$

Ce système admet alors des solutions non-triviales si son déterminant est nul. Après réarrangement il vient :

$$4\left(\frac{V_T}{V}\right)^2 \left(\frac{V_T^2}{V^2} - 1\right)^{1/2} \left(\frac{V_T^2}{V^2} - \frac{V_T^2}{V_L^2}\right)^{1/2} - \left(2\frac{V_T^2}{V^2} - 1\right)^2 - \frac{\rho_f}{\rho_s} \frac{\left(\frac{V_T^2}{V^2} - \frac{V_T^2}{V_L^2}\right)^{1/2}}{\left(\frac{V_T^2}{V^2} - \frac{V_T^2}{c_f^2}\right)^{1/2}} = 0. \quad (2.26)$$

Cette l'équation, dite de Stoneley [124] pour une interface fluide-solide, résume la condition d'apparition d'ondes de surface lorsque le solide est recouvert par un fluide. On remarque que les deux premiers termes sont identiques à l'équation de Rayleigh (2.18) et traduisent les couplages entres les ondes longitudinales et transverses dans le solide. Le dernier terme est ajouté pour tenir compte du chargement de l'interface par un fluide et tend vers 0 si  $\rho_f \rightarrow 0$  (vide).

## **Ondes d'interface**

Les solutions de cette équation sont donc des ondes de surface pouvant se propager à l'interface (ondes d'interface). La condition de confinement de l'énergie à la surface du solide ( $V < V_T$ ) écarte 6 des 8 solutions de cette équation et seulement deux de ces solutions correspondent aux ondes recherchées [125].

La première solution est réelle  $(V_{St} < c_f)$  et correspond à l'onde de Stoneley se propageant à l'interface dans le solide et le liquide. Les  $\gamma_i$  sont réels  $(k^2 > k_f^2 > k_T^2 > k_L^2)$  et l'onde se propage sans perte d'énergie. Pour un liquide, cette onde est également appelé onde de Scholte. A l'instar d'une onde de Rayleigh, cette onde est excitable pour tous les couples de fluides-solides.

La seconde solution  $V_{Rg}$  de l'équation est complexe et correspond à l'onde de Rayleigh généralisée ("leaky Rayleigh wave"). La partie complexe de la solution traduit une atténuation de l'onde au cours de sa propagation. Le milieu étant considéré non-dissipatif, cette atténuation ne peut venir que d'une fuite d'énergie vers l'un des deux milieux. La condition  $V < V_T$  interdisant la radiation dans le solide, l'énergie est transmise au fluide. L'existence de cette onde est donc restreinte au cas  $c_f < V_T$ . Cependant une seconde condition, moins triviale, sur le rapport de densité des paires solide-liquide doit également être satisfaite [126] (figure 2.5). Lorsque cette solution existe, sa vitesse de propagation ( $\operatorname{Re}(V_{Rg})$ ) est légèrement supérieure à celle d'une onde de Rayleigh "libre" (chargement de l'interface par un fluide) et  $\operatorname{Im}(V_{Rg}) \ll \operatorname{Re}(V_{Rg})$  [125].



FIGURE 2.5: Condition d'existence de l'onde de Rayleigh généralisée résumée dans le plan  $(c_f/V_L, c_f/V_T)$  [126].

Le champ acoustique rayonné par l'onde de surface va jouer le rôle de moteur du mouvement en acoustofluidique, sa connaissance est nécessaire pour de futures études. Nous exprimons donc le potentiel des vitesses  $\psi_f$  associé à l'onde de Rayleigh généralisée. Le nombre d'onde de l'onde de surface peut s'écrit  $k = k_r + ik_i$  avec  $k_i \ll k_r$  et le nombre  $\gamma_f$  est alors égale à (Annexe A) :

$$\gamma_f \approx \frac{k_r k_i}{\sqrt{k_f^2 - k_r^2}} + i\sqrt{k_f^2 - k_r^2}.$$
 (2.27)

Le potentiel des vitesses dans le fluide s'écrit alors :

$$\psi_f = H_0 e^{\frac{k_r k_i}{\sqrt{k_f^2 - k_r^2}} x_3 + k_i x_1} e^{i(\omega t - k_r x_1 + \sqrt{k_f^2 - k_r^2} x_3)}, \qquad (2.28)$$

où  $k_i < 0$  car l'onde s'atténue au cours de sa propagation en  $x_1$ , *i.e.* rayonnement dans le fluide. La direction de propagation de l'onde rayonnée est déterminée par le terme propagatif, l'exponentielle complexe, qui peut se réécrire sous la forme  $e^{i(\omega t - \vec{k}_f \cdot \vec{r})}$ , où  $\vec{k}_f$  est le vecteur d'onde de l'onde rayonnée et  $\vec{r}$  le vecteur position. En posant  $\theta$  l'angle entre la direction de propagation et la normale à l'interface dirigée suivant  $-x_3$  on obtient :

$$k_f \sin \theta = k_r$$
 et  $k_f \cos \theta = \sqrt{k_f^2 - k_r^2}$ . (2.29)

On retrouve alors la loi de Snell-Descartes (première équation) pour une onde de surface  $k_f \sin \theta_R = k_r$  et l'onde est rayonnée dans le fluide avec un angle correspondant à l'angle de Rayleigh  $\theta_R$  (figure 2.6). L'exponentielle réelle correspond à l'amplitude du champ dans le fluide et est représentée en figure 2.6. L'amplitude décroit sur un plan d'onde dans le fluide du fait de l'atténuation de l'onde de surface qui transmet de moins en moins d'énergie. Nous pouvons remarquer que le potentiel  $\psi_f$  tend vers l'infini pour  $x_3 \to -\infty$  et  $x_1$  fixé. Cette zone correspond à la zone non-irradiée par l'onde de surface et n'a donc pas de réalité physique.



FIGURE 2.6: Schéma de l'onde rayonnée dans le fluide par une onde de Rayleigh généralisée.

## Transfert d'énergie par onde acoustique de surface

Le mécanisme de transmission d'énergie d'une onde de Rayleigh généralisée présente donc deux avantages majeurs : (1) le transfert peut être total, l'onde de surface rayonne son énergie au cours de sa propagation et (2) celui-ci peut s'effectuer sur de courtes distances si la longueur caractéristique de transmission  $L_R = \frac{1}{|k_i|}$  est petite. La connaissance de la partie imaginaire de l'onde de Rayleigh généralisée est donc nécessaire pour évaluer le transfert d'énergie.

Malheureusement, la résolution de l'équation de Stoneley ne peut se faire analytiquement. La solution exacte de l'équation est donc trouvée numériquement [125]. Ces résultats montrent que la partie réelle (vitesse de l'onde) est légèrement supérieure à la vitesse de l'onde de Rayleigh "libre" et la partie imaginaire évolue linéairement avec la fréquence et est proportionnelle au rapport des impédances acoustiques. Motivé par ces observations, un ordre de grandeur du coefficient d'atténuation  $\alpha_R = -k_i$  a été dérivé par Dransfeld et Salzmann [127] grâce à un bilan de puissance que nous allons maintenant décrire.

Le déplacement à l'interface d'une onde de Rayleigh peut être séparé en une composante normale et une composante tangentielle. Cette dernière peut être négligée dans une première approche car elle existe dans une couche limite de faible épaisseur liée à la dissipation visqueuse. Nous ne considérons donc que le déplacement normal de l'onde, responsable de la génération de l'onde dans le fluide et a fortiori de l'atténuation de l'onde de Rayleigh. Le bilan de puissance acoustique est réalisé sur un volume de solide localisé à l'interface, de longueur dx, de largeur arbitraire bet de profondeur  $\lambda_S$ , l'épaisseur de confinement de l'énergie de l'onde de Rayleigh (figure 2.7).



FIGURE 2.7: Bilan d'énergie sur un volume de contrôle du solide.

La puissance transportée par l'onde de Rayleigh est estimée à partir du déplacement acoustique normal  $a_n$  à la surface par la formule [127] :

$$P_{ac} = \langle I_s \rangle b\lambda_S = \rho_s V_R \left\langle \left(\frac{\partial u_3}{\partial t}\right)^2 \right\rangle b\lambda_S = \frac{1}{2} \rho_s V_R a_n^2 \omega^2 b\lambda_S = 2\pi^2 \frac{\rho_s V_R^3 a_n^2 b}{\lambda_S}$$
(2.30)

où  $I_s$  représente l'intensité acoustique de l'onde et  $\langle . \rangle$  représente la moyenne temporelle. Notons que cette puissance est une approximation de la puissance réelle qui est égale à  $I_s =$  $-\operatorname{Re}(T_{13})\operatorname{Re}(\frac{\partial u_1}{\partial t}) - \operatorname{Re}(T_{33})\operatorname{Re}(\frac{\partial u_3}{\partial t})$ . La puissance associée aux mouvements tangentiels est donc négligée dans cette approche mais devra être considérée pour un calcul rigoureux étant donné le couplage entre les deux déplacements. En supposant que l'intensité de l'onde rayonnée est seulement due à la composante normale, la puissance transmise au liquide est estimée de la même manière :

$$dP_{ac} = 2\pi^2 \frac{b\rho_f c_f{}^3 a_n{}^2}{\lambda_f^2} dx = 2\pi^2 \frac{b\rho_f c_f V_R{}^2 a_n{}^2}{\lambda_S^2} dx.$$
 (2.31)

Finalement le coefficient de radiation de l'énergie s'écrit :

$$-k_i \approx \alpha_R = \frac{1}{P_{ac}} \frac{dP_{ac}}{dx} = \frac{\rho_f c_f}{\rho_s V_R \lambda_S} = \frac{\rho_f c_f f}{\rho_s V_R^2} = \frac{Z_f}{Z_R \lambda_S},$$
(2.32)

où f est la fréquence de l'onde de Rayleigh. Ainsi, la transmission d'énergie au liquide est plus efficace pour des fréquences élevées et est liée au rapport des impédances acoustiques. Contrairement à une onde de volume, une transmission efficace ne passe pas forcément par une adaptation d'impédance pour une onde de surface. La valeur du rapport d'impédance est limitée par la condition d'existence de l'onde de Rayleigh généralisée (figure 2.5) et est généralement inférieure à l'unité. Pour des fluides de faible impédance acoustique tel que des gaz, peu d'énergie est transmise et l'onde de Rayleigh peut donc actionner des fluides à distance. Remarquons qu'un raisonnement similaire peut être mené pour calculer le coefficient d'atténuation de l'onde longitudinale (dans le solide) [127]. Celui-ci étant très inférieur à  $\alpha_R$ , cette dissipation liée à la viscosité du fluide est négligée.

Ce résultat est un ordre de grandeur du transfert s'opérant à l'interface et semble légèrement sous-estimé [128], *i.e.*  $\alpha_R^{exp} = F \alpha_R$  où F > 1. Une correction de ce coefficient peut être apportée en considérant l'inclinaison de la direction de propagation dans le fluide, ainsi :

$$\langle v_f^2 \rangle = \frac{\left\langle \left(\frac{\partial u_3}{\partial t}\right)^2 \right\rangle}{(\cos \theta_R)^2} = \frac{a_n^2 \omega^2 V_R^2}{V_R^2 - c_f^2} \quad \text{et} \quad \alpha_R' = \alpha_R \frac{1}{1 - \frac{c_f^2}{V_R^2}}.$$
(2.33)

Cette correction permet de se rapprocher du cas réel ( $\alpha'_R > \alpha_R$ ) mais n'est pas suffisante. Notons qu'une solution plus précise de la partie imaginaire de l'onde de Rayleigh généralisée peut être approchée à l'aide de l'équation de Stoneley [129], cependant cette estimation repose sur l'hypothèse  $\rho_f \ll \rho_s$  introduisant une erreur non négligeable pour le couple niobate de lithium-eau utilisé au cours de ces travaux. Ces calculs ont été menés pour un solide isotrope et deviennent complexes pour des matériaux piézoélectriques anisotropes nécessitant alors une approche numérique [130]. Dans la suite, nous utiliserons donc le coefficient donné par (2.32) en gardant en mémoire que celui-ci devra être corrigé pour une approche plus quantitative.

## Puissance acoustique transmise à une goutte

Lorsqu'une goutte de liquide est placée sur le chemin d'une onde de Rayleigh, elle reçoit de l'énergie par l'intermédiaire de l'onde de Rayleigh généralisée. La quantité d'énergie reçue par le liquide dépend alors de la dimension caractéristique de la goutte et de la distance d'atténuation de l'onde. La comparaison de ces deux dimensions  $r_{trans} = \frac{R_0}{L_R}$  varie avec le volume et la fréquence d'excitation (figure 2.8).

A hautes fréquences, toute l'énergie de l'onde de surface est absorbée par une goutte (zone blanche) et pour des fréquences inférieures à 20 MHz, la puissance de l'onde de Rayleigh



FIGURE 2.8: Carte du critère de transmission  $r_{trans}$  en fonction du volume de goutte et de la fréquence d'excitation pour une goutte d'eau sur un substrat de niobate de lithium.

généralisée n'est que partiellement transférée au liquide. En nanofluidique, la fréquence limite  $f_l$  au delà de laquelle l'onde de Rayleigh généralisée rayonne toute son énergie augmente en  $f_l \sim V^{-1/3}$ . Les ondes de surfaces de fréquences supérieures à  $f_l$  sont donc des candidats idéaux pour transmettre de l'énergie au sein de systèmes microfluidiques.

La répartition de l'énergie incidente dépend également du mécanisme de transfert de l'onde de Rayleigh généralisée (figure 2.9). Lorsque la transmission est totale (à haute fréquence), l'énergie est confinée sur une faible surface contrairement à une transmission partielle où celle-ci est répartie de manière plus homogène à la surface de contact. Notons que ce confinement va avoir une influence sur l'intensité des phénomènes acoustiques non linéaires excités.



FIGURE 2.9: Evolution de la répartition de l'intensité acoustique à la zone de contact liquidesolide pour une goutte d'eau de 10  $\mu$ L et du niobate de lithium.

Nous avons considéré ici que toute l'énergie de l'onde de Rayleigh "libre" pénétrait dans le liquide. Cependant, il faut distinguer le transfert entre l'onde de Rayleigh généralisée et le liquide (étudié ci-dessus) qui peut être total, et l'échange entre l'onde de Rayleigh "libre" et l'onde de Rayleigh généralisée qui lui va dépendre de la diffraction à la ligne de contact [131]. En effet, la

discontinuité de la contrainte normale (pression dans le fluide) fait diffracter l'onde de Rayleigh incidente et des ondes réfléchies par la ligne de contact sont émises dans le matériau solide limitant l'énergie transmise au liquide (figure 2.10). S'ajoutant à ces réflexions, des interférences s'opèrent à la zone de contact, dues à la géométrie circulaire de l'interface liquide-solide (figure 2.10). En prenant en compte ces phénomènes, le coefficient de transmission (rapport entre la puissance absorbée par le liquide et la puissance incidente) augmente avec le rapport  $\frac{R_0}{\lambda_S}$  ( $\alpha_R$ augmente) et atteint un maximum ~ 70 % (pour de l'eau) pour  $\frac{R_0}{\lambda_S} = 5$ . A des fréquences plus importantes, la diffraction de l'onde de Rayleigh par la ligne de contact devient de plus en plus importante et la transmission chute à 25 % pour  $\frac{R_0}{\lambda_S} = 20$  [131].



FIGURE 2.10: A gauche : champ acoustique dans le solide en prenant en compte les effets de diffraction et de rayonnement au liquide. A droite : champ acoustique de l'onde de Rayleigh généralisée pour  $\frac{R_0}{\lambda_S} = 5$  [131].

Comme nous l'avons vu dans la section 2.1.3, deux types d'onde peuvent se propager le long d'une interface liquide-solide : l'onde de Rayleigh généralisée et l'onde de Scholte. Une limitation du transfert d'énergie est également envisageable du fait d'une conversion de l'onde de Rayleigh en onde de Scholte qui ne rayonne pas d'énergie au liquide. de Billy *et al.* [132] ont montré que cette limitation dépend fortement de l'angle de contact entre le liquide et le solide. Plus récemment, Quintero et al. [133] ont mis en évidence la propagation d'onde de Stoneley le long de la ligne de contact en analysant les échos émis par une goutte.

Nous pouvons supposer que plusieurs autres phénomènes seront à considérer pour une détermination rigoureuse d'un facteur de transmission entre le solide et le liquide : (1) le champ acoustique s'établissant dans le liquide peut influencer la répartition de l'énergie à l'interface solide-liquide, (2) la rémission d'onde dans le solide sous forme d'onde de volume (onde longitudinale et transversale), et (3) l'anisotropie du solide (cristal piezoélectrique) va également modifier la diffraction et le champ acoustique dans le solide. Finalement, le calcul du coefficient de transmission devra faire appel à des méthodes numériques pour inclure ces différents effets.

En conclusion, l'utilisation d'ondes de surface au sein d'un système microfluidique permet de transférer d'importantes quantités d'énergie acoustique sur de courtes distances. De plus, ces ondes rayonnent peu d'énergie au gaz et peuvent se propager à l'interface entre deux solides (ondes de Stoneley) [113]. Ainsi, le liquide peut être activé à distance et peut être encapsulé sans que la transmission ne soit perturbée [134].

# 2.2 Champ acoustique généré dans une goutte

Nous nous intéressons maintenant au devenir de l'onde acoustique transmise au liquide. Est-elle réémise, dissipée ou bien s'organise-t-elle selon un champ acoustique complexe? Pour répondre à ces questions nous commençons par étudier les caractéristiques acoustiques d'une goutte. Puis, par des comparaisons d'ordres de grandeur, nous distinguons les différents régimes se développant au sein du liquide. Finalement, nous estimons l'énergie acoustique accumulée par une goutte dans un cas particulier.

# 2.2.1 Caractéristique acoustique d'une goutte

Une goutte soumise à des ondes acoustiques peut être vue comme une cavité acoustique. Les propriétés de celle-ci sont alors déterminantes pour connaître le champ acoustique s'y développant. Cette cavité est constituée de deux interfaces qui peuvent échanger de l'énergie avec le milieu extérieur. L'interface liquide-air et la zone de contact liquide-solide qui sont caractérisées, du point de vue acoustique, par le calcul de leur coefficient de transmission.

Le coefficient de transmission énergétique d'une interface entre deux fluides dépend de l'angle d'incidence  $\theta_i$  de l'onde via la formule

$$T_{lg} = \frac{4Z_g Z_l \cos \theta_g \cos \theta_i}{(Z_g \cos \theta_i + Z_l \cos \theta_g)^2} \qquad \text{avec} \qquad Z_i = \rho_i c_i, \qquad \frac{\sin \theta_g}{c_g} = \frac{\sin \theta_i}{c_l}$$

où les indices g, l représente le gaz (l'air dans notre cas) et le liquide. L'angle de réfraction  $\theta_g$  est donné par la loi de Snell-Descarte et  $c_i$  est la célérité du son dans le milieu d'indice i. Pour l'interface avec le solide, ce coefficient diffère car l'onde incidente peut générer des ondes transversales (repérées par un indice T) et longitudinales (repérées par un indice L) au sein du solide. Nous ne considérons ici que de l'énergie perdue par le liquide lors d'une réflexion à l'interface solide-liquide indépendamment du type d'onde générée dans le solide. Par conservation de l'énergie  $T_{ls} = 1 - R_{ls}$ , où  $R_{ls}$  est le coefficient de réflexion déterminé par Royer [113], et nous obtenons finalement

$$T_{ls} = \frac{4(u^2 \sin 2\theta_T \sin 2\theta_L + \cos^2 2\theta_T) \frac{Z_l \cos \theta_L}{Z_L \cos \theta_i}}{(u^2 \sin 2\theta_T \sin 2\theta_L + \cos^2 2\theta_T + \frac{Z_l \cos \theta_L}{Z_L \cos \theta_i})^2} \quad \text{avec} \quad u = \frac{V_T}{V_L}, \quad Z_L = \rho_s V_L,$$

où  $V_T$  (resp.  $V_L$ ) représente la vitesse de propagation des ondes transverses (resp. longitudinales).  $\theta_T$ ,  $\theta_L$  sont les angles de transmission des ondes transverses et longitudinales donnés par la loi de Snell-Descartes :

$$\frac{\sin \theta_i}{c_l} = \frac{\sin \theta_T}{V_T} = \frac{\sin \theta_L}{V_L}$$

Le niobate de lithium (le solide) étant anisotrope, les vitesses des ondes dans le solide, et donc le coefficient de transmission, dépendent de l'angle entre le plan d'incidence et les axes cristallographiques. En première approximation, nous prenons une valeur moyenne des vitesses des ondes transverses et longitudinales [135]. L'évolution de ces coefficients de transmission en fonction de l'angle d'incidence est représentée sur la figure 2.11.



FIGURE 2.11: Evolution des coefficients de transmission de l'interface air-liquide  $(T_{lg})$  et solideliquide  $(T_{ls})$  en fonction de l'angle d'incidence  $\theta_i$ .

Le coefficient de transmission de l'interface liquide-air est négligeable  $T_{lg} \sim 10^{-3}$  et cette interface peut être considérée comme totalement réfléchissante. Pour l'interface solide, l'énergie est transmise sous forme d'ondes longitudinales (transversales) seulement pour une plage limitée de l'angle d'incidence  $0 < \theta_i < \theta_L^c(\theta_T^c)$ . Cette valeur critique de l'angle d'incidence correspond à l'angle  $\theta_L = \frac{\pi}{2}$ , les ondes longitudinales se propagent le long de l'interface mais aucune puissance n'est transmise [113]. Notons que, lorsque l'angle d'incidence est supérieur à  $\theta_T^c$ , les deux types d'ondes sont générées à l'interface et peuvent se combiner en une onde de Rayleigh, *i.e.* l'angle de Rayleigh  $\theta_R$  est légèrement supérieur à  $\theta_T^c$ . Nous ne prenons ici pas en compte les ondes surfaces pouvant être excitées. Finalement, l'énergie ne se transmet au solide que pour une plage d'angle restreinte et le coefficient de transmission n'excède jamais 25 %.

La cavité fuit très peu et l'onde transmise au liquide est faiblement réémise. Une goutte va donc accumuler de l'énergie sous forme acoustique et un champ acoustique va se développer dans le liquide.

# 2.2.2 Dissipation visqueuse : comparaison du champ acoustique incident et réfléchi

Le champ s'établissant dans une goutte dépend de la capacité du milieu à atténuer une onde. En effet, si une onde acoustique est dissipée avant même d'atteindre une interface, le champ acoustique dans le liquide est alors seulement dû à l'onde incidente, on parle alors de champ incident ou direct. Les effets dissipatifs d'un milieu fluide sont caractérisés par la longueur d'atténuation  $L_{att}$  représentant la distance parcourue par une onde avant d'être atténuée :

$$L_{att} = \frac{2\rho_l c_l^3}{(\frac{4}{3}\mu + \mu^b)\omega^2}$$

où  $\mu$  (respectivement  $\mu^b$ ) est la viscosité de cisaillement (resp. de volume), et  $\omega$  la pulsation de l'onde acoustique. En divisant cette distance par la taille caractéristique de la cavité (le rayon  $R_0$  de goutte), nous obtenons alors le nombre de réflexion de l'onde.

Pour des fréquences en deçà de 40 MHz, le nombre de réflexion est supérieur à 20, l'onde s'atténue peu et le champ acoustique acoustique est principalement dû aux multiples réflexions (figure 2.12). On parle alors de champ réfléchi. Lorsque la fréquence d'excitation de l'onde est supérieure à 70 MHz, l'onde est fortement atténuée et peu, ou pas, de réflexions sont observées. Le champ acoustique dans le liquide se ramène alors à la propagation atténuée de l'onde transmise au liquide soit uniquement le champ incident. Entre ces deux fréquences, le champ est une combinaison du champ incident et réfléchi. Ces résultats sont obtenus pour de l'eau mais pourraient être adaptés à des liquides de viscosités différentes. La transition entre les deux régimes est inversement proportionnelle à la viscosité.

En conclusion, l'atténuation visqueuse de l'onde influence le champ acoustique stationnaire au sein de la cavité en modulant l'importance des réflexions par rapport à l'onde incidente. Nous nous intéressons maintenant au cas faiblement atténué où un champ complexe s'établit.



FIGURE 2.12: Carte représentant le nombre de réflexion  $L_{att}/R_0$  en fonction du volume de goutte et de la fréquence de l'onde pour une goutte d'eau. Les demi-sphères représentent le champ de pression s'établissant dans une goutte.

# 2.2.3 Cavité normale et chaotique

Au sein d'une cavité acoustique, les multiples réflexions des ondes sur les parois du système peuvent exciter des ondes stationnaires et engendrer la mise en résonance de la cavité. Ces ondes stationnaires sont appelées modes propres ou de résonance de la cavité. Si tous les modes propres sont connus, il est alors possible d'étudier le champ acoustique se développant dans une cavité de manière déterministe grâce à la décomposition modale, *i.e.* le champ résultant étant la somme des contributions de chaque mode propre à l'excitation imposée. Cependant cette méthode n'est plus applicable si les modes propres du système ne sont pas orthogonaux entre eux, *i.e.* lorsqu'il y a recouvrement du pic de résonance (en fréquence) d'un mode avec un autre. L'orthogonalité est vérifiée si les phénomènes dissipatifs sont négligés, le pic de résonance correspond alors à un Dirac et aucun recouvrement n'est observé. En réalité, l'énergie d'un mode propre est dissipée par la viscosité du milieu et/ou est transférée au milieu extérieur lors des réflexions. La largeur des pics de résonance est alors non nulle et un recouvrement entre modes est possible. Lorsque plusieurs modes propres se recouvrent, la cavité est dite chaotique et le champ acoustique, qualifié de diffus, est étudié de manière statistique. Le critère proposé par Schroeder [136] pour déterminer le caractère normal (non recouvrement des modes propres) ou chaotique d'une cavité repose sur la comparaison entre la distance (du point de vue fréquentiel) moyenne entre deux modes propres et la largeur moyenne de leur pics. Dans un premier temps, nous allons donc nous intéresser à la densité spectrale d'une cavité et en particulier à son évolution avec la fréquence. Puis la largeur des pics de résonance sera déterminée par une estimation du facteur d'atténuation. L'application du critère de Schroeder nous permettra alors de conclure sur le caractère normal ou chaotique d'une goutte soumise à des ondes acoustiques de surfaces. Finalement, ce critère empirique est retrouvé par une considération physique sur la longueur d'onde.

## Densité spectrale des modes propres

Considérons un cas 1D constitué de deux parois rigides réfléchissantes. Lorsqu'une onde acoustique se propage d'un bord vers l'autre, celle-ci va alors être réfléchie et être renvoyée vers le bord incident, donnant naissance à une onde stationnaire si la demi-longueur d'onde acoustique est un entier de la distance (d) séparant les deux parois :  $n\frac{\lambda}{2} = d$  avec n entier. Le nombre  $(N_f)$ de modes propres compris entre 0 et  $f_n$  est égal à :  $N_f = \frac{2df_n}{c}$ , et la densité spectrale de mode propre est :  $\frac{dN_f}{df} = \frac{2d}{c}$ . Ainsi pour une cavité 1D, cette densité est constante dans le domaine fréquentiel.

Pour une goutte posée, considérée comme un hémisphère, les modes acoustiques vont se décomposer sur les harmoniques sphériques [137]. Notons que les modes acoustiques d'une goutte peuvent être déterminés analytiquement en modifiant la condition aux limites sur le rayon dans l'article de Flanagan [137]. Nous lui préférons une méthode numérique utilisant le logiciel COMSOL Multiphysics. La figure 2.13 représente les premiers modes propres d'une goutte d'un millimètre de rayon. Le mode fondamental correspond au mode de gonflement du rayon (radial) et est associé à une fréquence de 740 kHz et  $\frac{\lambda}{2} = R_0$ . Les modes suivants correspondent à des harmoniques sphériques zonales, sectoriales et tesserales, et des modes radiaux supérieurs. Comme le montre le graphe 2.14, le nombre de modes augmente rapidement avec la fréquence et la densité modale n'est plus constante.

Ce comportement est dû à l'ajout de dimensions spatiales. Pour un problème 2D et 3D, le nombre de modes  $N_f$  évolue en  $f^2$  et en  $f^3$  respectivement. De manière générale, ce nombre est estimé par la formule [138] :

$$N_f = \frac{4}{3}\pi V \left(\frac{f}{c}\right)^3,\tag{2.34}$$

$$\frac{dN_f}{df} = 4\pi V \frac{f^2}{c^3},$$
(2.35)

Mode radial	Mode zonal	Mode sectoral	Mode tesseral
		6000	

FIGURE 2.13: Isosurface de pression des deux premiers modes radiaux, zonaux, sectoraux et tesseraux.



FIGURE 2.14: Fréquences des modes propres simulée par comsol. Chaque raie correspond à un mode propre.

où V représente la volume de la cavité. La densité spectrale évolue donc avec la fréquence et la distance moyenne entre deux modes propres  $(D_f = \frac{c^3}{4\pi V f^2})$  diminue avec le volume et la fréquence. Cette distance doit alors être comparée à l'étalement des pics de résonance dû à l'atténuation.

## Atténuation des modes propres

La largueur d'un pic de résonance  $\Delta f$  peut être estimée par le calcul de la décroissance de l'énergie acoustique  $e^{-2\delta t}$  au sein d'une goutte suite à une excitation impulsionelle à l'aide de la formule  $\Delta f = \frac{\delta}{\pi}$ . Notons que le temps  $\frac{1}{2\delta}$  est généralement appelé temps de réverbération de la cavité. Pour ce faire, nous utilisons un raisonnement d'acoustique géométrique valide lorsque la longueur d'onde acoustique  $\lambda$  est petite devant la taille de la cavité. Cette hypothèse implique que les ondes interfèrent peu entre elles. Pour une onde de 20 MHz,  $\lambda = 75\mu m$  et  $\frac{\lambda}{R_0} \sim 10^{-2}$ lorsque le volume de goutte est de l'ordre de la dizaine de microlitres. Lorsqu'une onde se propage au sein du liquide, son énergie peut être dissipée par effets visqueux ou transmise au milieu extérieur lors d'une réflexion sur un bord de la cavité. L'atténuation visqueuse est caractérisée par le coefficient  $\alpha_{att}$  et la décroissance de densité d'énergie acoustique associée,  $e_l$ , s'écrit :

$$e_l = e_0 e^{-2\alpha_{att}x} = e_0 e^{-2\alpha_{att}c_l t}$$
 avec  $\alpha_{att} = \frac{1}{L_{att}} = \frac{(\frac{4}{3}\mu + \mu^b)\omega^2}{2\rho_l c_l^3}.$ 

L'énergie absorbée par le milieu extérieur lors d'une réflexion est caractérisée par le coefficient d'absorption  $\alpha_{abs}$  qui est égal au coefficient de transmission de l'interface T, nous supposons dans un premier temps qu'un seul type d'interface est présent.

Nous considérons maintenant la propagation d'une onde au sein de la cavité. A t = 0, l'onde est émise dans le liquide et se propage jusqu'à la première interface qu'elle rencontre à  $t = t_1$ . L'onde réfléchie transportant l'énergie  $e_{l_1} = (1 - \alpha_{abs})e_0e^{-2\alpha_{att}c_lt_1}$  atteint une seconde interface en  $t = t_2$  et l'énergie émise par cette seconde réflexion est  $e_{l_2} = (1 - \alpha_{abs})^2 e_0e^{-2\alpha_{att}c_lt_2}$ . En continuant ce raisonnement, l'énergie de l'onde après la n-ème réflexion est :

$$e_{l_n} = (1 - \alpha_{abs})^n e_0 e^{-2\alpha_{att}c_l t_n} = e_0 e^{(-2\alpha_{att}t_n + n\ln(1 - \alpha_{abs}))}.$$

En estimant le temps moyen passé entre deux réflexion par  $t_n - t_{n-1} \sim \frac{R_0}{c_l}$ , la n-ème réflexion intervient alors à  $t_n \sim n \frac{R_0}{c_l}$  et finalement la décroissance de l'onde s'estime par :

$$e_l = e_0 e^{\left(-2\alpha_{att}c_l + \frac{c_l}{R_0}\ln(1 - \alpha_{abs})\right)t} \quad \text{et} \quad \delta \sim c_l \left(\alpha_{att} - \frac{\ln(1 - \alpha_{abs})}{2R_0}\right)$$

Nous avons considéré ici que les parois de la cavité possédait le même coefficient de transmission, ce qui n'est pas le cas pour une goutte. Ce raisonnement peut être étendu à une cavité possédant des interfaces différentes [138] par l'introduction d'un coefficient d'absorption modifié  $\alpha_{abs} = \frac{1}{S}(S_1\alpha_1 + S_2\alpha_2)$  où S est la surface totale et  $S_i$  la surface entre la cavité et le milieu d'indice i. Dans le cas d'une goutte hémisphérique nous avons donc  $\alpha_{abs} = \frac{2}{3}T_{lg_m} + \frac{1}{3}T_{lsm}$  où  $T_{lim}$  sont les coefficients de transmission précédemment introduits moyennés comme suit. En supposant les rayons acoustiques équirépartis dans toutes les directions, le coefficient de réflexion moyen est alors calculé par [138], où  $\theta_i$  est l'angle d'incidence :

$$\alpha_{abs} = \int_{0}^{\frac{1}{2}} \left(\frac{2}{3}T_{lg}(\theta_i) + \frac{1}{3}T_{ls}(\theta_i)\right) \sin 2\theta_i \ d\theta_i \sim 0,0092.$$

Ce coefficient est proche de zéro traduisant le fait qu'une fois l'onde générée au sein du liquide, celle-ci est très peu transmise au milieu extérieur. Nous pouvons alors développer  $\ln(1 - \alpha_{abs}) \sim -\alpha_{abs}$  et finalement la largeur du pic de résonance est estimée par :

$$\Delta f \sim \frac{c_l}{\pi} \left( \alpha_{att} + \frac{\alpha_{abs}}{2R_0} \right) = \frac{(\frac{4}{3}\mu + \mu^b)\omega^2}{2\pi\rho_l c_l^2} + \frac{\alpha_{abs}c_l}{(12\pi^2 V)^{1/3}}$$

# Critère de Schroeder

Le critère de Schroeder [136] stipule que le champ acoustique ne peut plus être vu comme une somme de modes propres lorsqu'en moyenne 3 modes propres se recouvrent, *i.e.*  $3D_f > \Delta f$ . Nous pouvons alors déduire la fréquence  $f_S$  séparant une cavité normale et chaotique via la résolution numérique (sous matlab) de l'équation :

$$\frac{2\pi(\frac{4}{3}\mu+\mu^b)}{\rho_l c_l^2} f_S{}^4 + \frac{\alpha_{abs}c_l}{(12\pi^2 V)^{1/3}} f_S{}^2 - \frac{3c_l{}^3}{4\pi V} = 0.$$

On remarque alors que la fréquence de Schroeder est du même ordre de grandeur que les fréquences utilisées en acoustofluidique (figure 2.15). Pour des fréquences inférieures à cette limite, l'énergie acoustique se répartit sur un ou quelques modes propres (normaux). La cavité résonne alors sur ces modes normaux et est qualifiée de normale. Lorsque la fréquence d'excitation est supérieure à  $f_S$  l'énergie est distribuée sur une quantité importante de modes propres et sa répartition est sensible aux conditions initiales. Une petite modification de la surface ou de la fréquence modifie la distribution d'énergie, on parle alors de cavité chaotique.

## Considération physique sur le caractère de la cavité

Lorsque la longueur d'onde  $\lambda$  est du même ordre de grandeur que la taille de la cavité  $R_0$ , l'énergie se répartit sur les premiers modes d'une goutte (figure 2.13). Au fur et à mesure que la fréquence d'excitation augmente, les modes d'ordre de plus en plus important sont excités. Or, comme nous venons de le voir, la densité des modes augmente avec la fréquence ainsi que leur



FIGURE 2.15: Fréquence critique  $f_c$  basée sur le critère de Schroeder (trait plein) et sur la comparaison de la longueur d'onde avec le rayon (trait pointillé) pour différents volumes de goutte.

atténuation et la comparaison de la longueur d'onde avec le rayon de goutte donne un critère similaire à celui de Schroeder (figure 2.15).

En conclusion, pour des fréquences élevées la dissipation visqueuse limite ou supprime les réflexions et le champ acoustique au sein du liquide est dominé par le champ incident. Pour des longueurs d'onde comparables à la taille de goutte  $8\lambda < R_0$  (f<5 MHz) le champ acoustique est distribué sur les modes propres d'une goutte et peut être étudié grâce à une décomposition modale. Lorsque la fréquence d'excitation est comprise entre ces deux domaines, la cavité acoustique est chaotique et le champ acoustique est étudié par des méthodes statistiques.

# 2.2.4 Energie acoustique accumulée par une cavité chaotique

Nous nous intéressons ici au cas où une goutte se comporte comme une cavité chaotique. Nous cherchons à déterminer l'énergie acoustique accumulée par cette cavité. La densité d'énergie acoustique  $e_l$  au sein du liquide s'écrit [139] :

$$\iiint\limits_V \left(\frac{\partial e_l}{\partial t} + \vec{\nabla}.\vec{I}_l\right) dV = \left(\frac{4}{3}\mu + \mu^b\right) \iiint\limits_V \vec{v}.\vec{\nabla}(\vec{\nabla}.\vec{v})dV,$$

où  $\vec{I} = p\vec{v}$  est l'intensité acoustique, p et  $\vec{v}$  sont respectivement le champ de pression et de vitesse acoustique. Nous prenons pour volume de contrôle l'hémisphère délimitant le liquide. Le terme de gauche correspond à la conservation de l'énergie acoustique au sein du volume et le terme de droite à la dissipation visqueuse de l'onde dans le milieu.

Nous commençons par réarranger le terme de dissipation visqueuse pour faire apparaitre le taux de dissipation de l'énergie acoustique. En supposant que le champ acoustique est irrotationnel et en utilisant l'équation d'onde respectée par  $\vec{v}$  il vient :

$$\vec{v}.\vec{\nabla}(\vec{\nabla}.\vec{v})=\vec{v}.\vec{\Delta}\vec{v}=-\frac{1}{cl^2}\vec{u}.\frac{\partial^2\vec{v}}{\partial t^2}$$

Nous nous plaçons alors dans l'hypothèse de champ diffus généralement utilisée lorsque la cavité est chaotique [140]. Le champ acoustique est décomposé en une infinité d'ondes planes propagatives uniformément distribuées dans toutes les directions et dont les phases sont aléatoires. L'uniformité de la distribution n'est généralement pas respectée dans le cas d'une cavité convergente où des directions préférentielles apparaissent mais n'est pas aberrante dans notre cas à la vue du spectre angulaire (transformée de Fourier spatial) du champ de pression en 2 dimensions simulé à l'aide de COMSOL Multiphysics (figure 2.16). Notons que nous supposons les phénomènes d'interférences négligeables lorsque nous utilisons l'hypothèse des phases aléatoires.



FIGURE 2.16: Spectre angulaire du champ de pression simulé à l'aide de COMSOL Multiphysics pour une fréquence de 20 MHz et une goutte d'un millimètre de rayon.

L'énergie associée à chaque onde plane est égale à son énergie cinétique et comme ces ondes n'interagissent pas entre elles, les termes croisés de la somme infinie  $(\vec{v}.\frac{\partial^2 \vec{v}}{\partial t^2})$  sont nuls. L'énergie acoustique totale est alors la somme des énergies associées à chaque onde plane et  $\vec{v}.\frac{\partial^2 \vec{v}}{\partial t^2} = \frac{\omega^2}{\rho_l}e_l$ . Sous ces hypothèses, l'énergie acoustique dans le volume s'exprime :

$$\iiint\limits_V \left( \frac{\partial e_l}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{I_l} + \frac{(\frac{4}{3}\mu + \mu^b)\omega^2}{\rho_l c_l^2} e_l \right) dV = 0.$$

Nous recherchons maintenant une équation régissant l'évolution temporelle de l'énergie acoustique, qui est lente devant l'échelle de temps acoustique. Le volume de contrôle n'évolue donc pas avec le temps, *i.e.* la vibration acoustique moyenne de l'interface est nulle. Notons que la prise en compte du déplacement de l'interface conduirait à des termes de pression de radiation acoustique. En définissant  $E_l = \iint_V \langle e_l \rangle dV$  la conservation de l'énergie s'écrit :

$$\frac{dE_l}{dt} + 2c_l\alpha_{att}E_l = -\iint_{S_g} \langle \vec{I_l} \rangle . \vec{dS} - \iint_{S_s} \langle \vec{I_l} \rangle . \vec{dS}$$

où  $S_g$  et  $S_s$  sont les interfaces avec l'air et le solide. Les deux termes de droite représentent le flux d'énergie acoustique échangé avec le milieu extérieur. Comme l'interface liquide-air peut être considérée comme totalement réfléchissante, aucune énergie n'est échangée à travers la surface libre et  $\iint_{S_g} \langle \vec{I}_l \rangle . d\vec{S} = 0$ . L'énergie acoustique entre par l'interface solide (l'onde de Rayleigh généralisée détaillée en section 2.1.3) et peut fuir par cette même interface (section 2.2.1). Ainsi  $\iint_{S_s} \langle \vec{I}_l \rangle . d\vec{S} = -P_{trans} + P_f$  où  $P_{trans}$  représente la puissance acoustique rayonnée par l'onde de surface et  $P_f$  la puissance de fuite due à la réémission d'onde dans le solide. Finalement, l'équation régissant l'énergie acoustique moyenne dans la cavité est :

$$\frac{dE_l}{dt} + 2c_l \alpha_{att} \ E_l + P_f = P_{trans} \tag{2.36}$$

La puissance rayonnée par l'onde de Rayleigh peut être estimée par  $P_{trans} = c_l e_0 S_t$  où  $S_t$  représente la surface effective du transfert d'énergie et  $S_t < S_s$  (annexe B). La puissance de fuite dépend de l'intensité sonore impactant le solide et de l'angle d'incidence  $\theta_i$  (figure 2.11). La puissance acoustique arrivant de l'angle solide  $d\Omega$  sur la surface dS est  $\langle \vec{I}_l \rangle \cdot d\vec{S} d\Omega = \langle I_l \rangle \cos \theta_i dS d\Omega$ . La puissance perdue dans le solide, en supposant l'énergie équirépartie dans toutes les directions, s'exprime alors :

$$P_f = \langle I_l \rangle \int_{S_c} \int_{\Omega} T_{ls}(\theta_i) \cos \theta_i d\Omega dS = \pi \langle I_l \rangle S_c \int_{0}^{\frac{\pi}{2}} T_{ls}(\theta_i) \sin 2\theta_i d\theta_i = \pi \alpha_s S_c \langle I_l \rangle$$

La densité d'énergie acoustique moyenne comprise dans un volume dV est la somme des densités transportées par toutes les directions de propagation, ainsi  $\langle e_l \rangle = \frac{4\pi \langle I_l \rangle}{c_l}$ . L'équation sur la densité moyenne d'énergie acoustique est alors :

$$\frac{d\langle e_l\rangle}{dt} + c_l(2\alpha_{att} + \alpha_s \frac{S_s}{4V})\langle e_l\rangle = \frac{c_l e_0 S_t}{V},$$

Sa résolution donne :

$$\langle e_l \rangle = e_f (1 - e^{-\frac{t}{\tau}})$$
 avec  $e_f = \frac{e_0 S_t}{2\alpha_{att}V + \alpha_s \frac{S_s}{4}}$  et  $\tau = \frac{4V}{c_l(8\alpha_{att}V + \alpha_s S_s)}$ .

On retrouve alors des résultats classiques d'acoustique des salles [138]. L'énergie accumulée par la cavité est amplifiée si le facteur  $r_a = \frac{S_t}{2\alpha_{att}V + \alpha_s \frac{S_s}{4}}$  est supérieur à l'unité, *i.e.* si les pertes visqueuses et les fuites sont faibles. Le temps caractéristique  $\tau$ , également appelé temps de réverbération, est de l'ordre de la dizaine de microsecondes et correspond au temps de remplissage ou de vidange de la cavité.



FIGURE 2.17: Evolution du facteur de qualité  $r_a$  (à gauche) et du temps de réponse  $\tau$  (à droite) de la cavité chaotique en fonction du volume de goutte pour différentes fréquences.

Le facteur de qualité  $r_a$  décroit avec le volume de goutte et la fréquence d'excitation en raison de la diminution de la surface de transmission  $S_t$  de l'onde de Rayleigh et de l'augmentation des pertes visqueuses dans le volume. Il reste cependant supérieur à l'unité tant que le volume est inférieur à 100  $\mu$ L. Une goutte se comporte alors comme un amplificateur acoustique. Le temps de réverbération quant à lui évolue très peu avec le volume en raison des faibles fuites dans le substrat et tend rapidement vers une valeur asymptotique  $\tau_c = \frac{1}{2\alpha_{att}}$  correspondant au temps caractéristique visqueux. La cavité accumulant plus d'énergie pour de basses fréquences, elle met plus de temps à se remplir.

Ce modèle est basé sur l'hypothèse de champ diffus correspondant à un cas idéal. En réalité le champ acoustique n'est pas totalement diffus mais est une combinaison du champ réfléchi et incident. Cependant le champ acoustique simulé à l'aide de COMSOL Multiphysics montre une diffusion importante (figure 2.16).

Une goutte se comporte comme une cavité chaotique pour une plage de fréquences restreinte comprise entre  $\sim 10$  et  $\sim 30$  MHz. Pour des fréquences plus faibles, le champ acoustique s'organise sur les modes propres de goutte et engendre une résonance de ces modes. Il y a des interférences des ondes. Pour des fréquences supérieures, l'onde est de moins en moins réfléchie et le champ acoustique dans la cavité tend vers le champ incident pour des fréquences élevées.

En conclusion, au sein de cette section nous avons mis en exergue l'efficacité des ondes de Rayleigh pour transmettre une quantité importante d'énergie à un fluide sous forme acoustique sur de courtes distances. Dans un second temps, nous avons caractérisé le champ acoustique engendré au sein d'une goutte et nous nous sommes intéressés plus en détails au cas particulier de la cavité chaotique. Par un modèle simple, nous avons mis en évidence le comportement d'amplificateur acoustique d'une goutte pour des fréquences de l'ordre de 20 MHz. Finalement, l'intensité du champ acoustique généré au sein du liquide peut atteindre des niveaux importants grâce à un mécanisme de transmission efficace et une mise en résonance des modes propres de la goutte. Sous cette excitation intense, le liquide est alors mis en mouvement par des effets d'acoustique non linéaire.

# 2.3 Actionnement de liquide par acoustique non linéaire

La propagation d'une vibration dans un fluide présente trois grandes différences avec celle dans un solide. Tout d'abord, comme nous l'avons vu précédemment, seul les vibrations longitudinales excitant une compression-dilatation peuvent se propager dans un fluide, *i.e.* une vibration transverse transportée par la viscosité est dissipée rapidement. De plus, un fluide étant un ensemble de particules libres, ses propriétés (masse volumique, compressibilité,...) s'expriment sous forme scalaire. Un fluide est un matériau isotrope. Ainsi, la propagation d'une vibration au sein d'un fluide "semble" simplifiée : un type d'onde dans un matériau isotrope. Cependant, contrairement à un solide, constitué d'un réseau d'atomes organisé, la vibration dans un fluide se propage sur un réseau de particules mobiles, *i.e.* la matière servant de support à l'onde peut s'écouler. Cette dernière différence est fondamentale car elle rend possible un couplage fort entre la propagation d'une énergie acoustique et le milieu support conduisant à la mise en mouvement de ce dernier. Afin d'explorer les différents couplages s'opérant entre le milieu de propagation et une onde acoustique, nous commençons par détailler les équations régissant le mouvement d'un fluide. Une décomposition des différents types de mouvements pouvant être excités pour un fluide est alors utilisée pour découpler les équations. Les phénomènes sous-jacents à l'actionnement de fluide correspondent alors à un couplage entre ces différents modes de déplacement. Ils sont détaillés dans une deuxième partie.

# 2.3.1 Lois de conservations pour un fluide et décomposition en modes

Le mouvement d'une particule fluide est régi par les équations de conservations de la masse et de la quantité de mouvement :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla}.(\rho \vec{v}) = 0, \qquad (2.37)$$

$$\rho\left(\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + \vec{v}.\vec{\nabla}\vec{v}\right) = -\vec{\nabla}p + (\mu^b + \frac{4}{3}\mu)\vec{\nabla}(\vec{\nabla}.\vec{v}) - \mu\vec{\nabla}\times\vec{\nabla}\times\vec{v}, \qquad (2.38)$$

où  $\rho$  est la masse volumique,  $\vec{v}$  la vitesse, et p la pression du fluide. L'équation régissant l'énergie du fluide peut être écrite en terme d'entropie s et fait intervenir la température T associée à la particule :

$$\rho T\left(\frac{\partial s}{\partial t} + \vec{v}.\vec{\nabla}s\right) = \kappa_{th}\Delta T + \mu^b (\vec{\nabla}.\vec{v})^2 + 2\mu \mathbb{D}: \mathbb{D}, \qquad (2.39)$$

où  $\kappa_{th}$  est la conductivité thermique et  $\mathbb{D} = \frac{1}{2}(\vec{\nabla}\vec{v} + (\vec{\nabla}\vec{v})^t)$  le tenseur des déformations. Les deux derniers termes de droite traduisent l'augmentation d'entropie liée à la dissipation visqueuse. Le premier traduit, lui, l'apport (ou la diminution) de température par conduction thermique. Une équation d'état reliant les différentes variables est également nécessaire pour fermer le système. Nous choisissons d'exprimer la relation liant les variations de pression du fluide en fonction des variations de masse volumique et d'entropie  $p(\rho, s)$ .

La solution du système d'équations linéarisé peut être décomposée en trois modes  $\vec{v} = \vec{v}_{ac} + \vec{v}_{rot} + \vec{v}_{ent}$  [141]. Les deux premiers termes sont ceux de la décomposition classique d'Helmotz.  $\vec{v}_{ac}$  correspond au mode acoustique (compression-dilatation), le mode rotationnel  $\vec{v}_{rot}$  est associé aux mouvements de cisaillements, et le mode entropique (ou thermique)  $\vec{v}_{ent}$  est la vitesse engendrée par les gradients d'entropie. Le mode acoustique est propagatif alors que les deux autres modes respectent une équation de diffusion. Pour le mode rotationnel, cette équation correspond à la

diffusion de la vorticité, alors que pour le mode entropique, ou thermique, elle correspond à la diffusion de la chaleur.

Il a été montré qu'en régime linéaire la variation d'entropie est liée à la capacité du milieu à diffuser la température [142] et évolue en  $\gamma - 1$ , où  $\gamma$  est le facteur d'expansion isentropique. Pour une phase condensée telle qu'un liquide ce facteur est proche de l'unité, et le mouvement peut être considéré comme isentropique, *i.e.* les variations de masse volumique et de pression, induites par une élévation de température, sont négligeables devant celles se propageant avec le mode acoustique.

Ainsi, pour des liquides, nous pouvons considérer seulement le mode acoustique et le mode visqueux (rotationnel). L'interaction entre ces modes va permettre l'actionnement d'un liquide par une onde acoustique, comme nous allons le voir maintenant.

# 2.3.2 Couplage linéaire de modes aux frontières

Nous nous plaçons dans le cas où le mode acoustique est dominant correspondant au problème étudié dans le cadre de cette thèse. Nous commençons par les couplages linéaires pouvant s'opérer entre ces modes. A l'instar des ondes élastiques dans un solide, ces couplages apparaissent lorsque le fluide est borné et l'interaction s'opère au travers de la condition aux limites. Ce couplage provient ici de la condition de non-glissement à la paroi qui induit la génération d'une vorticité localisée à proximité de l'interface solide/fluide dans une couche appelée couche limite. Ainsi, pour une interface solide nous avons  $\vec{v}_{ac} + \vec{v}_{rot} = \vec{0}$ . Le couplage entre les deux modes s'opère dans la couche limite d'épaisseur  $l_{rot}$ , seule zone où le mode rotationnel est présent. Le rapport des amplitudes peut être estimé par [143] :

$$\left|\frac{\vec{v}_{rot}}{\vec{v}_{ac}}\right| \approx e^{-x/l_{rot}} \quad \text{et} \quad l_{vor} \approx \sqrt{\frac{2\mu}{\omega\rho}}.$$
(2.40)

Pour de l'eau parcourue par une onde de l'ordre du mégahertz, l'épaisseur de la couche est de l'ordre de 100 nm.

## 2.3.3 Interaction non linéaire acoustique-acoustique

Les modes peuvent également se coupler par l'intermédiaire des non linéarités des équations du mouvement et peuvent alors interagirent en dehors des couches limites. Nous commençons par étudier l'effet des non linéarités du milieu de propagation et l'interaction du mode acoustique avec lui-même, *i.e.* le mode visqueux est supposé nul. Les variations de pression dans le liquide sont liées aux variations de masse volumique par :

$$p - p_0 = c_0^2 (\rho - \rho_0) + \frac{c_0^2}{\rho_0} \frac{B}{2A} (\rho - \rho_0)^2, \qquad (2.41)$$

où  $c_0 = \sqrt{\frac{1}{\rho_0 \kappa}}$  est la vitesse du son et  $\kappa$  la compressibilité du liquide caractérisant les interactions entre les molécules. Le paramètre  $\frac{B}{2A}$  traduit la variation de la vitesse de propagation d'une onde acoustique due à la rarefaction ou à la densification du milieu propageant l'onde, *i.e.* un fluide plus dense va propager plus rapidement une vibration grâce à des interactions plus fortes. Nous posons  $p' = p - p_0$  et  $\rho' = \rho - \rho_0$  et supposons les grandeurs acoustiques petites devant les grandeurs du fluide à l'équilibre, *i.e.*  $\frac{p'}{p_0}, \frac{\rho'}{c_0} \ll 1$ . En ne gardant alors que les termes d'ordre 1 et 2 dans les équations du mouvement il vient [143] :

$$\Delta p' - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2 p'}{\partial t^2} + \frac{\frac{4}{3}\mu + \mu^b}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial^3 p'}{\partial t^3} = -\frac{\beta_{nl}}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial^2 p'^2}{\partial t^2} - \left(\Delta + \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) \mathcal{L}_{ac}, \tag{2.42}$$

où  $\beta_{nl} = 1 + \frac{B}{2A}$  est le paramètre de non linéarité et  $\mathcal{L}_{ac} = \frac{1}{2}\rho_0 v^2 - \frac{p^2}{2\rho_0 c_0^2}$  le lagrangien acoustique. Notons que ce dernier est nul dans le cas d'une onde plane propagative, du fait de l'équipartition de l'énergie potentielle et cinétique. Les termes de gauche de l'équation (2.42) correspondent à l'équation de propagation dans un fluide visqueux et les termes de droite aux interactions non linéaires du mode acoustique avec lui-même. Le premier est associé à des effets non linéaires cumulatifs induits par l'équation d'état et le second correspond à des non linéarités locales [144]. Nous considérons une onde quasi-plane progressive se propageant loin des parois (à des distances supérieures à la longueur d'onde) pour lesquelles les non linéarités locales peuvent être négligées. Nous reviendrons sur cette hypothèse ultérieurement.

# 2.3.4 Propagation non linéaire

Sous ces conditions, la propagation d'une onde est alors régie par l'équation de Westervelt [145] qui traduit une propagation non linéaire de l'onde. Les non linéarités de l'équation d'état vont alors distordre le front d'onde au fur et à mesure de la propagation (non linéarités cumulatives). Les zones en surpression se propagent plus rapidement que les zones en dépression donnant ainsi naissance à une onde de choc lorsque ces zones se superposent (figure 2.18).

La distance de formation d'une onde de choc dépend du paramètre de non linéarité, de la fréquence et de l'amplitude de la vitesse acoustique  $v_0$ :



FIGURE 2.18: Distorsion d'une onde au cours d'une propagation 1D suivant la direction x et formation d'une onde de choc pour une distance  $l_{ch}$ . La vitesse acoustique maximum est notée  $v_0$ .

$$L_{ch} = \frac{c_0^2}{\beta_{nl} v_0 \omega} \approx \frac{c_0^2}{\beta_{nl} a_n \omega^2},\tag{2.43}$$

où  $a_n$  est le déplacement acoustique normal généré à l'interface solide-liquide qui est typiquement de l'ordre du nanomètre. La propagation non linéaire d'une onde acoustique est significative si la longueur de choc est inférieure à la longueur d'atténuation. Le paramètre  $\frac{B}{A} = 5$  [143] pour de l'eau. On a dans ce cas :

$$\frac{L_{ch}}{L_{att}} = \frac{\frac{4}{3}\mu + \mu^b}{2\rho_0 c_0 \beta_{nl} a_n} \sim 0,4$$
(2.44)

La dissipation et les non linéarités sont donc du même ordre de grandeur et l'onde va alors se propager non linéariement au sein du liquide. La distorsion du signal passe par une génération d'harmoniques supérieures (en  $2\omega, 3\omega, ...$ ) qui se dissipent plus rapidement que la fréquence fondamentale ( $L_{att} \sim \omega^{-2}$ ). Ainsi l'onde se distord peu mais s'atténue de manière plus importante grâce à la dissipation des harmoniques. Un coefficient d'atténuation effectif peut être déterminé pour tenir compte de ces non linéarités (Beyer [146] section 3.6). Cependant, le transfert d'énergie vers les harmoniques supérieures dépend de l'amplitude du signal qui évolue avec la propagation rendant la détermination de ce coefficient complexe.

Nous avons négligé dans cette section les effets non linéaires locaux ce qui est justifié dans le cas d'une onde quasi-plane progressive, soit lorsque le champ acoustique au sein d'une goutte est dominé par le champ incident (section 2.2.2). Or pour  $R_0 \ll L_{att}$  une onde subit de multiples réflexions et les non linéarités locales, couplant le mode acoustique avec lui-même dans le volume, influencent la répartition de l'énergie acoustique finale. Cependant ce problème est complexe et devra faire l'objet d'investigations numériques. Une seconde interaction acoustique-acoustique est également présente, s'opérant aux frontières du liquide, elle est à l'origine du phénomène de pression de radiation acoustique.

## 2.3.5 Pression de radiation acoustique

Nous avons vu dans la section 2.3.2 que la condition de non-glissement à l'interface donnait naissance à un couplage entre le mode visqueux et acoustique. Ici, c'est la continuité de la vitesse normale qui donne naissance à un couplage non linéaire du mode acoustique sur lui-même. En effet, lorsque qu'une interface est irradiée par une onde acoustique, celle-ci est mise en vibration (continuité de la vitesse normale) et la pression acoustique s'y appliquant est couplée à la vitesse acoustique, générant alors une force moyenne non nulle dite de radiation. Le calcul de cette force a fait et fait encore l'objet d'une controverse au sein de la communauté scientifique [147–149]. Le problème de cet effet est qu'il se place à la limite de notre "intuition" physique et pour reprendre les propos de Robert T. Beyer : "It might be said that (acoustic) radiation pressure is a phenomenon that the observer thinks he understands - for short intervals, and only every now and then" [147]. Le but de cette section n'est pas d'unifier les différents point de vue mais de poser les bases théoriques nécessaires à la compréhension de ce phénomène.

Dans un premier temps, nous exposons les deux cas historiques unidimensionnels présentant déjà des contradictions. Dans un deuxième temps, la généralisation en trois dimensions est abordée mettant en évidence une notion, non plus de pression, mais de tenseur de radiation. Finalement, nous calculons la pression de radiation exercée par le champ incident sur l'interface liquide-air.

## Cas unidimensionnel : pression de radiation de Rayleigh et de Langevin



FIGURE 2.19: Onde acoustique se propageant jusqu'à un objet absorbant.

Pour mieux comprendre ce concept, nous considérons le cas d'une onde acoustique se propageant dans une direction au sein d'un fluide parfait jusqu'à un objet totalement absorbant (figure 2.19). Partons du calcul de la surpression générée par l'onde acoustique à un point fixe du fluide, soit la pression eulérienne  $p^E$ , connu sous le nom de deuxième relation de Langevin [150] :

$$\langle p^E - p_0 \rangle = \langle V \rangle - \langle T \rangle + C_0 = -\langle \mathcal{L}_{ac} \rangle + C_0,$$
 (2.45)

où V et T sont respectivement l'énergie potentielle et cinétique de l'onde acoustique et  $C_0$ est une constante qui dépend des conditions aux limites. On retrouve le lagrangien acoustique traduisant les non linéarités locales. La pression s'exerçant sur une interface mobile n'est pas la pression eulérienne mais lagrangienne. La relation entre ces deux quantités s'écrit :

$$p^{L}(\vec{r},t) = p^{E}(\vec{r}+\vec{u}(t),t) \approx p^{E}(\vec{r},t) + \vec{\nabla}p^{E}(\vec{r},t).\vec{u}(\vec{r},t), \qquad (2.46)$$

où  $\vec{r}$  est la vecteur position et  $\vec{u}$  le déplacement de la particule considérée. Ce dernier est égal au déplacement acoustique et respecte donc l'équation d'Euler (fluide parfait). Cette équation est linéarisée étant donné que la quantité recherchée est du second ordre :

$$\rho_0 \frac{\partial^2 \vec{u}}{\partial t^2} = -\vec{\nabla} p^E. \tag{2.47}$$

La pression lagrangienne moyenne s'écrit alors :

$$\langle p^L \rangle = \langle p^E \rangle + \rho_0 \left\langle \frac{\partial^2 \vec{u}}{\partial t^2} \cdot \vec{u} \right\rangle,$$
 (2.48)

et donne, une fois le dernier terme intégré par partie,

$$\langle p^L \rangle = \langle p^E \rangle + \rho_0 \left\langle \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} \cdot \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} \right\rangle = \langle p^E \rangle + \rho_0 \langle v^2 \rangle = \langle p^E \rangle + 2 \langle T \rangle.$$
(2.49)

Finalement, la surpression s'exerçant sur une interface mobile, en utilisant l'équation (2.45), est égale à

$$\langle p^L - p_0 \rangle = \langle p^E - p_0 \rangle + 2\langle T \rangle = \langle E \rangle + C_0, \qquad (2.50)$$

où E est la densité d'énergie acoustique. Cette équation est la première relation de Langevin telle que rapportée par Biquard [150]. Elle représente la pression de radiation acoustique exercée par une onde plane en incidence normale sur une cible absorbante. La valeur de la constante  $C_0$ est l'origine de la différence entre les deux cas historiques étudiés par Rayleigh [151] et Langevin [150] conduisant à deux expressions différentes [148] (figure 2.20).



FIGURE 2.20: Les deux configurations étudiées historiquement et les expressions de la pression de radiation associées. La cible est supposée totalement absorbante.

Dans la configuration de Langevin le fluide peut communiquer avec l'extérieur qui est au repos. La pression moyenne statique est alors équilibrée avec l'extérieur et sous l'hypothèse d'onde plane :

$$\langle p^E - p_0 \rangle = C_0 = 0.$$
 (2.51)

Maintenant, lorsque l'onde est confinée, comme c'est le cas pour la configuration de Rayleigh, la pression statique dans le fluide ne peut s'équilibrer avec l'extérieur. Celle-ci va alors augmenter [148] :

$$\langle p^E - p_0 \rangle = C_0 = \frac{1}{2} \left( \frac{B}{2A} - 1 \right) \langle E \rangle.$$
 (2.52)

La pression de radiation dite de Rayleigh est égale à  $\langle p^L - p_0 \rangle = \frac{\beta_{nl}}{2} \langle E \rangle$ . La différence entre ces deux expressions peut être vue comme un changement de masse volumique, *i.e.* la masse volumique d'un fluide irradié par une onde acoustique progressive est diminuée du fait de la vibration acoustique et cette masse volumique s'écrit [148] :

$$\langle \rho^E - \rho_0 \rangle = -\frac{\beta_{nl}}{2c_0^2} \langle E \rangle. \tag{2.53}$$

Si le système considéré est confiné, cette diminution de masse volumique ne peut se traduire par une expansion volumique. La pression au sein du système va ainsi augmenter. Alors que dans la configuration de Langevin le fluide est libre de s'étendre et la pression au sein de la partie irradiée s'équilibre avec l'extérieur, dans le cas d'une goutte, une expansion volumique due à une excitation acoustique est limitée par les forces de tension de surface (section 2.4).

Afin de déterminer la configuration à considérer dans notre cas, nous comparons l'élévation d'énergie potentielle capillaire engendrée par l'augmentation du rayon  $R = R_0(1 + \frac{\beta_{nl}}{6\rho_0 c_0^2} \langle E \rangle)$ (cas Langevin) avec l'augmentation d'énergie induite par l'élévation de la pression dans le volume fixé (cas Rayleigh). L'énergie capillaire de l'interface s'écrit  $E_S = \sigma S_{lg}$ , où  $\sigma$  est la tension superficielle et  $S_{lg}$  la surface de l'interface liquide-gaz. L'élévation d'énergie est donc :

$$\Delta E_S = 2\pi\sigma (R^2 - R_0^2) \approx 2\pi\sigma R_0^2 \frac{\beta_{nl} \langle E \rangle}{3\rho_0 c_0^2} \sim 10^{-16} J.$$
 (2.54)

L'élévation d'énergie associée aux forces de pression s'exprime, elle :

$$\Delta W_{pre} = \langle p^E - p_0 \rangle V = \frac{1}{3} \pi R_0^3 \left(\frac{B}{2A} - 1\right) \langle E \rangle \sim 10^{-9} J.$$
(2.55)

Comme un système physique cherche à minimiser son énergie, et qu'ici  $\Delta E_S \ll \Delta W_{pre}$ , une goutte va donc s'étendre. La pression de radiation s'appliquant à l'interface liquide-air correspond donc au cas de Langevin.

Notons que la notion de pression de radiation peut être étendue à des interfaces partiellement ou totalement réfléchissantes. La force s'exerçant sur celles-ci est alors dépendante de la densité d'énergie acoustique de part et d'autre de l'interface. Comme nous l'avons vu en section 2.2.1, l'interface liquide-air étant considérée totalement réfléchissante, la pression de radiation s'exerçant sur l'interface en incidence normale est  $\langle p^L - p_0 \rangle = 2 \langle E \rangle$ , soit la somme de l'énergie associée à l'onde incidente et réfléchie.

Finalement, dès ses débuts, la pression de radiation acoustique fait face à des contradictions donnant naissance à un débat qui court encore à l'heure actuelle. La généralisation de cette force en trois dimensions dérivée pour la première fois pas Brillouin [152], vient alors apporter une autre "dimension" à ce phénomène.

#### Généralisation en trois dimensions : tenseur de Brillouin

Nous avons considéré jusqu'alors que la force de radiation était égale au produit de la pression lagrangienne moyenne s'appliquant à l'interface et de la surface. Cette hypothèse suppose que l'interface se déforme perpendiculairement au faisceau incident. Dans ce cas, la surface reste normale au déplacement acoustique et la moyenne du produit peut s'écrire comme le produit des moyennes. Cependant dans le cas général cette hypothèse n'est plus vérifiée rendant les modèles précédemment exposés caduques [153]. La force de radiation, lorsqu'aucune hypothèse n'est faite sur le champ acoustique ou l'interface, est :

$$\vec{F} = \left\langle \int_{S(t)} p d\vec{S} \right\rangle, \tag{2.56}$$

où  $p(\vec{r},t)$  est le champ de pression et dS le vecteur surface infinitésimale dirigé vers l'intérieur de l'objet. En utilisant la conservation de la quantité de mouvement pour un fluide non visqueux et une surface arbitraire fixe  $S_a$  entourant l'objet irradié, cette force s'exprime par :

$$F_{i} = \int_{S_{a}} \langle \mathbb{S}_{ij} \rangle n_{j} dS \qquad \text{avec} \qquad \langle \mathbb{S}_{ij} \rangle = \langle p^{E} \rangle \delta_{ij} + \langle \rho v_{i} v_{j} \rangle, \tag{2.57}$$

où  $\vec{n}$  est dirigé vers l'extérieur de la surface  $S_a$ . Le tenseur  $\mathbb{S}_{ij}$  est le tenseur de radiation de Brillouin qui fut le premier à mettre en évidence la nature tensorielle de la "pression" de radiation. Ce tenseur correspond au flux de quantité de mouvement du fluide, donné par l'équation d'Euler :  $\frac{\partial \rho v_i}{\partial t} + \frac{\partial \mathbb{S}_{ij}}{\partial x_j} = 0$ . La force de radiation peut être vue comme un transfert de quantité de mouvement entre le fluide et l'objet, *i.e.* la force est la différence entre le flux de quantité de mouvement entrant et sortant de la surface  $S_a$ . Ce transfert de quantité de mouvement s'opère entre le réseau porteur de l'onde acoustique (le fluide) et l'objet et non entre l'objet et l'onde qui ne transporte pas de quantité de mouvement à proprement parler [154].

Cette nouvelle vision permet de mieux comprendre la nature de la force de radiation et simplifie les calculs qui se font maintenant sur une surface fixe  $S_a$ . De plus cette méthode est applicable à n'importe quel type de champ acoustique et ne requiert pas l'hypothèse d'une onde plane. Cependant, la connaissance de la pression eulérienne reste nécessaire laissant la controverse entre pression de radiation de Rayleigh ou de Langevin entière.

Ce formalisme permet d'accéder à la force de radiation appliquée à un objet en intégrant le tenseur de Brillouin sur une surface entourant celui-ci [155]. Pour une goutte, la quantité d'intérêt n'est pas la force résultante mais le champ de pression de radiation s'exerçant à l'interface liquide-air. Comme cela a été abordé dans la section 2.2, la détermination du champ acoustique réfléchi à l'ordre 1 n'est pas triviale : organisation sur des modes propres ou cavité chaotique. De plus, la cavité va se déformer sous l'effet des phénomènes acoustiques non linéaires modifiant alors la répartition de l'énergie acoustique et a fortiori le champ de pression de radiation. On voit alors apparaître une rétroaction intéressante entre la force de radiation et la déformation induite par celle-ci par l'intermédiaire du champ acoustique s'établissant dans le liquide. Notons que cette rétroaction est mise en évidence expérimentalement au chapitre 4.

## Application au champ incident

En partant de l'hypothèse que le champ acoustique dans le liquide peut être décomposé en une partie réfléchie et une partie incidente, la pression de radiation du champ incident peut être calculée indépendamment du champ réfléchi. Cette hypothèse suppose que la vibration de l'interface induite par le champ réfléchi n'est pas couplée avec celle du champ incident. Pour une interface totalement réfléchissante, la pression de radiation exercée par une onde plane arrivant sur une interface plane avec un angle d'incidence  $\theta_i$  a été exprimée par Borgnis [156] et vérifiée expérimentalement par Herrey [157]. Elle s'écrit :

$$p_{rad} = 2\langle E_i \rangle \cos^2 \theta_i, \tag{2.58}$$

où  $E_i$  est l'énergie acoustique de l'onde incidente. Nous supposons ici que la courbure de l'interface est très inférieure à la longueur d'onde,  $R_0 \ll \lambda$ , pour respecter l'hypothèse d'interface plane. Cette pression s'exerce suivant une direction normale à la surface et la composante tangentielle de la force est nulle. Les efforts tangents se compensent entre l'onde incidente et réfléchie. L'énergie acoustique incidente est calculée à partir du champ déterminé dans la section 2.1.3. Les calculs sont détaillés en annexe C et peuvent être résumés par la figure 2.21. Le champ acoustique de l'onde de Rayleigh généralisée est projeté sur la surface hémisphérique (hémisphère de gauche). Sur cette figure, la partie en bleu foncé correspond à la zone non irradiée par l'onde incidente. L'onde de surface est rayonnée dans le liquide avec un angle de Rayleigh (25° ici) et le maximum de pression sur l'hémisphère du centre correspond à une direction définie par cet angle. Finalement, la pression de radiation de l'onde incidente est limitée par le "désaccord" entre les maximums de chaque champ. Cependant, comme nous le verrons dans la partie 2.4.1, l'interface se déforme sous une excitation acoustique et la force de radiation engendrée par le champ incident pourra augmenter considérablement.



FIGURE 2.21: Construction de la pression de radiation appliquée à l'interface par le champ incident.

La figure 2.22 représente le champ de pression de radiation induit à l'interface par le champ incident pour différentes fréquences d'excitation. On constate que le maximum de pression de radiation diminue avec la fréquence d'excitation du fait du changement de répartition de l'énergie à la surface de contact avec le solide (figure 2.9).

En effet, l'énergie est rayonnée sur une plus courte distance, le point correspondant au maximum d'énergie (à la limite avec la partie non-irradiée) impacte la surface avec un angle d'incidence important et le facteur  $\cos^2 \theta_i$  limite sa contribution à la pression de radiation.



FIGURE 2.22: Répartition du champ de pression de radiation induit par le champ incident pour différentes fréquences d'excitation et un goutte de 10  $\mu$ L.

Cet effet d'acoustique non linéaire s'applique donc aux interfaces du liquide, c'est un effet de surface induit par le couplage non linéaire du mode acoustique avec lui-même. La surpression engendrée déforme l'interface et met alors en mouvement le liquide. Un second effet intervient pour le déplacement d'une goutte soumise à des ondes acoustiques de surface : le streaming acoustique. Cet effet couple de manière non linéaire le mode acoustique et visqueux.

# 2.3.6 Couplage non linéaire entre mode visqueux et acoustique : streaming acoustique

Nous avons indiqué dans la section 2.3.2 que le couplage linéaire entre le mode visqueux et acoustique ne pouvait s'opérer que dans la couche limite visqueuse. L'interaction non linéaire

entre ces deux modes peut, elle, s'effectuer également dans le volume. Le milieu de propagation va alors s'écouler sous l'influence du mouvement alternatif imposé par une onde acoustique.

Ce phénomène fut pour la première fois rapporté (et sans doute observé) par Faraday [158] qui au cours de ses travaux sur les formes prises par une couche de sable sur une plaque vibrante remarqua un courant d'air circulant entre les ventres et les noeuds de vibrations. Le premier à mettre en équation ce phénomène fut Lord Rayleigh [159]. Il montra que ce dernier était lié à la présence d'une couche visqueuse proche d'une surface. Puis avec l'avènement des générateurs piezoélectriques, un autre type de couplage fut observé : "le vent de quartz". Contrairement au précédent, cet écoulement se développe dans le volume du fluide et fut expliqué par Eckart [139]. Ce dernier met en évidence que le streaming acoustique ne peut se développer qu'en présence d'effets dissipatifs du milieu de propagation, condition sine qua non pour qu'un transfert d'énergie s'effectue entre l'onde et le réseau la transportant.

Afin de mettre en évidence ces couplages du mode acoustique et visqueux, nous considérons une décomposition asymptotique autour d'un point d'équilibre (liquide au repos).

$$\rho = \rho_0 + \epsilon \rho_1 + \epsilon^2 \rho_2 + O(\epsilon^3),$$
  

$$p = p_0 + \epsilon p_1 + \epsilon^2 p_2 + O(\epsilon^3),$$
  

$$\vec{v} = \vec{0} + \epsilon \vec{v}_1 + \epsilon^2 \vec{v}_2 + O(\epsilon^3)$$

L'équation d'état est supposée linéaire, le terme  $\frac{B}{2A}$  ne contribue pas au couplage acoustiquevisqueux mais seulement à la pression de radiation (acoustique-acoustique) s'établissant dans le liquide [139]. Au premier ordre on obtient alors :

$$\frac{\partial \rho_1}{\partial t} + \rho_0 \vec{\nabla}.\vec{v}_1 = 0 \tag{2.59}$$

$$\rho_0 \frac{\partial \vec{v}_1}{\partial t} = -c_0^2 \vec{\nabla} \rho_1 + \mu b \vec{\nabla} (\vec{\nabla} \cdot \vec{v}_1) - \mu \vec{\nabla} \times \vec{\nabla} \times \vec{v}_1, \qquad (2.60)$$

où  $b = \frac{4}{3} + \frac{\mu^b}{\mu}$ . Comme nous avons discuté précédemment, le mode acoustique sert de source au mode visqueux à travers la condition de non-glissement. Ce dernier est alors diffusé par viscosité est reste localisée dans la couche limite. Ainsi, le champ au premier ordre est composé d'un mode acoustique dans tout le volume et d'un mode rotationel localisé dans la couche limite. En utilisant (2.60), la conservation de la quantité de mouvement au second ordre s'exprime :

$$\rho_0 \frac{\partial \vec{v}_2}{\partial t} + c_0^2 \vec{\nabla} \rho_2 - \mu b \vec{\nabla} (\vec{\nabla} \cdot \vec{v}_2) + \mu \vec{\nabla} \times \vec{\nabla} \times \vec{v}_2 = - \vec{\nabla} \mathcal{L}_{ac} - \frac{\mu b}{\rho_0} \rho_1 \vec{\nabla} (\vec{\nabla} \cdot \vec{v}_1) + \frac{\mu}{\rho_0} \rho_1 \vec{\nabla} \times \vec{\nabla} \times \vec{v}_1 + \rho_0 \vec{v}_1 \times \vec{\nabla} \times \vec{v}_1.$$
(2.61)

Cette équation fait intervenir les interactions non linéaires du mode acoustique avec lui-même (laplacien acoustique), étudiées dans la section précédente, et des couplages non linéaires entre le mode visqueux et acoustique. Afin d'expliciter l'équation régissant l'écoulement permanent généré par une onde acoustique (le mode visqueux de la vitesse  $v_2$ ), nous moyennons la partie rotationnel de l'équation (2.61) [160]. Notons que la divergence de celle-ci revient à considérer la propagation non linéaire de l'onde (équation (2.42)). Finalement, la vorticité ( $\vec{\Omega} = \vec{\nabla} \times \vec{v}$ ) au second ordre est régie par :

$$\vec{\Delta}\langle\vec{\Omega}_2\rangle = \frac{b}{\rho_0^2} \left\langle \vec{\nabla}\frac{\partial\rho_1}{\partial t} \times \vec{\nabla}\rho_1 \right\rangle - \vec{\nabla} \times \left(\frac{\rho_0}{\mu}\langle\vec{v}_1 \times \vec{\Omega}_1\rangle + \frac{1}{\rho_0}\langle\rho_1\vec{\nabla} \times \vec{\Omega}_1\rangle\right)$$
(2.62)

$$\vec{S}_V + \vec{S}_S.$$
 (2.63)

L'écoulement se développant dans le liquide est généré par deux sources différentes :

- une source de volume  $\vec{S}_V$  résultant de la dissipation du mode acoustique dans le volume. C'est le terme étudié par Eckart
- un terme de surface  $\vec{S}_S$ , étudié par Rayleigh, généré par le mode visqueux ( $\vec{\Omega}_1$ ) au premier ordre. Il est induit par le couplage entre le mode acoustique et rotationnel (condition de non-glissement) et traduit la dissipation visqueuse dans la couche limite.

# Streaming de Schlichting et de Rayleigh

=

Deux types de streaming peuvent être distingués lorsque la source de vorticité vient de l'atténuation dans la couche limite : le streaming de Schlichting localisé dans la couche limite et le streaming de Rayleigh généré en dehors par ce premier.

La condition de non-glissement impose un couplage entre le mode acoustique et visqueux. Le premier est généralement connu (terme de forçage) alors que le second doit alors être résolu par un problème de couche limite. Les deux modes pouvant être dissociés, le mode visqueux est calculé en résolvant l'équation de diffusion de la vorticité lorsque la paroi cisaille de manière périodique (forçage acoustique) un fluide au repos. Ce problème a été étudié par Schlichting [161] dans sa théorie de la couche limite. Ce mouvement rotationnel périodique génère alors un écoulement permanent dans la couche limite communément appelé streaming de Schlichting. Ce

dernier impose une vitesse de glissement à la frontière de la couche limite et génère un écoulement (streaming de Rayleigh) en dehors de celle-ci par convection, i.e le streaming de couche limite sert de source au streaming de Rayleigh (figure 2.23). Notons que ces écoulements peuvent également être observés dans d'autres domaines que l'acoustique, par exemple un cylindre excité périodiquement en rotation.



FIGURE 2.23: Streaming de Rayleigh et de Schlichting généré dans un microcanal par une onde acoustique de longueur d'onde  $\lambda$ . Figure tirée de la référence [162].

Ces écoulements ont été étudiés pour une onde acoustique par Rayleigh [159] puis étendus à des ondes de surface longitudinales ou transverses (parallèles à l'interface) par Schlichting [161]. Leurs résultats montrent que la condition de glissement générant le streaming de Rayleigh dans le volume est tangentielle à l'interface. Cependant, lorsque le mouvement de l'interface possède une composante normale (type onde de Rayleigh), la vitesse de glissement est modifiée et possède une composante perpendiculaire à la surface [123, 163].

Lorsque la taille du système est de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde acoustique, ces streamings vont jouer un rôle important. Ces écoulements sont alors utilisés en microfluidique pour mélanger des fluides au sein de structures de l'ordre du micron ou encore rassembler, collecter des particules dans des microcanaux [164].

## Streaming d'Eckart

Le streaming dit d'Eckart est l'écoulement permanent généré par la source volumique de vorticité de l'équation (2.63). L'onde acoustique au cours de sa propagation cède de l'énergie au liquide du fait de la dissipation visqueuse, donnant naissance à un déséquilibre de quantité de mouvement de part et d'autre d'une particule fluide. La "force" à l'origine de l'écoulement est proportionnelle à la viscosité. Cependant, la mise en mouvement du liquide requiert de vaincre les effets visqueux et l'écoulement résultant ne dépend pas de la viscosité mais du rapport b (équation (2.63)).
#### Force de Nyborg

Peu de temps après Eckart, sous l'impulsion de Nyborg [165], un traitement différent du streaming est introduit. Il va conduire à des erreurs en particulier lorsque les simulations numériques de ces phénomènes ont été réalisées. Pour regarder ce problème plus en détails, nous réécrivons les équations du mouvements sous la forme :

$$\frac{\partial(\rho\vec{v})}{\partial t} - \vec{F}_N = -\vec{\nabla}p + (\mu^b + \frac{4}{3}\mu)\vec{\nabla}(\vec{\nabla}.\vec{v}) - \mu\vec{\nabla}\times\vec{\nabla}\times\vec{v}$$
(2.64)

$$\vec{F}_N = -\rho(\vec{v}.\vec{\nabla})\vec{v} + \vec{\nabla}.(\rho\vec{v})\vec{v}, \qquad (2.65)$$

où  $\vec{F}_N$  est appelé ici force de Nyborg. En moyennant l'équation (2.64), il est alors possible d'obtenir directement une équation sur la vitesse moyenne  $\vec{v}_2$  générée par un champ oscillant. Il est raisonnable de considérer qu'en régime permanent seule la viscosité de cisaillement va impacter le mouvement. L'écoulement à l'ordre 2 est alors régit par :

$$\mu \vec{\Delta} \langle \vec{v}_2 \rangle = \vec{\nabla} \langle p_2 \rangle - \langle \vec{F}_N \rangle.$$
(2.66)

Comme l'a remarqué Lighthill [166], la force de Nyborg peut également s'écrire comme la divergence du tenseur de flux de quantité de mouvement :  $F_{Ni} = -\frac{\partial \rho v_i v_j}{\partial x_j}$ , soit la divergence du tenseur de Reynolds. L'écriture des équations sous cette forme permet de comprendre le streaming comme un écoulement produit par une force de volume due à une variation du flux de quantité de mouvement sur une particule fluide. Notons au passage la similitude avec le tenseur de Brioullin, qui lui traduit la force de surface appliquée par une onde acoustique.

Cependant cette formulation "simple" de la force du streaming contient également les couplages acoustiques-acoustiques n'intervenant pas dans la mise en écoulement. En effet, l'équation fait intervenir la pression  $p_2$  représentant l'élévation de pression due à la présence de l'onde. Afin de mettre en évidence cette contribution nous utilisons la dissipation de la quantité de mouvement acoustique (équation (21) de l'article d'Eckart [139]) pour expliciter cette force :

$$-\langle \vec{F}_N \rangle = \vec{\nabla} \langle \mathcal{L}_{ac} \rangle + \frac{\mu b}{\rho_0} \langle \rho_1 \vec{\nabla} (\vec{\nabla} \cdot \vec{v}_1) \rangle - \frac{\mu}{\rho_0} \langle \rho_1 \vec{\nabla} \times \vec{\nabla} \times \vec{v}_1 \rangle - \rho_0 \langle \vec{v}_1 \times \vec{\nabla} \times \vec{v}_1 \rangle$$
(2.67)

En prenant le rotationnel de cette équation, on retrouve alors la source volumique (second terme de droite) et surfacique (deux derniers termes) de vorticité de l'équation (2.63). Le premier

terme de droite correspond aux non linéarités locales. Ainsi, cette force inclut une partie qui ne contribue pas à l'écoulement mais à l'élévation de la pression  $p_2$ . Tant que les différents termes restent du même ordre de grandeur, une simulation numérique de l'équation (2.66) donnera des solutions physiques. Le problème se complique lorsque le terme d'élévation de pression est dominant, masquant alors les réelles sources de l'écoulement. Dans ce cas, la simulation est faussée par l'erreur numérique. Or, comme nous l'avons vu, la transmission d'énergie par des ondes acoustiques de surface engendre des forts gradients acoustiques, ce qui rend le gradient du laplacien dominant par rapport aux autres termes.

Prenons la force de streaming correspondant à l'onde de Rayleigh généralisée dérivée par Moriizumi [167] et réutilisée depuis par plusieurs auteurs [11], notamment pour simuler les écoulements de streaming [168, 169].

$$\langle F_x \rangle = \rho_0 (1 + \alpha_1^2) a_n^2 \omega^2 \alpha_R e^{-2\alpha_R (x_1 - \alpha_1 x_3)}$$
 (2.68)

$$\langle F_z \rangle = \rho_0 (1 + \alpha_1^2) a_n^2 \omega^2 \alpha_R \alpha_1 e^{-2\alpha_R (x_1 - \alpha_1 x_3)},$$
 (2.69)

avec  $\alpha_1 = \sqrt{\frac{V_R^2}{c^2} - 1}$  et  $(x_1, x_3)$  défini comme il a été décrit dans la section 2.1.3. Cette force étant à rotationnel nul, elle ne contribue donc pas à l'écoulement de streaming mais seulement à l'élévation de pression dans le liquide. Elle ne peut donc pas être utilisée pour simuler un écoulement de streaming.

La prise en compte de l'atténuation visqueuse dans l'expression de cette force permettrait d'obtenir un rotationnel non nul. Cependant, la simulation numérique de cette nouvelle expression resterait faussée car les effets visqueux sont plusieurs ordres de grandeur en deçà des gradients imposés par le rayonnement de l'onde acoustique de surface. La simulation numérique des écoulements en présence de forts gradients acoustiques, comme ici, doit donc être réalisée sur la vorticité et non la vitesse [123, 170].

# Dérive de Stokes

Nous nous sommes, pour le moment, intéressé au champ de vitesse eulérien généré par l'atténuation d'une onde acoustique. Cependant la vitesse observée, par  $\mu$ PIV (particle image velocimetry) par exemple, correspond à la vitesse lagrangienne. En non linéaire la différence entre ces deux quantités est non-nulle et donne naissance à une dérive, dite de Stokes  $\vec{v}_S$  [171], lorsque le mouvement est oscillant :

$$\langle \vec{v}^L(\vec{r},t) \rangle = \langle \vec{v}^E(\vec{r}+\vec{u}(t),t) \rangle \approx \langle \vec{v}^E(\vec{r},t) \rangle + \langle (\vec{u}(t).\vec{\nabla}) \vec{v}^E(\vec{r},t) \rangle$$
(2.70)

$$= \langle \vec{v}_2 \rangle + \langle \vec{u}_1 \cdot \vec{\nabla} \vec{v}_1 \rangle = \langle \vec{v}_2 \rangle + \vec{v}_S, \qquad (2.71)$$

où  $\vec{u}$  est le déplacement acoustique. Pour une onde plane, cette dérive de Stokes est  $v^S = \frac{1}{2} \frac{V_0^2}{c}$ où  $V_0$  est l'amplitude de l'onde acoustique. Cette vitesse a également été mise en évidence par Westervelt dans son célèbre paradoxe [172] par un bilan de flux de masse. Cette dérive pour une onde progressive peut être comprise en remarquant que les particules fluides se déplaçant dans le sens de l'onde ont une masse volumique supérieure à celles se dirigeant vers l'émetteur [148]. Ainsi, pour que la masse soit conservée, un écoulement stationnaire doit s'établir au sein du faisceau acoustique.

#### Comparaison des ordres de grandeurs et application à une goutte

Dans cette section nous avons couvert les différents types d'écoulements pouvant s'établir au sein d'un liquide irradié par une onde acoustique. Nous comparons maintenant l'ordre de grandeur de ces écoulements afin de déterminer l'origine du streaming observé dans une goutte. Le streaming de Schlichting s'établissant dans une épaisseur inférieure au micron peut être utilisé pour exciter des organismes micrométriques adhérant à la paroi mais restera négligeable à l'échelle d'une goutte. La vitesse eulérienne peut donc être décomposée en deux contributions : une provenant du streaming de Rayleigh  $\vec{v}_R$  et une du streaming d'Eckart  $\vec{v}_E$  et la vitesse lagrangienne s'écrit :

$$\langle \vec{v}^L \rangle = \vec{v}_R + \vec{v}_E + \vec{v}_S. \tag{2.72}$$

L'amplitude des différentes vitesses est donnée par une analyse dimensionnelle [123] :

$$v_R \sim cM^2$$
  $v_E \sim \frac{\omega^2 L^2 M^2}{c}$   $v_S \sim cM^2$ , (2.73)

avec  $M = \frac{V_0}{c}$  le nombre de Mach et L la dimension caractéristique de la zone où la quantité  $\vec{\nabla} \frac{\partial \rho_1}{\partial t} \times \vec{\nabla} \rho_1$  (terme source du streaming d'Eckart) est significative, *i.e.* la plus petite dimension de la zone irradiée par l'onde acoustique. Dans le cas d'une transmission partielle ou d'un champ réfléchi (f < 70 MHz)  $L = R_0$ . Par contre lorsque le champ dans le liquide est dominé par le champ incident (f > 70 MHz)  $L = L_R$ . La dérive de Stokes étant associée à la vibration de l'interface solide-liquide, il n'est pas étonnant de remarquer qu'elle est du même ordre de grandeur que le streaming de paroi (de Rayleigh).

L'écoulement se développant au sein d'une goutte dépend du rapport  $\frac{v_E}{v_{R,S}} \sim \frac{L^2}{\lambda^2}$ . Ainsi, le streaming d'Eckart sera dominant pour des fréquences supérieures à 1 MHz, alors qu'il sera négligeable par rapport au streaming de Rayleigh et à la dérive de Stokes lorsque la fréquence est inférieure.

L'écoulement du streaming d'Eckart peut atteindre des vitesses de l'ordre de 10-100 mm/s correspondant à un nombre de Reynolds hydrodynamique d'environ 100. Dans ces conditions, le traitement du streaming devra également inclure le terme convectif de l'équation de Navier-Stokes [166]. On parle alors de streaming de Stuart [173].

Le streaming acoustique est le second moteur du mouvement d'une goutte soumise à des ondes acoustiques de surface. Ce couplage non linéaire est un effet de volume induisant des écoulements au sein du liquide qui peuvent être utilisés à des fins de mélange ou de pompage en acoustofluidiques [19]. En résumé, sous l'excitation acoustique intense imposée par un transfert d'énergie efficace, le liquide est mis en mouvement par la déformation de l'interface imposée par la pression de radiation ou directement par la dissipation de l'onde acoustique.

Le mouvement de goutte excitée par une onde acoustique de surface dépend du phénomène d'actionnement sous-jacent. En effet la pression de radiation s'appliquant à l'interface génère des déformations différentes de celles créées par le streaming. Nous allons maintenant identifier les plages de fréquences où ces phénomènes sont susceptibles d'apparaitre.

# 2.3.7 Régimes d'actionnement

Une pression de radiation s'exerce à l'interface liquide-air s'il existe un déséquilibre de densité d'énergie acoustique de part et d'autre de l'interface, *i.e.* il faut que l'onde incidente impacte l'interface. La dissipation visqueuse de l'onde va donc déterminer la plage d'application de cet effet.

Le rapport de la longueur d'atténuation sur la taille caractéristique de la goutte, *i.e.* son rayon, permet de distinguer 3 régimes différents (figure 2.24). Pour des fréquences inférieures à 40 MHz l'onde est très peu atténuée, la pression de radiation s'appliquant à l'interface liquide-air est dominée par le champ réfléchi. Au contraire lorsque l'onde est fortement atténuée (f > 100MHz), l'interface n'est plus soumise à un déséquilibre de densité d'énergie acoustique et la pression de radiation peut être négligée. Entre ces deux régimes, le champ acoustique est une composition d'un champ réfléchi et incident, et l'importance de la pression de radiation due à l'onde incidente augmente avec la fréquence. Notons que la propagation non linéaire (section



FIGURE 2.24: Carte du rapport  $\frac{L_{att}}{R_0}$  dans le plan volume de goutte et fréquence d'excitation.

2.3.4) impose une dissipation effective plus importante décalant les régimes vers les basses fréquences.

Le comportement de la cavité (figure 2.15) dans le cas d'un champ réfléchi peut également moduler l'influence de la pression de radiation induite par le champ incident par rapport à celle du champ réfléchi. En effet, pour des fréquences inférieures à 10 MHz, une goutte se comporte comme une cavité résonante, l'énergie acoustique est répartie sur les modes propres et la déformation de l'interface sera alors dominée par la pression de radiation exercée par ces modes de résonance. Au contraire, lorsqu'une goutte réagit comme une cavité chaotique (fréquence comprise entre 15 et 40 MHz), l'énergie acoustique est répartie de manière aléatoire et nous pouvons supposer que la moyenne de la pression de radiation du champ réfléchi est homogène à l'interface. Dans ces conditions, la partie cohérente du champ acoustique (onde incidente) peut jouer un rôle important.

A l'opposé de la pression de radiation, le streaming acoustique (d'Eckart) sera d'autant plus intense que l'onde acoustique se dissipe. Nous évaluons l'intensité de cet effet en estimant la vitesse de streaming d'Eckart par l'équation (2.73). A nombre de Mach constant, la vitesse du streaming d'Eckart évolue en  $f^2$  tant que le champ acoustique occupe tout le volume ( $L = R_0$ ) puis sature lorsque le champ est confiné par l'onde de Rayleigh généralisée et la dissipation visqueuse ( $L = L_R \sim f^{-1}$ ). Cependant, le nombre de Mach évoluant avec la fréquence, il faut plutôt considérer une puissance de l'onde de Rayleigh incidente constante. Le nombre de Mach ( $M = \frac{a_n \omega}{c}$ ) est alors déterminé par l'équation (2.30) :

$$M^2 \approx \frac{P_0 \omega}{\pi \rho_s {V_R}^2 c^2},\tag{2.74}$$

où  $P_0$  est la puissance de l'onde de Rayleigh. Le confinement de l'onde de Rayleigh augmente avec la fréquence (pénétration de  $\lambda_S$ ) permettant un transfert de puissance plus efficace. Le nombre de Mach augmente donc linéairement avec la fréquence. La vitesse de streaming s'exprime alors :

$$v_E \sim \frac{L^2 \omega^3 P_0}{\pi \rho_S V_R^2 c^3}.$$
 (2.75)

Ainsi, lorsque le champ acoustique occupe tout le volume  $(L = R_0)$  la vitesse du streaming d'Eckart n'est plus proportionnelle à  $f^2$  mais à  $f^3$  et croit linéairement avec f lorsque le champ acoustique est confiné.

Cependant, ces ordres de grandeur de vitesse de streaming ont été établis pour une onde progressive. Or, comme nous l'avons montré au cours de ce chapitre, le champ acoustique se développant dans une goutte est complexe. Le problème est de savoir si le champ réfléchi contribue ou non à la mise en écoulement au sein d'une goutte. Cette question restera ouverte dans cette thèse.

En conclusion, ces deux effets d'acoustique non linéaire vont mettre en mouvement le liquide par une déformation de l'interface (pression de radiation et streaming intense) ou une génération d'écoulement (streaming acoustique). La dynamique d'une goutte de liquide sous l'action de ces moteurs va alors dépendre des phénomènes résistant au mouvement abordés dans la section suivante.

# 2.4 Microfluidique de goutte

Nous arrivons maintenant à la dernière étape de la mise en mouvement d'une goutte soumise à des ondes acoustiques de surface : la réaction d'un liquide à une excitation acoustique. Dans un premier temps nous couvrons les différents phénomènes résistant à la mise en mouvement d'une goutte posée sur une surface, puis nous nous décrirons les différentes dynamiques observées expérimentalement.

# 2.4.1 Introduction à la microfluidique

La microfluidique, comme son nom l'indique, est une branche de la physique s'intéressant aux écoulements de fluide à petite échelle. La réduction des dimensions d'un système fluidique engendre une modification des équations régissant le mouvement. Des effets couramment négligés à l'échelle macroscopique vont devenir prépondérants à l'échelle milli ou micromètrique. En raisonnant à partir d'une loi d'échelle, lorsque la taille d'un système diminue, les forces volumiques deviennent négligeables devant les forces de surface qui sont elles même négligeables devant les effets linéiques. Les écoulements microfluidiques sont alors gouvernés par les effets visqueux (de surface) et le mouvement d'une particule est régi par l'équation d'Euler, *i.e.* les effets de convection (force volumique) sont négligeables. La non linéarité de l'équation de Navier-Stokes responsable de la turbulence ne jouant pas de rôle, les écoulements sont laminaires, simplifiant le problème. Cependant, une des caractéristiques d'une goutte est la présence d'une interface libre dont le mouvement va être contrôlé aux échelles microfluidiques par les phénomènes capillaires.

# 2.4.2 Tension superficielle

Les effets de capillarité étant des effets de surface (interface) ou linéiques (ligne de contact), ces forces deviennent prépondérantes aux échelles microscopiques. Ces phénomènes influençant la dynamique macroscopique tirent leur origine dans l'organisation des molécules proches des interfaces. En effet, la discontinuité de densité entre deux phases induit un déséquilibre des forces répulsives et attractives (liaison hydrogène pour de l'eau) s'appliquant aux molécules proches de l'interface (figure 2.25). Les interactions répulsives sont des forces de courte distance et peuvent être considérées comme isotropes, alors que les forces attractives s'appliquant sur de longues distances sont sensibles à l'organisation moléculaire (phase de la matière) et sont donc anisotropes près d'une interface [174]. Il en résulte une force tangente à l'interface, appelée tension superficielle.



FIGURE 2.25: Forces intermoléculaires attractives (flèches noires) et répulsives (flèches grises) s'appliquant à une molécule dans le volume et proche de l'interface. [174].

D'un point de vue thermodynamique, ce déséquilibre des interactions introduit un excès d'énergie libre F. La tension de surface est définie comme l'énergie recquise pour augmenter la surface de l'interface A à température T, volume V et nombre de molécules m constant :

$$\sigma_{LV} = \left. \frac{\partial F}{\partial A} \right|_{T,V,m}.$$
(2.76)

La tension de surface entre un liquide et une vapeur  $\sigma_{LV}$  est ainsi définie en  $J/m^2$ . Cet effet peut également être vu d'un point de vue mécanique où la notion de force par unité de distance est préférée. A partir d'un bilan des forces s'appliquant à une interface, on peut obtenir une relation entre la pression s'appliquant de part et d'autre de celle-ci :

$$p_{in} - p_{ext} = \sigma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}\right) = 2\sigma H, \qquad (2.77)$$

où  $\sigma$  est la tension de surface,  $R_1, R_2$  sont les rayons de courbure principale et  $2H = -\vec{\nabla}.\vec{n}$  la courbure moyenne de l'interface ( $\vec{n}$  étant le vecteur normal à l'interface). Cette équation est connue sous le nom de loi de Laplace. Elle permet de quantifier le saut de pression induit par la courbure d'une interface. Pour une goutte sphérique, la pression dans le liquide est alors  $p_l = p_0 + \frac{2\sigma}{R_0}$ . Finalement, les effets capillaires se comportent comme un ressort et vont avoir tendance à ramener l'interface à sa position d'équilibre (minimisation de la surface).

#### 2.4.3 Vibration d'interface : ondes capillaires et modes propres d'une goutte

En dynamique l'interface va pourvoir servir de support à la propagation d'ondes dites capillaires. Une manifestation fréquente de ce phénomène (à Lille) sont les ondes se propageant à la surface d'une flaque un jour de pluie. Une déformation perpendiculaire à l'interface va alors être propagée par la tension de surface. Les ondes capillaires sont donc transversales et sont régies par la relation de dispersion ([175] art.263) suivante :

$$\omega_c^2 = \frac{\sigma k_c^3}{\rho},\tag{2.78}$$

où  $\omega_c$  et  $k_c$  sont respectivement la pulsation et le nombre d'onde capillaire. Cette équation est obtenue pour la propagation d'une onde capillaire sur une interface plane infinie en eau profonde (l'influence de l'interface liquide-solide est négligée). Pour une goutte, cette relation reste valide lorsque la courbure initiale est faible devant la courbure de l'onde, *i.e.*  $k_c R_0 \gg 1$ . Pour des longueurs d'onde de l'ordre de  $R_0$ , le système ne peut plus être considéré comme infini et les conditions aux limites discrétisent les modes de propagation. On parle alors de modes propres d'une goutte (ondes capillaires stationnaires). La déformation de l'interface est décrite par les harmoniques sphériques et les fréquences de résonance associées à l'harmonique d'ordre n ont été calculées par Lord Rayleigh [176] :

$$\omega_n^2 = \frac{n(n-1)(n+2)\sigma}{\rho R_0^3}.$$
(2.79)

Cette équation est équivalente à la relation de dispersion (2.78) en remplaçant le nombre d'onde par les valeurs discrètes imposées par la taille finie d'une goutte  $k_c = \frac{\sqrt[3]{n(n-1)(n+2)}}{R_0}$ . La dynamique de l'interface liquide-air est ainsi contrôlée par les effets capillaires, soit par la propagation d'ondes à la surface d'une goutte pour des longueurs d'onde faibles devant le rayon, soit en jouant le rôle de ressort au sein de l'oscillation d'une goutte. Ces phénomènes de surface vont également influencer la dynamique d'une goutte au travers des effets linéiques de l'interface triple solide-liquide-gaz, appelée ligne de contact.

# 2.4.4 Ligne de contact

Lorsque le système considéré incorpore 3 phases différentes, les effets de tension superficielle vont également contrôler le comportement de l'interface. Nous commençons par nous intéresser à l'équilibre statique s'établissant entre un solide, un liquide et un gaz.

# Loi de Young-Dupré et hystérèse de l'angle de contact

A l'instar de l'interface liquide-gaz, une tension de surface peut être définie pour les interfaces solide-liquide  $\sigma_{SL}$  et solide-vapeur  $\sigma_{SV}$ . L'équilibre thermodynamique des trois phases est alors déterminé par la valeur de ces tensions de surface. Il est décrit par la loi de Young [177] (figure 2.26) :

$$\sigma\cos\theta_e = \sigma_{SV} - \sigma_{SL},\tag{2.80}$$

où  $\theta_e$  est défini comme l'angle de contact à l'équilibre. Cet angle dépend donc des énergies d'interface entre les trois phases. Notons que le cas  $\sigma_{SV} = \sigma_{SL} + \sigma$  donne un angle de contact nul et correspond à un mouillage total de la surface.



FIGURE 2.26: Equilibre des énergies de surface à la ligne triple.

En réalité la surface solide présente, à l'échelle microscopique, des hétérogénéités chimiques ou géométriques telles que la rugosité de surface. A l'échelle macroscopique, l'angle de contact  $\theta_e$  est compris dans un intervalle  $\theta_r < \theta_e < \theta_a$  où  $\theta_r$  et  $\theta_a$  sont les angles de recul et d'avancée. Ces angles sont les valeurs de l'angle de contact nécessaires pour avancer (déplacement vers le solide "sec") ou reculer (vers le liquide) la ligne triple (figure 2.27).



FIGURE 2.27: Angle d'avancée (gauche) et de recul (droite) d'une surface non idéale.

Cet hystérésis de l'angle de contact induit alors un phénomène de rétention d'une goutte déposée sur une surface, *i.e.* les angles de contact à l'avant et à l'arrière devant dépasser les angles critiques pour qu'un mouvement soit possible. Cette force de rétention peut être quantifiée par [178, 179] :

$$F_r = 2\sigma R_0 \sin\left(\frac{\theta_a + \theta_r}{2}\right) (\cos\theta_r - \cos\theta_a).$$
(2.81)

Le déplacement d'une goutte par ondes acoustiques de surface nécessite donc un faible hystérésis, cependant le niobate de lithium utilisé pour générer les ondes de surface possède un hystérésis important :  $\theta_a - \theta_r \sim 30^\circ$ . Une silanisation du substrat par de l'octadécylthrichlorosilane CH<sub>3</sub> - (CH<sub>2</sub>)<sub>17</sub> - SiCl<sub>3</sub> (OTS) est donc utilisée pour augmenter l'angle de contact et réduire l'hystérésis (figure 2.28). Ce traitement de surface consiste à plonger le substrat dans une solution d'OTS dont une monocouche s'auto-assemble (SAMs "Self-Assembled Monolayers") à la surface du substrat [180]. Ce traitement permet alors de se placer dans une configuration quasi-hemisphérique et de réduire l'hystérèse de l'angle de contact :  $\theta_a = 105^\circ$  et  $\theta_r = 95^\circ$ .



FIGURE 2.28: Changement de l'angle de contact à l'aide d'une silanisation par de l'OTS.

### Dissipation à la ligne de contact

Le déplacement d'une goutte sur une surface donne naissance à de forts gradients de vitesse à proximité de la ligne de contact. En effet, une condition aux limites classique en mécanique des fluides est d'imposer une condition de non-glissement à l'interface entre un solide et un liquide. La continuité avec l'écoulement dans le volume est assurée par les effets visqueux du fluide. Or, lorsque le système considéré possède une interface triple la vitesse de la ligne de contact, appartenant à la fois au liquide et au solide, doit se déplacer avec le liquide tout en vérifiant la condition de vitesse nulle. Ce paradoxe, mis en évidence par Huh et Scriven [181], est le résultat du caractère multi-échelle du problème (figure 2.29). A l'échelle macroscopique, l'angle de contact dynamique  $\theta_{ap}$  diffère de l'angle d'équilibre et évolue avec la vitesse du liquide [182]. Le mouvement est gouverné par les forces de volumes et de surface. L'angle thermodynamique n'apparait alors qu'à l'échelle mésoscopique où les effets visqueux (forts gradients de vitesse) vont s'équilibrer avec les effets capillaires modifiant alors l'angle macroscopique  $\theta_{ap}$ . A l'échelle microscopique, le mouvement des premières couches moléculaires est décrit par une condition de glissement, dite de Navier généralisé[183]. Finalement, le déplacement d'une goutte sur une surface est accompagné d'une dissipation importante à la ligne de contact nécessitant ainsi une énergie importante.

# 2.4.5 Dynamiques d'une goutte excitée par des ondes acoustiques de surface

Les principaux phénomènes mis en jeu pour l'actionnement d'une goutte par des ondes acoustiques de surface ayant été décrits, nous nous intéressons maintenant aux différentes dynamiques observées expérimentalement.

Dans un premier temps, nous étudions l'influence de la fréquence d'excitation sur la dynamique d'une goutte. Nous utilisons une caméra rapide afin de capturer les déformations de l'interface et faisons la varier la fréquence acoustique (utilisation de plusieurs substrats) entre 2,5 MHz et 40 MHz.



FIGURE 2.29: Déplacement d'une ligne de contact sur une surface, les différents inserts correspondent aux différentes échelles impliquées dans le phénomène [183].



FIGURE 2.30: Dynamiques d'une goutte de 10  $\mu L$  observées pour différentes fréquences d'excitation acoustique.

# Modes d'oscillation de l'interface

La figure 2.30 présente les résultats obtenus pour l'ensemble des fréquences utilisées. On constate que la vibration de l'interface pour des fréquences inférieures à 7,5 MHz s'opère de manière chaotique. Puis, au fur et à mesure que la fréquence augmente, ces déformations chaotiques s'estompent progressivement jusqu'à devenir inobservables pour 40 MHz, laissant place à une oscillation de goutte entre une position sphéroïdale allongée et aplatie. Cette oscillation correspond au mode fondamental d'oscillation donné par n = 2 dans l'équation (2.79). De plus, l'excitation du mode propre est accompagnée d'une asymétrie de la déformation dans le sens de propagation de l'onde. Ces comportements sont en accord avec les considérations physiques faite sur la pression de radiation (figure 2.24). A faible fréquence, la déformation est dominée par la pression de radiation du champ réfléchi puis, lorsque celle-ci augmente, l'énergie acoustique est d'avantage dissipée par la viscosité, et la pression de radiation du champ incident prend le pas sur celle du champ réfléchi. La déformation est alors due à l'onde incidente et se fait selon l'angle de Rayleigh. L'oscillation tend alors à disparaitre pour des fréquences plus élevées du fait de l'atténuation de l'onde incidente.

Notons que les fréquences correspondant aux régimes de la figure 2.24 sont supérieures à celles observées expérimentalement. Cet écart est du à une dissipation plus importante de l'onde acoustique induite par le caractère non linéaire de sa propagation (section 2.3.4).

#### Déplacement d'une goutte

La déformation asymétrique d'une goutte sous une excitation supérieure à 10 MHz va permettre de dépasser les angles de contact critiques  $\theta_a$ ,  $\theta_r$ . Le liquide se déplacera alors dans le sens de l'onde. Cette dynamique est particulièrement sensible à l'hystérésis de l'angle de contact, d'une part car le déplacement dépend des angles critiques, et d'autre part car la déformation de l'interface est contrôlée par cet effet (figure 2.31). La pression de radiation de l'onde incidente engendre soit une déformation importante, lorsque la ligne de contact est libre (faible hystérésis), soit une courbure conséquente due à la concentration de l'énergie acoustique incidente lorsque cette dernière est bloquée (fort hystérésis). La translation du liquide décroit alors rapidement avec l'hystérésis.



FIGURE 2.31: Influence de l'hystérésis sur la déformation d'une goutte soumise à la même excitation : 20 MHz et puissance identique.

Trois régimes de déplacement ont été observés (figure 2.32) : (1) à faible hystérésis, le mouvement résulte d'une compétition entre la tension de surface (déformation importante) et la force de radiation acoustique, les lignes de contact influençant peu la dynamique. On peut alors distinguer une phase d'élévation à position fixe et une phase d'écrasement qui génèrent alors un déplacement important, la ligne triple étant emportée par l'inertie du liquide. (2) Au contraire, lorsque l'hystérèse de l'angle de contact est importante, les lignes de contact contrôlent la dynamique. Le volume oscille peu et la pression de radiation intense est contrée par une courbure importante de l'interface. Lors de la phase d'élévation la ligne de contact arrière est emportée par la déformation et la ligne avant est déplacée pendant la phase d'écrasement. (3) Un régime intermédiaire a été observé pour un hystérésis modéré, pour lequel le déplacement des lignes de contact se fait de manière très efficace tout en étant couplé à l'oscillation de la goutte.



FIGURE 2.32: Régimes de déplacement d'une goutte en fonction de l'hystérésis. Les flèches noires (respectivement rouge) indiquent le déplacement de la ligne de contact avant (resp. arrière).

Des travaux futurs pourront être dédiés à l'étude de l'influence de l'hystérésis de manière quantitave. Nous pouvons supposer que d'autres dynamiques de ligne de contact peuvent apparaitre. Le rapport de la vitesse de déplacement sur la puissance injectée pourra alors être utilisé pour comparer l'efficacité des différents régimes.

# Spectre fréquentiel de la vibration d'interface libre

Les différentes dynamiques exposées sont le résultat d'un transfert d'énergie par des non linéarités : réponse du système à une fréquence différente (mode fondamental  $\sim 50$  Hz) et régime chaotique. De plus ces dynamiques ne sont observées qu'au delà d'un certain seuil de l'amplitude d'excitation. Le mécanisme sous-jacent fait intervenir un couplage non linéaire entre les effets capillaires et les forces non linéaires acoustiques présentant des échelles temporelles différentes. Des explorations de ces phénomènes ont été réalisées par Blamey *et al.* [184] et Tran *et al.* [185] du groupe de Yeo et Friend grâce la mesure fréquentielle de la vibration de l'interface libre. Pour une fréquence de 20 MHz, leurs résultats montrent une cascade d'énergie, d'une fréquence aux alentours du kilohertz vers les hautes fréquences, caractéristique d'une turbulence d'onde capillaire. Il y a donc un transfert important d'énergie entre la fréquence d'excitation et une fréquence de l'ordre du kilohertz. L'explication donnée par les auteurs à ce phénomène est la transition d'un régime laminaire à un régime turbulent du streaming se développant dans le volume. Cependant, le second moteur du moteur du mouvement peut également être à l'origine de cette vibration.

En reprenant la méthode de Blamey nous avons utilisé un interféromètre laser commercial (Polytec MSA-500) afin de mesurer les vibrations de l'interface pour différentes excitations acoustiques. Pour ce faire une goutte de 10  $\mu$ L est déposée au point de focalisation d'un dispositif à peignes interdigités focalisés résonnant à 20 MHz. Un maillage de 10 points de mesures est ensuite défini au sommet de la goutte et 20 mesures sont effectuées en chaque point. L'impossibilité de positionner un faisceaux de référence immobile est ainsi compensée par un grand nombre de mesure : les spectres représentés en figure 2.33 correspondent à la moyenne des 200 mesures. Ces résultats sont interprétés qualitativement mais l'utilisation d'un faisceau de référence sera nécessaire pour une mesure quantitative de l'amplitude de vibration de l'interface.

Pour des puissances électriques inférieures à -19 dBm, la surface vibre à la fréquence acoustique 20 MHz correspondant à la réponse linéaire du système à l'excitation acoustique [185]. Au delà de ce seuil, une réponse non linéaire du système apparait à une fréquence de 20 kHz. Ce pic va alors s'élargir vers les hautes fréquences et les basses fréquences pour une excitation de -18 dBm. Finalement, lorsque la puissance électrique est augmentée à -17 dBm un large pic présentant un maximum à 30 kHz se forme.



FIGURE 2.33: Mesure par interférométrie de la vibration de la surface libre d'une goutte excitée à 20 MHz pour plusieurs puissances acoustiques.

Nous partons maintenant de l'hypothèse que la pression de radiation est à l'origine du déclenchement d'onde capillaire à l'interface liquide-air. La longueur caractéristique du champ de pression acoustique est  $\lambda$ , la longueur d'onde acoustique dans le liquide. La pression de radiation va forcer une déformation de l'interface à une échelle correspondant à cette longueur d'onde. Nous avons ainsi une continuité spatiale entre les phénomènes capillaires et acoustiques. La fréquence capillaire correspondant à la longueur d'onde acoustique est donnée par :

$$f_c = \sqrt{\frac{2\pi\sigma}{\rho\lambda^3}}.$$
(2.82)

Pour une excitation acoustique de 20 MHz, la fréquence capillaire correspondante est alors de 30 kHz. L'excitation d'une onde capillaire par le champ de pression de radiation est donc plausible. Si ce mécanisme est valide, une modification de la fréquence d'excitation engendre alors une longueur d'onde capillaire différente. La diminution de la longueur caractéristique des déformations excitées entre une fréquence de 2,5 et 5 MHz va dans le sens de cette explication. Cependant, des mesures par interférométrie devront être réalisées à ces fréquences pour confirmer ce mécanisme. De plus, le déplacement acoustique de l'onde de Rayleigh devra être mesuré en fonction de la puissance électrique afin de pouvoir comparer nos résultats à ceux de Blamey.



FIGURE 2.34: Mesure par interférométrie de la vibration de la surface libre d'une goutte excitée à 20 MHz entre 2 et 60 kHz.

Un second transfert d'énergie reste également à explorer : le transfert entre l'instabilité des ondes capillaires déclenchant la turbulence d'onde et les modes propres d'une goutte. A cet effet, nous avons mené une exploration de ce transfert en utilisant un vibromètre laser (Polytec MAS-500) pour mesurer le spectre à des fréquences inférieures au kilohertz (figure 2.34). Les résultats montrent que le pic de l'instabilité d'onde capillaire se sépare en deux pour des excitations importantes. Un des pics se décale vers les hautes fréquences. Nous pouvons supposer que la turbulence d'onde capillaire est à l'origine de ce phénomène. Le second se rapproche des basses fréquences, et le spectre présente un caractère discret pour des fréquences inférieures à 10 kHz. Ce transfert d'énergie discret se propage jusqu'au mode fondamental excitant alors les dynamiques observées sur la figure 2.30.

# 2.5 Conclusion

Nous avons au cours de ce chapitre couvert les différents aspects de l'actionnement d'une goutte par une onde acoustique de surface. Nous sommes partis des équations d'onde dans le solide pour décrire la propagation d'une onde de Rayleigh et d'une onde de Rayleigh généralisée afin de mettre en évidence l'efficacité du transfert d'énergie s'opérant à l'interface liquide-solide. Nous nous sommes, dans un second temps, intéressés au champ acoustique se développant au sein d'une goutte. Cela nous a permis de mettre en évidence les différents régimes excités et en particulier, un effet de cavité pour des fréquences inférieures à 70 MHz. Les forces provenant des effets d'acoustique non linéaire ont alors été passées en revue afin de mieux comprendre les moteurs du mouvement d'une goutte. Finalement, les effets capillaires nous ont permis de fermer la boucle des différents phénomènes mis en jeu.

Dans une dernière partie, les différents régimes de la dynamique d'une goutte, observés expérimentalement, ont été analysés à la lumière de nos connaissances. Nous avons notamment mis en évidence une sensibilité de la dynamique de la goutte à l'hystérésis de l'angle de contact qui devra faire l'objet d'études supplémentaires pour quantifier cette influence.

Le mécanisme responsable des différentes dynamiques observées est alors étudié par une mesure de la vibration de l'interface liquide-air. Le transfert d'énergie s'opérant de la fréquence acoustique (20 MHz) vers une fréquence de 20 kHz est analysé et une explication plausible en est donnée. La mesure de la vibration d'interface pour d'autres fréquences d'excitation devra être utilisée pour valider ce mécanisme. De plus, l'excitation de cette instabilité à seuil reste encore à explorer.

Un second transfert entre cette fréquence de 20 kHz et le mode fondamental a également été mise en évidence. Le caractère discret du spectre mesuré montre que plusieurs modes propres sont mis en jeu au cours de la mise en oscillation spontanée. Cette observation constitue la première motivation du développement d'un modèle d'oscillation non linéaire de goutte exposé au chapitre suivant. La seconde motivation étant l'observation expérimentale de résonances paramétriques d'une goutte soumise à des ondes acoustiques de surface par Baudoin *et al.* [107]. Cependant, la complexité des couplages non linéaire de modes propres nous amènera à restreindre notre étude au mode fondamental.

# Chapitre 3

# Oscillation non linéaire de goutte : étude des résonances super-harmoniques, harmoniques et sous-harmoniques

L'activation d'une goutte par des ondes acoustiques de surface fait intervenir plusieurs mécanismes non linéaires identifiés au chapitre 2. Le couplage entre les effets acoustiques et capillaires met spontanément en oscillation les gouttes selon un mécanisme encore méconnu, et qui fait l'objet depuis quelques années d'investigations. Il est malgré tout possible, avec des ondes acoustiques de surface, d'étudier la réponse d'une goutte sessile à une sollicitation périodique forcée en modulant le signal d'excitation à des fréquences proches de sa fréquence de résonance. Ainsi, une étude expérimentale réalisée par Miyamoto [186] a mis en évidence le caractère non linéaire de l'oscillation d'une goutte sessile grâce à l'étude du décalage du pic de résonance et de l'apparition d'une hystérèse en fonction de la fréquence de modulation. Ce comportement est typique d'un oscillateur anharmonique de type Duffing faisant intervenir des non linéarités cubiques. En prolongeant cette étude, Baudoin et al. [107] ont observé, en plus du décalage fréquentiel, l'apparition d'instabilités paramétriques pour des fréquences de modulation correspondant au double (régime sous-harmonique) et au deux tiers (régime super-harmonique) de la fréquence propre de la goutte, comme le montre la figure 3.1. Sur cette figure, l'amplitude verticale d'oscillation à la fréquence de résonance de la goutte est tracée en fonction de la fréquence de modulation de l'excitation acoustique. Ces instabilités sont typiques des oscillateurs contrôlés par une équation de type Mathieu provenant de non linéarités quadratiques.

Motivée par ces observations expérimentales, une modélisation de l'oscillation faiblement non linéaire d'une goutte est développée dans ce chapitre afin de déterminer l'équation anharmonique



FIGURE 3.1: Amplitude verticale de l'oscillation  $(\Delta h)$  divisée par la hauteur initiale  $(h_0)$  en fonction de la fréquence de modulation  $(f_m)$  pour différentes excitations acoustiques (d). Les couleurs de fond représentent les résonances super-harmoniques (vert), harmoniques (bleu) et sous-harmoniques (rouge).

régissant l'oscillation de l'interface. Au vu des difficultés de modélisation théorique des effets dissipatifs sur la ligne de contact, nous considérons dans une première approche les oscillations d'une goutte libre. Cette hypothèse est justifiée par l'observation de comportements similaires, i.e. des oscillations régies par une équation de type Duffing et la présence d'instabilité paramétriques, de gouttes mises en lévitation de manière acoustique [187, 188], aérodynamique [189] ou encore à l'aide d'un champ électrique [190, 191]. Dans un premier temps, l'équation anharmonique est obtenue par l'utilisation d'une formulation variationnelle combinée à une approche pertubative et une décomposition modale. Puis les différentes résonances de l'équation anharmonique sont étudiées.

# 3.1 Introduction

L'oscillation capillaro-inertielle d'une goutte libre a été mise en équation pour la première fois par Rayleigh [176] et étendue par Lamb [175] (art. 275) aux oscillations non-axisymétriques de bulles et de gouttes immergées dans un liquide. Un tel système possède une infinité de modes propres, décrits par des harmoniques sphériques, et dont les fréquences caractéristiques, connues sous le nom de fréquences de Rayleigh-Lamb, s'écrivent pour l'oscillation d'une goutte dans un gaz:

$$f_n = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{n(n-1)(n+2)\sigma}{\rho R_0^3}},$$
(3.1)

où  $\sigma$  représente la tension superficielle du liquide,  $\rho$  la densité,  $R_0$  le rayon de goutte, et l'entier nest l'ordre du mode d'oscillation, *i.e.* l'ordre de l'harmonique sphérique associé à la déformation. Ces fréquences peuvent être interprétées comme celle d'un système masse-ressort  $f = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{m}}$ où le ressort est ici d'origine capillaire. L'ordre 0 correspond au grossissement/rétrécissement du rayon et n'est observé que pour des fluides compressibles. L'ordre 1 correspond, lui, à une translation du liquide sans déformation de l'interface et n'excite pas d'oscillation. Les fréquences  $f_0$  et  $f_1$  sont donc nulles. Le mode 2 est le mode fondamental d'une goutte et correspond à une oscillation entre une forme sphéroïdale oblate (aplatie) et prolate (étirée).

Les premières expériences de gouttes en lévitation ont permis de valider cette fréquence de résonance pour de faibles amplitudes d'oscillation. Elles ont également mis en évidence le caractère non linéaire de l'oscillation au travers de la dépendance de la période d'oscillation avec l'amplitude pour des oscillations d'amplitude moyenne [187]. Motivés par ces observations, Tsamoupolos et Brown [192] ont étendu la théorie de Rayleigh aux oscillations faiblement non linéaires et prédit avec un bon accord cette chute en fréquence. Suite à ces travaux, des approches différentes confirmant ces résultats [193, 194], et élargissant l'analyse aux résonances internes par couplage non linéaire [195, 196], ont été utilisées.

Ces études sont basées sur l'hypothèse d'irrotationnalité de l'écoulement qui permet de décomposer l'oscillation en harmoniques sphériques, solutions de l'équation de Laplace en coordonnées sphériques. La vorticité générée par le mouvement de la surface libre est donc supposée être localisée dans une couche limite d'épaisseur  $\delta_v$  faible devant le rayon de goutte. Prosperetti [197], en caractérisant la diffusion de la vorticité au sein du volume par une méthode de valeur initiale, montre que cette hypothèse reste valide tant que le nombre capillaire est faible  $(Ca = \frac{\mu v}{\sigma} \sim \frac{\mu R_0 f}{\sigma} = \frac{\mu}{\sqrt{\rho \sigma R_0}})$ . Dans ces conditions, l'épaisseur de la couche limite finale est de l'ordre de  $R_0 \sqrt{Ca}$ . Dans ce chapitre, nous nous intéressons aux oscillations d'une goutte d'eau d'environ 10  $\mu$ L, pour laquelle  $Ca \sim 10^{-3}$  et l'épaisseur de la couche limite est d'une dizaine de micromètres. L'hypothèse d'irrotationnalité reste alors valide.

La dissipation visqueuse associée à un écoulement est généralement dominée par l'écoulement dans la couche limite dans le cas d'une interface liquide / solide. Cependant contrairement à un contact sans glissement, imposant des gradients de vitesse importants dans la couche limite, l'annulation du cisaillement à l'interface libre impose une condition non plus sur la vitesse mais sur les gradients de vitesse. Dans ce cas, la vorticité est du même ordre de grandeur que les gradients présents dans le volume [198]. La dissipation visqueuse de l'oscillation est alors dominée par l'écoulement irrotationnel, la vorticité étant localisée dans un volume négligeable. Le temps de décroissance pour de faibles oscillations est prédit par Lamb [175] (art. 355) :

$$\tau_{\nu} = \frac{1}{(n-1)(2n+1)} \frac{R_0^2}{\nu},\tag{3.2}$$

où  $\nu$  représente la viscosité cinématique. Pour des oscillations importantes, mais toujours dans le cadre d'une étude faiblement non linéaire, on peut montrer que ce temps dépend également de l'amplitude d'oscillation [191, 199] au travers de l'intégration des non linéarités de l'écoulement au sein de la dissipation visqueuse.

Enfin, les oscillations faiblement non linéaires de gouttes ont largement été étudiées pour comprendre l'évolution de la fréquence avec l'amplitude, l'asymétrie des oscillations, *i.e.* temps de résidence en forme prolate plus important qu'en oblate, observées expérimentalement, ou encore pour prédire des phénomènes de résonance interne. Cependant, l'instabilité paramétrique et l'hystérèse du pic de fréquence mise en évidence par plusieurs études expérimentales [187–191] restent peu explorées théoriquement [200].

L'objectif de ce travail est de mettre en évidence ces comportements de manière théorique. Pour ce faire nous utilisons une méthode asymptotique couplée à une décomposition en modes propres pour formuler une équation anharmonique de l'amplitude d'oscillation, et ensuite en étudier la réponse non linéaire sous une excitation périodique. Ce travail a été réalisé en parallèle de celui mené par des mathématiciens ukrainiens [201] publié l'année dernière. Leurs résultats nous ont permis de vérifier une partie de nos calculs.

# 3.2 Détermination de l'équation anharmonique

L'équation d'oscillation non linéaire d'une goutte est tout d'abord déterminée par l'utilisation combinée d'une approche lagrangienne, d'une étude pertubative et d'une décomposition sur les modes propres pour un fluide parfait. La dissipation visqueuse est alors introduite par l'utilisation d'une fonction de dissipation au sein des équations d'Euler-Lagrange permettant d'étendre le modèle à des gouttes faiblement visqueuses.

# 3.2.1 Décomposition en modes propres

Comme il a été discuté en introduction, il est raisonnable de se placer dans le cadre de l'hypothèse d'un écoulement irrotationnel dans le volume. Nous définissons donc un potentiel des vitesses  $\Phi$  par  $\vec{v} = \vec{\nabla} \Phi$ . Le liquide étant considéré incompressible, ce potentiel vérifie l'équation de Laplace

$$\vec{\nabla}.\vec{v} = \vec{\nabla}.\vec{\nabla}\Phi = \Delta\Phi = 0$$

Les harmoniques sphériques forment une base de l'espace des solutions de cette équation en coordonnées sphériques  $(r, \theta, \varphi)$ . L'oscillation excitée expérimentalement correspondant au mode fondamental axisymétrique, nous nous restreignons ici à l'étude des modes zonaux (m = 0). Notons que cette méthode a été généralisée aux modes "tesséraux" (0 < m < n) et sectoraux (m = n) par Chernova [201].

Nous recherchons des ondes capillaires stationnaires, *i.e.* des modes de résonance, en séparant les échelles spatiale et temporelle. La dépendance spatiale du rayon déformé de goutte (R) et du potentiel des vitesses est alors décomposée sur les modes propres d'une goutte caractérisés par la base orthonormale des harmoniques sphériques zonales  $(Y_n(\theta))_{n \in \mathbb{N}}$ 

$$Y_n(\theta) = N_n P_n(\cos(\theta)) = \sqrt{\frac{2n+1}{4\pi}} P_n(\cos(\theta)),$$

où  $P_n$  est le polynôme de Legendre d'ordre n et le coefficient  $N_n = \sqrt{\frac{2n+1}{4\pi}}$  est déterminé par la normalisation des polynômes de Legendre.

# 3.2.2 Approche pertubative et adimensionnement

Une approche faiblement non linéaire est développée par l'introduction d'un paramètre sans dimension  $\epsilon$  caractérisant l'amplitude d'oscillation de la goutte par rapport à son rayon initial, que l'on supposera faible ( $\epsilon \ll 1$ ). En adimensionnant le temps t par la période caractéristique de l'oscillation ( $\zeta = \frac{t}{\sqrt{\rho R_0^3/\sigma}}$ ) et les distances radiales r par le rayon initial ( $\eta = \frac{r}{R_0}$ ), le rayon et le potentiel s'expriment sous la forme :

$$R(\theta, t) = R_0 \left( 1 + \epsilon F(\theta, \zeta) \right) = R_0 \left( 1 + \epsilon \sum_{n=0}^{\infty} \alpha_n(\zeta) Y_n(\theta) \right), \qquad (3.3)$$

$$\Phi(r,\theta,t) = \epsilon \Phi_0 \sum_{n=1}^{\infty} \beta_n(\zeta) \eta^n Y_n(\theta), \qquad (3.4)$$

où  $\Phi_0 = \sqrt{\frac{\sigma R_0}{\rho}}$ , F est la déformation adimensionnée, et  $\alpha_n$  et  $\beta_n$  sont des coefficients associés aux oscillations de chacun des modes propres. L'objectif de cette partie est de formuler une équation anharmonique sur les amplitudes d'oscillation de la déformation  $\alpha_n$ .

# 3.2.3 Formalisme lagrangien

Tsamopoulos et Brown [192] ont utilisé une méthode combinant les équations de Navier-Stokes, les conditions aux limites et une approche pertubative. Au vu de la complexité de cette méthode, nous lui préférons l'approche lagrangienne, initialement utilisée par Rayleigh, qui permet de regrouper tous les calculs dans l'expression du lagrangien. Rayleigh a utilisé la forme classique du lagrangien, donnée par la différence entre l'énergie cinétique et potentielle  $(E_c - E_p)$ . Cependant, cette formulation n'est valide que pour une approche lagrangienne (mécanique classique) où les lois de conservation (telle que la conservation de la masse) sont intrinsèquement respectées, *i.e.* pour lesquelles les coordonnées généralisées du lagrangien sont associées à une particule fluide possédant une masse et une énergie. Or en description eulérienne, préférée en mécanique des fluides, les coordonnées spatiales et temporelles ne sont pas liées à une particule. On parle alors de coordonnées non canoniques [202], *i.e.* les coordonnées eulériennes ne donnent pas d'information sur l'état du système et ne peuvent pas jouer le rôle de coordonnées généralisées au sein du lagrangien. Les lois de conservation ne sont donc pas systématiquement respectées et doivent être forcées dans le lagrangien sous forme de contrainte par l'utilisation de multiplicateurs de Lagrange. Seliger et Whitman [203] montrent alors que la forme eulérienne de la densité lagrangienne est égale à la pression dans le fluide. Finalement, l'ajout des lois thermodynamiques relatives à l'équilibre de l'interface liquide-vapeur permet d'intégrer les effets capillaires au sein du lagrangien [204] qui s'écrit :

$$L = \int_{V} p \, dV - \sigma \int_{S} dS. \tag{3.5}$$

La pression p au sein d'un écoulement irrotationnel non visqueux est donnée par le théorème de Bernoulli :

$$p = -\rho \Phi_t - \frac{1}{2}\rho \left(\nabla \Phi\right)^2 - \rho g z + f(t),$$
(3.6)

où f est une fonction dépendant seulement du temps traduisant l'évolution de pression statique au cours du temps induit par les non linéarités. Le lagrangien se ramène alors au formalisme de Luke [205] précédemment utilisé pour les oscillations de goutte faiblement non linéaires [191, 194–196, 201] :

$$L = -\int_{V} \rho \left( \Phi_t + \frac{1}{2} (\nabla \Phi)^2 + gz \right) \, dV - \sigma \int_{S} dS + f \int_{V} dV.$$
(3.7)

Les équations d'Euler-Lagrange étant insensibles au signe attribué au lagrangien, nous définissons par commodité un lagrangien  $\mathcal{L} = -L$  qui, après adimensionnement, s'écrit :

$$\mathcal{L}^* = \int_{V(t)} \left( \frac{\partial \Phi^*}{\partial \zeta} + \frac{1}{2} (\nabla^* \Phi^*)^2 + Bo \ z^* \right) dV^* + \int_{S(t)} dS^* - f^* \int_{V(t)} dV^*.$$

Les variables adimensionnées sont repérées par un astérisque. Les bornes d'intégration dépendent du temps car l'interface oscille. Bo est le nombre de Bond  $(Bo = \frac{\rho g R_0^2}{\sigma})$  comparant les effets de gravité et capillaires. Il est de l'ordre de  $10^{-1}$  pour les volumes étudiés. Nous pouvons négliger la force de gravité dans cette étude, car d'une part elle n'est pas à l'origine des effets recherchés, et d'autre part elle est faible devant les forces capillaires. Dans la suite de ce chapitre, toutes les variables sont adimensionnées et l'emploi de l'astérisque est abandonné. Le lagrangien peut se décomposer de la manière suivante :

$$\mathcal{L} = \int_{V(t)} \frac{\partial \Phi}{\partial \zeta} dV + \frac{1}{2} \int_{V(t)} (\nabla \Phi)^2 dV + \int_{S(t)} dS - f \int_{V(t)} dV \quad (3.8)$$

$$= E_t(\zeta) + E_c(\zeta) + E_s(\zeta) - f \int_{V(t)} dV.$$
 (3.9)

Les trois premiers termes de droite correspondent aux différentes énergies excitées au cours de l'oscillation.  $E_t$  est l'énergie associée à l'inertie instationnaire du fluide,  $E_c$  est l'énergie cinétique de l'écoulement (inertie convective), et  $E_s$  est l'énergie potentielle capillaire de l'interface liquideair. Le dernier traduit l'élévation d'énergie induite par l'augmentation de pression statique dans le volume.

# 3.2.4 Expression du lagrangien non linéaire

Le système étudié présente plusieurs sources de non linéarité : capillaires, hydrodynamiques et celles provenant du couplage entre l'écoulement et la déformation au travers de la condition cinématique. Les différentes énergies sont calculées séparément pour identifier l'origine des différents termes non linéaires dans l'équation finale.

Nous commençons par présenter les conventions et les méthodes utilisées pour le calcul du lagrangien. Puis les différents termes de l'équation (3.9) sont exprimés en puissance de  $\epsilon$ . Notons que l'équation linéaire est donnée par les termes en  $O(\epsilon^2)$  du lagrangien. Le développement en puissance de  $\epsilon$  s'arrête donc aux termes en  $O(\epsilon^5)$  pour obtenir une équation anharmonique cubique, *i.e.* de type Duffing.

# Conventions de calcul

Nous introduisons l'intégration sur l'angle solide  $\Omega$  par :

$$\int_{0}^{2\pi} \int_{0}^{\pi} g \sin \theta d\theta d\varphi = \int_{\Omega} g \ d\Omega.$$

De plus, le calcul des termes non linéaires fait intervenir l'intégration du produit de plusieurs vecteurs propres  $(Y_n)$  qui traduisent le couplage entre différents modes d'oscillations. Afin d'éclaircir les expressions, nous introduisons plusieurs coefficients de couplage :

$$a_{ijk} = \int_{\Omega} Y_i Y_j Y_k d\Omega, \qquad b_{ijk} = \int_{\Omega} Y_i Y'_j Y'_k d\Omega, \qquad c_{ijkl} = \int_{\Omega} Y_i Y_j Y_k Y_l d\Omega,$$
$$d_{ijkl} = \int_{\Omega} Y_i Y_j Y'_k Y'_l d\Omega, \qquad e_{ijkl} = \int_{\Omega} Y'_i Y'_j Y'_k Y'_l d\Omega,$$

et rappelons quelques propriétés des polynômes de Legendre :

$$\int_{\Omega} Y_i d\Omega = 2\sqrt{\pi}\delta_{i0}, \qquad \int_{\Omega} Y_i Y_j d\Omega = \delta_{ij}, \qquad \int_{\Omega} Y'_i Y'_j d\Omega = i(i+1)\delta_{ij}.$$

#### Non linéarité de couplage entre l'écoulement et la déformation

Une des sources de non linéarité (NL) du problème provient du couplage entre l'écoulement et la déformation de l'interface au travers de la condition cinématique. Cette interaction apparait dans l'expression des énergies associées à l'écoulement ( $E_t$  et  $E_c$ ) par la variation de la borne supérieure d'intégration du rayon  $(1 + \epsilon F)$ . L'intégrale est alors décomposée en deux parties : l'intégration sur le volume initiale ( $0 < \eta < 1$ ) et le terme de couplage avec l'oscillation de la surface ( $1 < \eta < 1 + \epsilon F$ ) représentée par la fonction h.

$$\int_{\Omega} \int_{0}^{1+\epsilon F} g \ d\eta d\Omega = \int_{\Omega} \left( \int_{0}^{1} g d\eta + h \left( 1 + \epsilon F \right) \right) d\Omega.$$

La fonction h est développée en série de Taylor jusqu'à l'ordre 4, en prenant en compte le fait que la fonction g est en  $O(\epsilon)$ :

$$h(1+\epsilon F) = h(1) + \epsilon F \left. \frac{\partial h}{\partial \eta} \right|_{\eta=1} + \frac{1}{2} \epsilon^2 F^2 \left. \frac{\partial^2 h}{\partial \eta^2} \right|_{\eta=1} + \frac{1}{6} \epsilon^3 F^3 \left. \frac{\partial^3 h}{\partial \eta^3} \right|_{\eta=1} + O(\epsilon^4),$$

où :

$$h(1) = \int_{1}^{1} g \ d\eta = 0, \qquad \quad \frac{\partial h}{\partial \eta} = g, \qquad \quad \frac{\partial^{2} h}{\partial \eta^{2}} = \frac{\partial g}{\partial \eta}, \qquad \quad \frac{\partial^{3} h}{\partial \eta^{3}} = \frac{\partial^{2} g}{\partial \eta^{2}}$$

L'intégrale sur le rayon s'exprime donc sous la forme :

$$\int_{0}^{1+\epsilon F} g \, d\eta = \int_{0}^{1} g \, d\eta + \epsilon g(1)F + \frac{1}{2}\epsilon^2 F^2 \left. \frac{\partial g}{\partial \eta} \right|_{\eta=1} + \frac{1}{6}\epsilon^3 F^3 \left. \frac{\partial^2 g}{\partial \eta^2} \right|_{\eta=1} + O(\epsilon^4).$$
(3.10)

# Dérive du rayon de référence

Le dernier terme de l'équation (3.9) fait intervenir la fonction f inconnue. Afin de s'affranchir de cette fonction nous utilisons la conservation du volume lorsque l'interface oscille pour annuler ce terme. L'intégration sur le volume dépend de la déformation  $(1 + \epsilon F)$ .

$$V = \int_{\Omega} \int_{0}^{1+\epsilon F} \eta^2 d\eta d\Omega = \int_{\Omega} \left( \frac{1}{3} + \epsilon F + \epsilon^2 F^2 + \frac{1}{3} \epsilon^3 F^3 \right) d\Omega$$
  
$$= \frac{4\pi}{3} + \epsilon \sum_{n=0}^{\infty} \alpha_n \int_{\Omega} Y_n d\Omega + \epsilon^2 \sum_{i,j=0}^{\infty} \alpha_i \alpha_j \int_{\Omega} Y_i Y_j d\Omega + \frac{1}{3} \epsilon^3 \sum_{i,j,k=0}^{\infty} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \int_{\Omega} Y_i Y_j Y_k d\Omega$$
  
$$= \frac{4\pi}{3} + \epsilon 2\sqrt{\pi} \alpha_0 + \epsilon^2 \sum_{n=0}^{\infty} \alpha_n^2 + \frac{1}{3} \epsilon^3 \sum_{i,j,k=0}^{\infty} a_{ijk} \alpha_i \alpha_j \alpha_k.$$

En linéaire (en  $O(\epsilon)$ ), la description de l'oscillation par les polynômes de Legendre respecte la conservation du volume et l'interface oscille autour de la forme initiale, *i.e.*  $\alpha_0 = 0$ . Cependant lorsque l'amplitude est finie, cette description est incompatible avec la conservation de la masse, et l'oscillation ne se fait plus autour du rayon initial.

La déformation de l'interface doit donc être décrite par rapport à un rayon de référence ( $\neq R_0$ ) qui dépend du temps et de l'amplitude d'oscillation. Cette variation est prise en compte par le coefficient  $\alpha_0$  et le rayon de référence est alors  $R_0 - \alpha_0(\epsilon, \zeta)Y_0$ .

$$\alpha_0 = -\frac{\epsilon}{2\sqrt{\pi}} \sum_{n=0}^{\infty} \alpha_n^2 - \frac{\epsilon^2}{6\sqrt{\pi}} \sum_{i,j,k=0}^{\infty} a_{ijk} \ \alpha_i \alpha_j \alpha_k.$$
(3.11)

La déformation de l'interface est alors corrigée pour incorporer la variation du rayon de référence :

$$F(\theta,\zeta) = \sum_{n=1}^{\infty} \alpha_n Y_n - \frac{1}{4\pi} \left( \epsilon \sum_{n=1}^{\infty} \alpha_n^2 + \frac{1}{3} \epsilon^2 \sum_{i,j,k=1}^{\infty} a_{ijk} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \right)$$
(3.12)

$$=F_0(\theta,\zeta) - \frac{1}{4\pi} \left(\epsilon F_1(\zeta) + \frac{1}{3}\epsilon^2 F_2(\zeta)\right), \qquad (3.13)$$

où on a utilisé le fait que  $Y_0(\theta) = \frac{1}{2\sqrt{\pi}}$ . Les termes  $F_1$  et  $F_2$  représentent les termes de dérive du rayon de référence due aux non linéarités de la déformation. Le dernier terme du lagrangien s'écrit alors :

$$f \int\limits_{V(t)} dV = \frac{4\pi}{3}f$$

L'élévation d'énergie due au changement de pression statique dans le volume ne dépendant pas des variables  $\alpha_n$  et  $\beta_n$ , elle n'influence pas la dynamique de l'oscillation et va s'annuler en appliquant les équations d'Euler-Lagrange.

#### Energie associée à l'écoulement

L'utilisation de la formule (3.10) et de la déformation corrigée (3.13) permet de développer le terme instationnaire et l'énergie cinétique en puissance de  $\epsilon$ :

$$E_{t}(\zeta) = \epsilon^{2} \sum_{n=1}^{\infty} \alpha_{n} \dot{\beta}_{n} + \frac{1}{2} \epsilon^{3} \sum_{i,j,k=1}^{\infty} (k+2) a_{ijk} \alpha_{i} \alpha_{j} \dot{\beta}_{k} + \epsilon^{4} \left( \frac{1}{6} \sum_{i,j,k,l=1}^{\infty} (l+2)(l+1) c_{ijkl} \alpha_{i} \alpha_{j} \alpha_{k} \dot{\beta}_{l} - \frac{1}{4\pi} \sum_{i,j=1}^{\infty} (j+2) \alpha_{i}^{2} \alpha_{j} \dot{\beta}_{j} \right) + O(\epsilon^{5}). \quad (3.14)$$

Le détail des calculs est donné en annexe D. Nous pouvons remarquer que le terme linéaire fait intervenir la dérivée de la vitesse  $(\dot{\beta}_n)$  et la position de l'interface  $(\alpha_n)$  représentant la condition cinématique. Les termes aux ordres supérieurs font intervenir les termes de couplage NL des modes de déformation de l'interface.

L'énergie cinétique se ramène à :

$$E_{c}(\zeta) = \frac{1}{2}\epsilon^{2} \sum_{n=1}^{\infty} n\beta_{n}^{2} + \frac{1}{2}\epsilon^{3} \sum_{i,j,k=1}^{\infty} (jk \ a_{ijk} + b_{ijk})\alpha_{i}\beta_{j}\beta_{k} + \frac{1}{4}\epsilon^{4} \left( \sum_{i,j,k,l=1}^{\infty} (k+l)(kl \ c_{ijkl} + d_{ijkl})\alpha_{i}\alpha_{j}\beta_{k}\beta_{l} - \frac{1}{2\pi} \sum_{i,j=1}^{\infty} j(2j+1)\alpha_{i}^{2}\beta_{j}^{2} \right) + O(\epsilon^{5}). \quad (3.15)$$

Le terme linéaire ne dépend que de l'écoulement, au travers de  $\beta_n^2$ , alors que les termes NL font intervenir un couplage avec la déformation de l'interface.

#### Energie de surface

L'énergie potentielle capillaire est proportionnelle à l'aire de l'interface liquide-gaz. Celle-ci est calculée via l'introduction de la coordonnée curviligne polaire s. L'arc élémentaire ds est exprimé en fonction du rayon de goutte par

$$ds^2 = dr^2 + r^2 \ d\theta^2 \Leftrightarrow ds = r\sqrt{1 + \left(\frac{r_{\theta}}{r}\right)^2} \ d\theta$$

La surface élémentaire dS est  $ds \times r \sin \varphi d\varphi$  et l'énergie de surface s'écrit :

$$E_s = \int_{S} dS = \int_{\Omega} (1 + \epsilon F)^2 \sqrt{1 + \left(\frac{\epsilon F_{\theta}}{1 + \epsilon F}\right)^2} \, d\Omega.$$

Après décomposition sur les modes propres, l'énergie potentielle est

$$E_s(\zeta) = 4\pi + \epsilon^2 \sum_{n=1}^{\infty} \left( \frac{1}{2} n(n+1) - 1 \right) \alpha_n^2 - \frac{2}{3} \epsilon^3 \sum_{i,j,k=1}^{\infty} a_{ijk} \alpha_i \alpha_j \alpha_k$$
$$+ \epsilon^4 \left( \frac{1}{4\pi} \sum_{i,j=1}^{\infty} \alpha_i^2 \alpha_j^2 - \frac{1}{8} \sum_{i,j,k,l=1}^{\infty} e_{ijkl} \alpha_i \alpha_j \alpha_k \alpha_l \right) + O(\epsilon^5), \quad (3.16)$$

où les termes non linéaires font intervenir le couplage entre modes.

Les différents termes du lagrangien sont ainsi exprimés en fonction des  $\beta_n$  et  $\alpha_n$ , et développés jusqu'à l'ordre cubique. L'application des équations d'Euler-Lagrange exprimera alors la condition cinématique (dérivation par rapport aux  $\beta_n$ ) qui injectée dans l'équation dynamique (dérivation par rapport aux  $\alpha_n$ ) déterminera l'équation anharmonique recherchée.

# 3.2.5 Condition cinématique

L'équation d'Euler-Lagrange par rapport aux variables  $\beta_n$  exprime la condition cinématique à l'interface, *i.e.* le couplage entre l'écoulement et la déformation.

$$\frac{d}{dt}\left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\beta}_n}\right) - \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \beta_n} = 0.$$
(3.17)

En utilisant les propriétés de symétrie des coefficients de couplages définies précédemment il vient :

$$\frac{d}{dt}\left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\beta_n}}\right) = \frac{d}{dt}\left(\frac{\partial E_t}{\partial \dot{\beta_n}}\right) = \epsilon^2 \dot{\alpha}_n + \epsilon^3 \sum_{i,j=1}^{\infty} (n+2)a_{ijn} \alpha_i \dot{\alpha}_j + \epsilon^4 \sum_{i,j,k=1}^{\infty} A_{ijkn} \alpha_i \alpha_j \dot{\alpha}_k, \quad (3.18)$$

$$\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \beta_n} = \frac{\partial E_c}{\partial \beta_n} = \epsilon^2 n \beta_n + \epsilon^3 \sum_{i,j=1}^{\infty} (jn \ a_{ijn} + b_{ijn}) \alpha_i \beta_j + \epsilon^4 \sum_{i,j,k=1}^{\infty} B_{ijkn} \ \alpha_i \alpha_j \beta_k, \tag{3.19}$$

où :

$$A_{ijkn} = \frac{n+2}{2} \left( (n+1)c_{ijkn} - \frac{1}{2\pi} (2\delta_{jk}\delta_{in} + \delta_{ij}\delta_{kn}) \right),$$
  
$$B_{ijkn} = \frac{n+k}{2} (kn \ c_{ijkn} + d_{ijkn}) - \frac{n(2n+1)}{4\pi} \delta_{ij}\delta_{kn}.$$

La condition cinématique NL est déterminée par la méthode des approches successives : la condition linéaire ( $\epsilon^2$ ) est introduite dans le terme en  $\epsilon^3$  et donne une correction quadratique. Puis cette nouvelle condition est réintroduite au sein du terme en  $\epsilon^4$  pour obtenir la correction cubique. Les variables de l'écoulement  $\beta_n$  sont ainsi exprimées en fonction de la déformation de l'interface  $\alpha_n$ :

$$\beta_n = \frac{\dot{\alpha}_n}{n} + \epsilon \sum_{i,j=1}^{\infty} C_{ijn} \alpha_i \dot{\alpha}_j + \epsilon^2 \sum_{i,j,k=1}^{\infty} D_{ijkn} \alpha_i \alpha_j \dot{\alpha}_k + O(\epsilon^3), \qquad (3.20)$$

avec :

$$C_{ijn} = \frac{1}{n} \left( (n+2)a_{ijn} - \frac{(jn \ a_{ijn} + b_{ijn})}{j} \right),$$
  
$$D_{ijkn} = \frac{1}{n} \left( A_{ijkn} - \frac{B_{ijkn}}{k} - \sum_{l=1}^{\infty} (ln \ a_{iln} + b_{iln})C_{jkl} \right).$$

Le couplage entre l'écoulement et la déformation est une source de non linéarité comme le montre la relation entre les  $\beta_n$  et les  $\alpha_n$ . L'équation d'Euler-Lagrange par rapport aux  $\alpha_n$  exprimera alors la condition dynamique du système et permettra d'expliciter l'équation anharmonique.

# 3.2.6 Puissance dissipée par viscosité

L'intégration de la dissipation visqueuse bien que faible ( $Ca \ll 1$ ) est nécessaire pour l'analyse de l'équation anharmonique de la section suivante. En effet, lors de l'étude des résonances, le terme dissipatif évite une discontinuité de la réponse du système. De plus l'intégration de la viscosité dans l'équation va mettre en évidence son influence sur les différentes résonances et en particulier sur les seuils de déclenchement des instabilités paramétriques. Celle-ci est introduite grâce à une fonction de dissipation F au sein des équations d'Euler-Lagrange. Nous repassons ici à des variables dimensionnées :

$$\frac{d}{dt}\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\alpha}_n} - \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \alpha_n} = -\frac{\partial F}{\partial \dot{\alpha}_n}.$$
(3.21)

Les termes de gauche correspondent à l'oscillation pour un fluide parfait et le terme de droite introduit les effets visqueux. La fonction de dissipation est égale à la moitié de la puissance dissipée par l'écoulement introduit par Lamb [175](art. 329). Cette dissipation peut être décomposée en trois parties : la dissipation due à la vorticité ( $\vec{\omega} = \vec{\nabla} \times \vec{v}$ ), celle due à l'écoulement irrotationnel, et celle due à un terme de couplage entre les deux :

$$2F = \mu \int_{V} \omega^2 dV + \mu \int_{V} \Delta(v^2) dV - 2\mu \int_{V} \vec{\nabla} . (\vec{v} \times \vec{\omega}) dV.$$
(3.22)

Comme il a été discuté en introduction, la vorticité au sein du liquide est localisée dans une couche limite d'épaisseur  $\delta_v$ . De plus, du fait de la condition de cisaillement nul, les gradients de vitesse dans cette couche sont du même ordre de grandeur que ceux présents dans le volume [198]. Ainsi, l'adimensionnement s'applique également à la vorticité, *i.e.*  $v^* \sim \omega^* \sim \epsilon$ . En introduisant un second paramètre  $\delta = \frac{\delta_v}{R_0} \ll 1$ , représentant l'épaisseur de la couche limite, la puissance dissipée adimensionnée s'écrit :

$$2F = \frac{\mu\sigma}{\rho} \left[ \int\limits_{\Omega} \left( \int\limits_{1+\epsilon F-\delta}^{1+\epsilon F} \left( \omega^{*\ 2} - 2\vec{\nabla^{*}}.(\vec{v^{*}} \times \vec{\omega^{*}}) \right) \eta^{2} d\eta + \int\limits_{0}^{1+\epsilon F} \Delta^{*}(v^{*\ 2}) \eta^{2} d\eta \right) d\Omega \right].$$

L'intégrale faisant intervenir la vorticité est nulle partout sauf dans la couche limite. En utilisant le développement (3.10) on peut montrer que l'intégrale de gauche de l'équation ci-dessus est

de l'ordre de  $\delta\epsilon^2$ , alors que celle de droite est de l'ordre  $\epsilon^2$ . Finalement comme  $\delta = \sqrt{Ca} \ll 1$ , la dissipation visqueuse de l'oscillation est donc dominée par les pertes de l'écoulement irrotationnel. Nous posons  $\mathcal{F} = \frac{F}{(\mu\sigma)/\rho}$  et abandonnons l'utilisation de l'astérisque pour les valeurs sans dimension :

$$2\mathcal{F} = \int_{V} \Delta(v^2) dV = \int_{S} \vec{\nabla}(v^2) . \vec{dS}.$$

L'équation d'Euler Lagrange adimensionnée s'écrit alors :

$$\frac{d}{dt}\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\alpha}_n} - \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \alpha_n} = -Ca \ \frac{\partial \mathcal{F}}{\partial \dot{\alpha}_n} = -\delta^2 \ \frac{\partial \mathcal{F}}{\partial \dot{\alpha}_n}.$$

L'ordre  $\delta^2$  des effets visqueux met en évidence la faible influence de la viscosité sur la dynamique de l'oscillation aux échelles de temps considérées. Cependant, la viscosité joue un rôle important pour des temps longs (décroissance de l'oscillation) comme peut le montrer une étude multiéchelle [199]. De plus, la viscosité joue un rôle essentiel dans le mécanisme de déclenchement de l'instabilité paramétrique, *i.e.* le taux de croissance de l'instabilité doit compenser la dissipation visqueuse pour qu'une instabilité soit observée. Pour de faibles nombres capillaires, nous pouvons considérer seulement les effets visqueux linéaires et la fonction de dissipation s'exprime

$$\mathcal{F} = \epsilon^2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(n-1)(2n+1)}{n} \dot{\alpha}_n^2 + O(\epsilon^3).$$

Pour des nombres capillaires plus importants, la couche limite devient non négligeable et la dissipation visqueuse due à l'écoulement rotationnel est du même ordre que celle de l'écoulement irrotationnel. L'écoulement dans la couche limite doit être alors connu [206, 207].

# 3.2.7 Equation dynamique

Les équation d'Euler-Lagrangange par rapport à la déformation  $(\alpha_n)$  vont alors donner l'équation anharmonique recherchée. Notons que  $\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\alpha}_n} = 0$  et que :

$$\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \alpha_n} = \epsilon^2 (\dot{\beta}_n + (n(n+1)-2)\alpha_n) \\
+ \epsilon^3 \sum_{i,j=1}^{\infty} \left( (j+2)a_{nij}\alpha_i \dot{\beta}_j + \frac{1}{2}(ija_{nij}+b_{nij})\beta_i \beta_j - 2a_{nij}\alpha_i \alpha_j \right) \\
+ \epsilon^4 \sum_{i,j,k=1}^{\infty} \left( A_{ijnk}\alpha_i \alpha_j \dot{\beta}_k + B_{nijk}\alpha_i \beta_j \beta_k + (\frac{1}{\pi}\delta_{in}\delta_{jk} - \frac{1}{2}e_{nijk})\alpha_i \alpha_j \alpha_k \right) + O(\epsilon^5). \quad (3.23)$$

La dissipation visqueuse prédite par Lamb est retrouvée par la fonction de dissipation.

$$\frac{\partial \mathcal{F}}{\partial \dot{\alpha}_n} = \epsilon^2 2 \frac{(n-1)(2n+1)}{n} \dot{\alpha}_n$$

Les variables de l'écoulement  $\beta_n$  et leurs dérivées sont éliminées de l'équation en utilisant la condition cinématique (3.20). Finalement l'équation anharmonique de la déformation du mode n recherchée est :

$$\ddot{\alpha}_{n} + 2Ca(n-1)(2n+1)\dot{\alpha}_{n} + n(n+2)(n-1)\alpha_{n} + \epsilon \sum_{i,j=1}^{\infty} \left(\kappa_{nij}^{(2)}\alpha_{i}\ddot{\alpha}_{j} + \kappa_{nij}^{(1)}\dot{\alpha}_{i}\dot{\alpha}_{j} + \kappa_{nij}^{(0)}\alpha_{i}\alpha_{j}\right) \\ + \epsilon^{2} \sum_{i,j,k=1}^{\infty} \left(\Pi_{nijk}^{(2)}\alpha_{i}\alpha_{j}\ddot{\alpha}_{k} + \Pi_{nijk}^{(1)}\alpha_{i}\dot{\alpha}_{j}\dot{\alpha}_{k} + \Pi_{nijk}^{(0)}\alpha_{i}\alpha_{j}\alpha_{k}\right) + O(\epsilon^{3}) = 0, \quad (3.24)$$

avec :

$$\begin{split} \kappa_{nij}^{(2)} &= (n+2)a_{ijn} - \frac{jn \ a_{ijn} + b_{ijn}}{j} + \frac{n(j+2)a_{ijn}}{j}, \\ \kappa_{nij}^{(1)} &= (n+2)a_{ijn} - \frac{jn \ a_{ijn} + b_{ijn}}{j} + \frac{n(ij \ a_{ijn} + b_{nij})}{2ij}, \\ \kappa_{nij}^{(0)} &= -2n \ a_{ijn}, \\ \Pi_{nijk}^{(2)} &= n \left( D_{ijkn} + \sum_{l=1}^{\infty} (l+2)a_{inl}C_{jkl} + \frac{A_{ijnk}}{k} \right), \\ \Pi_{nijk}^{(1)} &= n \left( D_{ijkn} + D_{jikn} + \frac{B_{nijk}}{jk} \right) \\ &+ n \sum_{l=1}^{\infty} \left( (l+2)a_{inl}C_{jkl} + \frac{(jla_{njl} + b_{njl})C_{ikl}}{j} + \frac{(lka_{nlk} + b_{nlk})C_{ijl}}{k} \right), \\ \Pi_{nijk}^{(0)} &= -\frac{n}{2}e_{nijk} + \frac{n}{\pi}\delta_{in}\delta_{jk}. \end{split}$$

Ces coefficients prennent en compte les différents couplages entre modes et sont associés à des non linéarités particulières. Les  $\kappa_{nij}^{(2)}$  et  $\Pi_{nijk}^{(2)}$  représentent les non linéarités provenant du terme instationnaire, les  $\kappa_{nij}^{(1)}$  et  $\Pi_{nijk}^{(1)}$  regroupent les non linéarités inertielles (termes convectif et

instationnaire) alors que les  $\kappa_{nij}^{(0)}$  et  $\Pi_{nijk}^{(0)}$  viennent de l'énergie de surface. On peut d'ores et déjà remarquer que les non linéarités de la surface introduisent les termes en  $\alpha_i \alpha_j$  et  $\alpha_i \alpha_j \alpha_k$  alors que les NL de l'écoulement font apparaître les termes en  $\dot{\alpha}_i$  et  $\ddot{\alpha}_i$ . Cette équation fait intervenir l'amplitude d'oscillation de "tous" les modes propres d'une goutte. Cependant ces coefficients de couplages sont nuls pour un grand nombre de combinaisons de modes.

# 3.2.8 Couplage non linéaire des modes

Afin de simplifier cette équation nous étudions donc la valeur des différents coefficients de couplage en fonction des combinaisons de mode. Pour ce faire, nous supposons le mode n dominant par rapport aux autres, *i.e.* la fréquence d'oscillation est voisine de  $\omega_n$ . Nous pouvons alors connaitre les j modes excités par les non linéarités en étudiant les coefficients  $\kappa_{jnn}^{(0,1,2)}$  et  $\Pi_{jnnn}^{(0,1,2)}$ .

Cette analyse montre que les non linéarités quadratiques excitent les modes pairs compris entre 2 et 2n et les non linéarités cubiques excitent les modes pairs (respectivement impaires) si n est pair (resp. impair) compris entre 2 (resp. 3) et 3n. Ainsi, en supposant l'oscillation dominée par le mode n, seulement n modes sont à considérer pour déterminer l'équation anharmonique quadratique et  $\frac{3n}{2}$  (resp.  $\frac{3(n+1)}{2}$ ) pour l'équation cubique d'un mode pair (resp. impair).

Cette étude met également en évidence la possibilité de transfert d'énergie entre des modes à hautes fréquences vers les modes à plus faibles fréquences. Un travail supplémentaire portant sur l'étude de ces transferts serait d'intérêt pour mieux comprendre le mécanisme déclenchant l'oscillation fondamentale d'une goutte soumise à des ondes acoustique de surface (cascade inverse). Cette étude devra s'intéresser aux résonances internes [195, 196] et aux combinaisons de résonances favorisant le transport, qui sont des mécanismes transférant l'énergie exclusivement des modes supérieurs vers les modes inférieurs [208]. Cependant, cette étude sera rapidement limitée par l'influence de la viscosité. En effet, le couplage des modes s'opérant à la surface de la goutte (en  $\alpha_n$ ), la couche de vorticité bien que faible peut influencer la déformation et donc l'interaction de modes [206, 207].

# 3.2.9 Equation anharmonique du mode fondamental

Dans la suite de ce chapitre, nous nous intéressons exclusivement au cas où le mode fondamental est dominant, correspondant aux observations expérimentales. Dans ces conditions, l'analyse précédente montre que seuls les modes 4 et 6 sont excités par les couplages non linéaires avec le mode 2 et leurs amplitudes sont inférieures à celle du fondamental, *i.e.*  $\frac{\alpha_4}{\alpha_2} = O(\epsilon)$  (non linéarités quadratiques) et  $\frac{\alpha_6}{\alpha_2} = O(\epsilon^2)$  (non linéarités cubiques). Nous définissons alors les amplitudes  $x_i$ de chaque mode de la manière suivante :

$$x_2 = \epsilon \alpha_2, \qquad x_4 = \epsilon^2 \alpha_4, \qquad x_6 = \epsilon^3 \alpha_6.$$

En ne considérant que les termes jusqu'à l'ordre  $\epsilon^3$  le système d'équations non linéaires de l'oscillation du mode fondamental s'écrit alors :

$$\ddot{x}_{2} + 2\lambda_{2} \, \dot{x}_{2} + \omega_{2}^{2} \, x_{2} + t_{2} \, x_{2}\ddot{x}_{2} + c_{2} \, \dot{x}_{2}^{2} + s_{2} \, x_{2}^{2} + T_{2} \, x_{2}^{2}\ddot{x}_{2} + C_{2} \, x_{2}\dot{x}_{2}^{2} + S_{2} \, x_{2}^{3}$$

$$= -i_{2|24}^{t} \, x_{2}\ddot{x}_{4} - i_{2|42}^{t} \, x_{4}\ddot{x}_{2} - i_{2}^{c} \, \dot{x}_{2}\dot{x}_{4} - i_{2}^{s} \, x_{2}x_{4}, \quad (3.25)$$

$$\ddot{x}_4 + 2\lambda_4 \, \dot{x}_4 + \omega_4^2 \, x_4 = -t_4 \, x_2 \ddot{x}_2 - c_4 \, \dot{x}_2^2 - s_4 \, x_2^2 - T_4 \, x_2^2 \ddot{x}_2 - C_4 \, x_2 \dot{x}_2^2 - S_4 \, x_2^3 \\ - i_{4|24}^t \, x_2 \ddot{x}_4 - i_{4|42}^t \, x_4 \ddot{x}_2 - i_4^c \, \dot{x}_2 \dot{x}_4 - i_4^s \, x_2 x_4, \quad (3.26)$$

$$\ddot{x}_{6} + 2\lambda_{6} \dot{x}_{6} + \omega_{6}^{2} x_{6} = -T_{6} x_{2}^{2} \ddot{x}_{2} - C_{6} x_{2} \dot{x}_{2}^{2} - S_{6} x_{2}^{3} - i_{6|24}^{t} x_{2} \ddot{x}_{4} - i_{6|42}^{t} x_{4} \ddot{x}_{2} - i_{6}^{c} \dot{x}_{2} \dot{x}_{4} - i_{6}^{s} x_{2} x_{4}, \quad (3.27)$$

avec :

$$\omega_n^2 = n(n+2)(n-1)$$
  $\lambda_n = Ca(n-1)(2n+1)$ 

$$\begin{split} t_2 &= \kappa_{222}^{(2)} = \frac{9\sqrt{5}}{14\sqrt{\pi}} & c_2 = \kappa_{222}^{(1)} = \frac{4\sqrt{5}}{7\sqrt{\pi}} & s_2 = \kappa_{222}^{(0)} = -\frac{4\sqrt{5}}{7\sqrt{\pi}} \\ T_2 &= \Pi_{2222}^{(2)} = -\frac{67}{98\pi} & C_2 = \Pi_{2222}^{(1)} = -\frac{585}{196\pi} & S_2 = \Pi_{2222}^{(0)} = -\frac{76}{7\pi} \\ i_{2|24}^t &= \kappa_{224}^{(2)} = \frac{15}{14\sqrt{\pi}} & i_{2|42}^t = \kappa_{242}^{(2)} = \frac{24}{7\sqrt{\pi}} & i_2^c = \kappa_{224}^{(1)} + \kappa_{242}^{(1)} = \frac{75}{14\sqrt{\pi}} \\ i_2^s &= \kappa_{224}^{(0)} + \kappa_{242}^{(0)} = -\frac{24}{7\sqrt{\pi}} \end{split}$$

$$\begin{split} t_4 &= \kappa_{422}^{(2)} = \frac{15}{7\sqrt{\pi}} & c_4 = \kappa_{422}^{(1)} = -\frac{9}{7\sqrt{\pi}} & s_4 = \kappa_{422}^{(0)} = -\frac{24}{7\sqrt{\pi}} \\ T_4 &= \Pi_{4222}^{(2)} = \frac{501\sqrt{5}}{539\pi} & C_4 = \Pi_{4222}^{(1)} = -\frac{90\sqrt{5}}{77\pi} & S_4 = \Pi_{4222}^{(0)} = -\frac{180\sqrt{5}}{77\pi} \\ i_{4|24}^t &= \kappa_{424}^{(2)} = \frac{75\sqrt{5}}{154\sqrt{\pi}} & i_{4|42} = \kappa_{442}^{(2)} = \frac{85\sqrt{5}}{77\sqrt{\pi}} & i_4^c = \kappa_{424}^{(1)} + \kappa_{442}^{(1)} = \frac{185\sqrt{5}}{154\sqrt{\pi}} \\ i_4^s &= \kappa_{424}^{(0)} + \kappa_{442}^{(0)} = -\frac{160\sqrt{5}}{77\sqrt{\pi}} \end{split}$$

$$\begin{aligned} T_6 &= \Pi_{6222}^{(2)} = \frac{135\sqrt{65}}{1001\pi} & C_6 = \Pi_{6222}^{(1)} = \frac{135\sqrt{65}}{2002\pi} & S_6 = \Pi_{6222}^{(0)} = \frac{540\sqrt{65}}{143\pi} \\ i_{6|24}^t &= \kappa_{624}^{(2)} = \frac{30\sqrt{65}}{143\sqrt{\pi}} & i_{6|42}^t = \kappa_{642}^{(2)} = \frac{105\sqrt{65}}{286\sqrt{\pi}} & i_{6}^c = \kappa_{624}^{(1)} + \kappa_{642}^{(1)} = -\frac{75\sqrt{65}}{143\sqrt{\pi}} \\ i_{6}^s &= \kappa_{624}^{(0)} + \kappa_{642}^{(0)} = -\frac{180\sqrt{65}}{143\sqrt{\pi}} \end{aligned}$$

Dans l'équation (3.25) les termes de gauche représentent l'oscillation linéaire et les interactions du mode 2 avec lui même alors que les termes de droite sont les couplages avec le mode 4. Ce
dernier est excité par les non linéarités quadratiques et cubiques du mode 2 (équation (3.26)), et est couplé au fondamental par les non linéarités quadratiques. Le mode 6, quant à lui, n'interagit pas avec les deux autres modes, et est gouverné par les non linéarités cubiques du mode 2 et l'interaction entre les modes 2 et 4 (équation (3.27)).

Ce système d'équations est identique à celui déterminé par Chernova [201] à l'exception de l'équation du mode 4 où des non linéarités cubiques du mode 2 et un terme de couplage ont été omis malgré leur ordre en  $\epsilon^3$ .

L'équation anharmonique du mode fondamental à l'ordre 2 se simplifie en :

$$\ddot{x}_2 + 2\lambda_2 \ \dot{x}_2 + \omega_2^2 \ x_2 + t_2 \ x_2 \ddot{x}_2 + c_2 \ \dot{x}_2^2 + s_2 \ x_2^2 = 0.$$

Cette équation pourra alors servir de point de départ à de futures études d'oscillations faiblement NL de goutte. Notons qu'une équation similaire peut être obtenue pour un mode n quelconque.

Nous avons ainsi déterminé l'équation anharmonique de l'oscillation d'une goutte libre en régime faiblement non linéaire et pour une faible viscosité.

# 3.3 Analyse de l'équation anharmonique

L'étude de l'équation anharmonique du mode fondamental déterminée dans la section précédente va mettre en évidence des comportements tels que les résonances super-harmoniques, sousharmoniques, ou encore l'hystérèse du pic de résonance, observés expérimentalement, caractéristiques d'un système non linéaire.

Pour ce faire, nous nous intéressons tout d'abord à l'oscillation libre du système afin de déterminer le décalage fréquentiel induit par la déformation de goutte. Nous étudions ensuite l'effet des NL sur la résonance harmonique de goutte et mettons en évidence le cycle hystérétique de l'amplitude de réponse lorsque le système est excité par un forçage extérieur. Finalement, les deux mécanismes (combinaison de fréquence et instabilité paramétrique) pouvant exciter les résonances super-harmoniques et sous-harmoniques de goutte sont considérés afin de mettre en exergue les mécanismes sous-jacents à ces comportements.

## 3.3.1 Oscillation libre et décalage de la fréquence propre

Nous nous intéressons dans un premier temps à l'analyse de cette équation sans excitation externe et en particulier au décalage en fréquence de résonance induit par les non linéarités.

Nous commençons par étudier la réponse homogène de l'équation linéarisée décrite, lorsque la dissipation est faible ( $\lambda_2 < \omega_2$ ), par

$$x_{2}^{(h)} = ae^{-\lambda_{2}t}\cos\left(\omega_{2}\sqrt{1-\frac{\lambda_{2}^{2}}{\omega_{2}^{2}}} + \varphi_{0}\right),$$
 (3.28)

où  $a \ll 1$  et  $\varphi_0$  sont des constantes dépendant des conditions initiales. Le mouvement est retardé par la viscosité, ce qui se traduit par une baisse de la fréquence d'oscillation. Nous recherchons ici le décalage fréquentiel induit par les non linéarités qui sont de l'ordre de  $a^2$  (NL quadratique) et de  $a^3$  (NL cubique). Le décalage imposé par la viscosité est en  $\lambda_2^2 \sim \delta^4 \ll a^3$ , et est négligeable devant celui imposé par les non linéarités, *i.e.* les effets visqueux opèrent à des échelles de temps plus importantes comme il a été montré par une analyse multi-échelle [208]. Nous pouvons donc négliger la viscosité dans la suite de cette étude.

La dépendance entre la fréquence et l'amplitude d'oscillation est obtenue par la méthode employée par Landau [209] consistant à annuler les termes séculaires. Les amplitudes d'oscillation et la pulsation propre sont développées de manière asymptotique par rapport à l'amplitude d'oscillation a supposée petite devant 1 :

$$\begin{aligned} x_2 &= ax_2^{(1)} + a^2x_2^{(2)} + a^3x_2^{(3)} + O(a^4), \\ x_4 &= a^2x_4^{(1)} + a^3x_4^{(2)} + O(a^4), \\ \omega &= \omega_2 + a\omega_2^{(1)} + a^2\omega_2^{(2)} + O(a^3). \end{aligned}$$

L'expression de l'équation aux différents ordres va faire apparaitre des termes résonants (en  $\cos \omega t$ ), n'ayant pas de réalité physique, et qui seront alors éliminés par la détermination des  $\omega_2^{(1)}$  et  $\omega_2^{(2)}$ , *i.e.* en résolvant l'équation séculaire. Nous recherchons une solution à l'ordre 1 de la forme :

$$x_2^{(1)} = \cos \omega t.$$

En introduisant cette forme dans l'équation et en développant les produits de fonctions trigonométriques en somme, le système (3.24) à l'ordre 2 s'exprime :

$$\ddot{x}_{2}^{(2)} + \omega_{2}^{2} x_{2}^{(2)} = 2\omega_{2} \omega_{2}^{(1)} \cos \omega t - \frac{1}{2} (s_{2} + (c_{2} - t_{2})\omega_{2}^{2}) - \frac{1}{2} (s_{2} - (c_{2} + t_{2})\omega_{2}^{2}) \cos 2\omega t,$$
  
$$\ddot{x}_{4}^{(1)} + \omega_{4}^{2} x_{4}^{(1)} = -\frac{1}{2} (s_{4} + (c_{4} - t_{4})\omega_{2}^{2}) - \frac{1}{2} (s_{4} - (c_{4} + t_{4})\omega_{2}^{2}) \cos 2\omega t.$$

La condition d'annulation des termes résonants donne alors  $\omega_2^{(1)} = 0$  et les corrections de l'oscillation à l'ordre 2  $(x_2^{(2)}, x_4^{(1)})$  sont déterminées en fonction du premier ordre. L'équation à l'ordre 3 projetée sur le mode propre 2 est alors obtenue de la même manière. Ces calculs (détaillés en annexe E) ont été réalisés à l'aide du logiciel de calcul formel mathematica. La condition séculaire sur  $\omega_2^{(2)}$  est non nulle et fait intervenir les coefficients de couplage entre le mode 2 et le mode 4, l'amplitude d'oscillation et les coefficients NL quadratiques et cubiques du mode 2. Finalement, la fréquence propre adimensionnée du système est calculée avec mathématica :

$$\omega = \omega_2 + \omega_2^{(2)} a^2 = \omega_2 - \kappa a^2 = \omega_2 \left( 1 - \frac{6347}{7840\pi} a^2 \right) \sim \omega_2 - 0,729 \ a^2.$$
(3.29)

La NL est dite "souple" car une augmentation de l'amplitude d'oscillation se traduit par une baisse de la fréquence propre, *i.e.* le ressort s'assouplit avec la déformation. Ce décalage en fréquence est généralement utilisé pour comparer les différentes théories [193, 199, 201] entre elles et les confronter à l'expérience. La prédiction de Tsamopoulos [192] est régulièrement prise comme référence car elle présente un bon accord avec les expériences de Trinh [187]. Dans son article, Tsamopoulos décompose les oscillations sur les polynômes de Legendre et non sur une base orthonormale, leur prédiction est donc multipliée par  $N_2^2$  afin d'être comparée. Nous trouvons alors un bon accord avec leur valeur ( $\kappa_{Tsamopoulos} = 0,986 \kappa$ ) ce qui permet de valider notre modèle. Notons que nous retrouvons le décalage prédit par Chernova [201].

Nous pouvons comparer l'importance des différentes NL en annulant de manière artificielle les coefficients correspondants. Par exemple, le décalage fréquentiel induit par les NL de l'écoulement est obtenu en annulant les coefficients des NL de surface ( $\kappa_{ecoulement} \sim 0, 18$ ) et le décalage du ressort capillaire est obtenu en annulant les coefficients liés à l'écoulement ( $\kappa_{surface} \sim 0, 48$ ). Nous pouvons donc en déduire que les non linéarités de la surface joue un rôle prépondérant dans le décalage. Cependant, la somme des deux n'est pas égale au décalage réel. En effet, le couplage entre la surface et l'écoulement est non linéaire (par l'intermédiaire de la condition cinématique à l'interface) et joue également un rôle dans ce décalage.

## 3.3.2 Résonance harmonique

Afin de mettre en évidence les différents phénomènes de résonance, nous nous intéressons maintenant à l'oscillation d'une goutte soumise à une excitation sinusoïdale. Les phénomènes de résonance apparaissent lorsque la fréquence d'excitation ( $\gamma$ ) est proche d'une fréquence propre du système. Nous nous restreignons ici à l'analyse des résonances du mode fondamental en supposant que le terme de forçage ( $A \cos \gamma t$ ) n'excite que le mode 2. En linéaire, l'oscillation est composée d'un régime transitoire correspondant à une oscillation libre ( $x_2^{(l)}$ ) et une réponse forcée dite permanente. Cette dernière est responsable des phénomènes de résonance. Nous omettrons le régime transitoire dans la suite de l'étude car son amplitude s'annule pour des temps longs, ce terme n'influence donc pas la dynamique finale. La réponse en régime permanent  $(x_2^{(p)})$ d'un oscillateur amorti linéaire est décrite par

$$x_2^{(p)} = b\cos(\gamma t + \varphi), \qquad b = \frac{A}{\sqrt{(\omega_2^2 - \gamma^2)^2 + 4\lambda_2^2 \gamma^2}}, \qquad \tan \varphi = \frac{2\lambda_2 \gamma}{\omega_2^2 - \gamma^2}.$$
 (3.30)

En suivant la démarche de Landau, il est possible de connaitre l'effet des non linéarités sur la résonance sans résoudre l'équation. Considérons une fréquence d'excitation proche de la fréquence de résonance, *i.e.*  $\gamma = \omega_2 + \xi$  avec  $\xi$  petit devant 1. Le développement asymptotique de l'amplitude de l'oscillation linéaire en fonction de  $\xi$  nous donne :

$$b^{2} = \frac{A^{2}}{4\xi^{2}\omega_{2}^{2} + 4\lambda_{2}^{2}\omega_{2}^{2}} \Leftrightarrow b^{2}(\xi^{2} + \lambda_{2}^{2}) = \frac{A^{2}}{4\omega_{2}^{2}}$$

Or les non linéarités modifient la fréquence de résonance  $(\omega_2 - \kappa b^2)$ . Ce décalage est alors introduit dans la petite différence de fréquence  $\xi = \gamma - \omega_2$ , et négligé dans le membre de droite de l'équation ci-dessus. Notons que ce résultat "à la main" donné par Landau peut être démontré par l'utilisation d'une méthode multi-échelles [208]. Nous obtenons ainsi une équation du troisième degré en  $b^2$  résolue à l'aide du logiciel matlab.

$$b^{2}\left((\xi+\kappa b^{2})^{2}+\lambda_{2}^{2}\right) = \frac{A^{2}}{4\omega_{2}^{2}} \Leftrightarrow \kappa^{2}b^{6}+2\kappa\xi b^{4}+(\xi^{2}+\lambda_{2}^{2})b^{2} = \frac{A^{2}}{4\omega_{2}^{2}}.$$
 (3.31)

La figure 3.2 représente les solution de cette équation. Pour des amplitudes inférieures à 10% du rayon initial, les non linéarités influencent la résonance du système en décalant le maximum vers des fréquence plus faibles (NL "souple"). Lorsque l'amplitude d'excitation augmente, le pic se déforme de plus en plus jusqu'à présenter un cycle hystérétique pour des amplitudes supérieures à 18,5% du rayon. Une des branches est alors instable (en pointillé) et deux états stables se superposent pour une même fréquence d'excitation, *i.e.* l'amplitude d'oscillation est différente si la fréquence de modulation est balayée des basses vers les hautes fréquences ou inversement. Il apparait alors une hystérèse du pic de résonance. Notons que le maximum d'amplitude n'est pas affecté par les NL.

Pour des amplitudes d'excitation plus importantes, cette plage de bistabilité s'étale de plus en plus et le saut d'amplitude (passage de la branche supérieure à l'inférieure) se décale vers les



FIGURE 3.2: Comparaison entre l'amplitude de réponse adimensionnée b linéaire (en pointillé gris) et non linéaire (trait plein noir) en fonction de la fréquence de modulation  $\gamma$  pour différentes amplitudes d'excitation (0,006; 0,01; 0,014; 0,019).

basses fréquences. La figure 3.3 représente l'amplitude d'oscillation pour des excitations importantes. La fréquence d'excitation correspondant au saut d'amplitude diminue rapidement avec l'amplitude d'oscillation. Cette évolution est retrouvée expérimentalement (figure 3.1) lorsqu'une goutte est excitée à sa fréquence de résonance. En effet, l'amplitude d'oscillation augmente avec le déplacement acoustique (amplitude d'excitation) et la zone résonante s'élargit.

La résonance harmonique d'une goutte est modifiée par les non linéarités qui influencent le comportement de deux manières : 1) la fréquence propre d'une goutte diminue avec la déformation et 2) le domaine de résonance s'élargit avec l'amplitude aboutissant à un changement brutal de l'amplitude de réponse pour des faibles variations de l'amplitude d'excitation à la limite inférieure du domaine.

Les NL peuvent également exciter des résonances dites sous-harmoniques lorsque la fréquence d'excitation est supérieure à la fréquence de l'oscillation et super-harmoniques dans le cas contraire. Ces résonances peuvent êtres excitées de deux manières, par combinaison de fréquences ou au travers d'une instabilité paramétrique.

## 3.3.3 Combinaison de fréquences

Lorsque qu'un oscillateur est excité à une fréquence  $\gamma$  loin de la résonance, la réponse linéaire est de la forme :  $\cos(\gamma t)$  et les NL d'ordre *n* sont alors en  $(\cos(\gamma t))^n$ . En développant le produit de



FIGURE 3.3: Evolution de l'amplitude d'oscillation en fonction de la fréquence de modulation pour une goutte 10  $\mu$ L pour différentes amplitudes d'excitation (0,05; 0,07 et 0,09).

cosinus, les non linéarités quadratiques donnent naissance à une excitation en  $2\gamma$  et les cubiques à des termes en  $3\gamma$  et  $\gamma$ . Notons que la recombinaison de la fréquence  $\gamma$  est à l'origine du décalage de la fréquence de résonance par les NL cubiques. Ainsi une goutte peut entrer en résonance pour  $\gamma = \frac{1}{2}\omega_2$  et  $\gamma = \frac{1}{3}\omega_2$ . La combinaison de fréquences excite alors des résonances dites super-harmoniques.

Lorsque le système possède plusieurs degrés de liberté, *i.e.* plusieurs modes d'oscillations, la combinaison de fréquences peut également s'opérer entre les différentes fréquences propres du système. Le couplage NL de deux modes peut alors exciter la résonance d'un troisième. On parle de résonance interne lorsque deux fréquences du système sont commensurables. Par exemple pour une goutte,  $\omega_8 = 2\omega_5$  et  $\omega_{16} = 2\omega_{10}$ . Les non linéarités quadratiques du mode 5 (respectivement 10) vont donc exciter de manière résonante le mode 8 (respectivement 16) [195]. Notons également que les NL cubiques du mode fondamental peuvent excitées de manière résonante le mode 4 ( $\omega_4 = 3\omega_2$ ) [196]. Ici nous nous limitons à l'étude des résonances du mode 2. Basé sur les travaux de Natarajan, ce travail devra être complété afin de prendre en compte la résonance interne avec le mode 4.

Comme il a été indiqué précédemment, les fréquences d'excitation pouvant exciter une résonance super-harmonique sont  $\frac{1}{2}\omega_2$  et  $\frac{1}{3}\omega_2$ . Il peut être démontré, à l'aide d'une méthode multi-échelles, que les effets visqueux n'influencent la dynamique qu'aux échelles de temps correspondant aux couplages non linéaires, et peuvent être négligés au premier ordre [208]. Ainsi, la réponse linéaire pour une excitation à la moitié de la fréquence de résonance est égale à  $\frac{4A}{3\omega_2^2} \cos{(\frac{1}{2}\omega_2 + \xi)t}$  et les termes résonants sont générés par les NL quadratiques. Finalement, le problème se ramène à celui d'une résonance harmonique où le terme de forçage n'est plus  $A\cos(\omega_2 t + \xi)t$  mais  $A^{(\omega_2/2)}\cos(\omega_2 t + 2\xi)t$  avec :

$$A^{(\omega_2/2)} = -\frac{8A^2}{9\omega_2^4} \left(s_2 - \frac{1}{4}(c_2 + t_2)\omega_2^2\right).$$

L'équation (3.31) s'écrit alors :

$$b^{2}\left((2\xi+\kappa b^{2})^{2}+\lambda_{2}^{2}\right)=\frac{A^{(\omega_{2}/2)^{2}}}{4\omega_{2}^{2}}=\frac{16A^{4}\left(s_{2}-\frac{1}{4}(c_{2}+t_{2})\omega_{2}^{2}\right)^{2}}{81\omega_{2}^{10}}$$

Cette résonance est beaucoup plus faible (en  $A^2$ ) que celle excitée à la fréquence propre (en A). La somme des deux résonances est représentée sur la figure 3.4. L'amplitude de la résonance super-harmonique est très faible (figure 3.4) devant l'harmonique. Cette résonance n'est donc observable que pour des amplitudes de forçage importantes. La résonance en  $\gamma = \frac{1}{3}\omega_2$  fait intervenir les NL cubiques. Le terme de forçage est alors en  $A^3$  et cette résonance est encore plus faible.



FIGURE 3.4: Comparaison des amplitudes des résonances harmonique et super-harmonique pour une excitation de 0,09.

La combinaison de fréquences n'est donc pas à l'origine de la résonance super-harmonique observée en figure 3.1. En effet, l'amplitude d'oscillation est supérieure à celle de la résonance

harmonique et n'est excitée que pour une amplitude importante. Ce phénomène à seuil est caractéristique d'une excitation paramétrique étudiée dans la section suivante.

## 3.3.4 Résonance paramétrique

Contrairement à la combinaison de fréquences, une excitation paramétrique est une instabilité présentant un seuil de déclenchement et peut exciter des résonances super-harmoniques mais également sous-harmoniques. Cette instabilité apparait lorsque l'oscillation est régie par une équation dont les coefficients varient périodiquement avec le temps, généralement décrite par l'équation de Mathieu

$$\ddot{x} + \omega(t)^2 x = \ddot{x} + \omega_0^2 (1 + \epsilon \cos \gamma t) x = 0,$$

où la fréquence propre du système  $\omega$  évolue périodiquement dans le temps. Floquet, en étudiant les solutions de cette équation, a montré que pour certaines gammes de paramètres ( $\epsilon, \gamma$ ) les solutions sont instables (croissance exponentielle). Nous cherchons dans cette section à étudier la stabilité de l'équation anharmonique du système.

## Equation de Ince

Nous recherchons tout d'abord une équation de type Mathieu. Pour ce faire, l'amplitude d'oscillation  $(x_i, i = 2, 4)$  est décomposée arbitrairement en une réponse sans excitation paramétrique  $(x_i^{(a)})$ , *i.e.* la réponse NL d'une goutte étudiée dans les sections 3.3.2-3.3.3, et une réponse paramétrique inconnue du mode 2  $(x_2^{(b)})$ . Cette décomposition permet alors de dissocier les résonances "classiques" et paramétriques. L'étude de la stabilité de  $x_2^{(b)}$  revient à étudier la stabilité de la solution  $x_2^{(a)}$ . Cette forme d'oscillation est injectée dans le système d'équations (3.25)-(3.27).  $x_i^{(a)}$  étant solution du système, les termes linéaires et NL en  $x_i^{(a)}$  s'annulent. Restent alors le système d'équations non linéaires en  $x_2^{(b)}$  et les termes d'interaction entre les deux réponses. En se restreignant à une étude de stabilité linéaire, l'équation en  $x_2^{(b)}$  est :

$$\begin{pmatrix} 1 + t_2 x_2^{(a)} + 2T_2 x_2^{(a)^2} + i_{2|42}^t x_4^{(a)} \end{pmatrix} \ddot{x}_2^{(b)} + \begin{pmatrix} 2\lambda_2 + 2c_2 \dot{x}_2^{(a)} + 2C_2 x_2^{(a)} \dot{x}_2^{(a)} + i_2^c \dot{x}_4^{(a)} \end{pmatrix} \dot{x}_2^{(b)} \\ + \begin{pmatrix} \omega_2^2 + t_2 \ddot{x}_2^{(a)} + 2s_2 x_2^{(a)} + 3S_2 x_2^{(a)^2} + 2T_2 x_2^{(a)} \ddot{x}_2^{(a)} + C_2 \dot{x}_2^{(a)^2} + i_{2|24}^t \ddot{x}_4^{(a)} + i_2^s x_4^{(a)} \end{pmatrix} \dot{x}_2^{(b)} = 0.$$

Finalement, en négligeant les termes d'ordre supérieur  $(x_4^{(a)} \sim x_2^{(a)^2} \ll x_2^{(a)})$  l'équation se simplifie en :

$$\left(1+t_2x_2^{(a)}\right) \ddot{x}_2^{(b)} + \left(2\lambda_2+2c_2\dot{x}_2^{(a)}\right) \dot{x}_2^{(b)} + \left(\omega_2^2+t_2\ddot{x}_2^{(a)}+2s_2x_2^{(a)}\right) x_2^{(b)} = 0$$

La réponse du système peut être supposée de la forme  $x_2^{(a)} = b\cos(\gamma t + \varphi)$ , où b (resp.  $\varphi$ ) est l'amplitude (resp. le déphasage) de la réponse non linéaire (sans excitation paramétrique) dépendant de la fréquence d'excitation  $\gamma$ . L'équation régissant les résonances paramétriques se ramène à une équation de Ince (équation de Mathieu généralisée) :

$$(1 + bt_2 \cos(\gamma t + \varphi)) \ \ddot{x}_2^{(b)} + (2\lambda_2 - 2bc_2\gamma \sin(\gamma t + \varphi)) \ \dot{x}_2^{(b)} + (\omega_2^2 + b(2s_2 - t_2\gamma^2)\cos(\gamma t + \varphi)) \ x_2^{(b)} = 0.$$
(3.32)

#### Stabilité de l'équation de Ince

La stabilité des solutions d'une équation différentielle linéaire du second ordre à coefficients périodiques est étudiée à l'aide de la théorie de Floquet. D'après cette dernière, les solutions stationnaires sont de la forme  $e^{st}f(t)$ , où le coefficient s est un nombre complexe, f(t) une fonction périodique, et la stabilité des solutions est alors déterminée par le signe de Re(s). L'équation de Ince peut être étudiée grâce à cette méthode à condition qu'elle reste régulière, *i.e.*  $1+bt_2 \cos \gamma t \neq 0 \Leftrightarrow b < \frac{1}{t_2} \sim 1,23$ . Le système d'équations n'étant valide que pour de faibles amplitudes b < 1, la théorie de Floquet est donc applicable. Nous étudions alors la stabilité de l'équation (3.32) à l'aide de la méthode de Kumar [210].

Nous recherchons des solutions de la forme :

$$y = e^{(\mu + i\alpha\gamma)t} \sum_{-\infty}^{+\infty} y_n e^{n\gamma t}.$$

Le premier terme correspond à l'exposant de Floquet et le second est la décomposition en série de Fourier complexe de la fonction périodique, où les  $y_n$  sont des coefficients complexes. Les limites de stabilité correspondent donc au cas  $\mu = 0$ . De plus,  $\alpha$  est défini modulo 1, tout facteur entier de  $\gamma$  étant absorbé par la série de Fourier. Finalement la condition pour que y soit réel implique (1)  $\alpha = 0$  pour  $y_{-n} = y_n^*$ , et (2)  $\alpha = \frac{1}{2}$  pour  $y_{-n} = y_{n-1}^*$  où l'astérisque représente la conjugaison d'un nombre complexe. L'injection de cette forme de solution dans l'équation (3.32) conduit à une relation sur les coefficients  $y_n$  pour n > 1.

$$(\omega_2^2 - (n+\alpha)^2 \gamma^2 + 2i\lambda_2(n+\alpha)\gamma) y_n = \frac{1}{2} e^{i\varphi} (\beta_2(n-1+\alpha)^2 \gamma^2 + \beta_1(n-1+\alpha)\gamma - \beta_0) y_{n-1} + \frac{1}{2} e^{-i\varphi} (\beta_2(n-1+\alpha)^2 \gamma^2 - \beta_1(n-1+\alpha)\gamma - \beta_0) y_{n+1},$$

avec

$$\beta_2 = t_2 b, \qquad \beta_1 = 2c_2 b\gamma, \qquad \beta_0 = b(2s_2 - t_2\gamma^2).$$

Les conditions d'initialisation (n = 0) dépendent de la valeur de  $\alpha$  et sont détaillées en annexe F. En définissant le vecteur Y comme

$$Y = egin{pmatrix} y_0^r \ y_0^i \ y_1^r \ y_1^i \ ... \end{pmatrix}$$

où l'exposant r (resp. i) représente la partie réelle (resp. imaginaire) du coefficient  $y_n$ , le problème s'écrit sous la forme matricielle suivante :

$$\mathbf{B} Y = A \mathbf{C} Y.$$

Les coefficients des matrices  $\mathbf{B}$  et  $\mathbf{C}$  sont donnés en annexe  $\mathbf{F}$ . La matrice  $\mathbf{B}$  n'étant pas singulière, elle est inversible. L'étude de stabilité se ramène alors à un problème aux valeurs propres :

$$\mathbf{B}^{-1}\mathbf{C} \ Y = \frac{1}{b}Y.$$

Ce système est alors résolu sous Matlab et seules les valeurs propres réelles positives ont un sens physique. Finalement, le diagramme de stabilité de l'équation (figure 3.5) est obtenu en sélectionnant les valeurs de b critiques, *i.e.* les plus faibles.

Trois domaines d'instabilité apparaissent pour des fréquences de modulation de  $2\omega_2$ ,  $\omega_2$  et  $\frac{2\omega_2}{3}$  dont les seuils en *b* sont respectivement 0,0168, 0,357 et 0,704. Les instabilités super-harmonique



FIGURE 3.5: Domaine d'instabilité de l'équation d'une goutte sous excitation paramétrique (mauve), et l'amplitude d'oscillation b du système pour une excitation de 0,075.

et harmonique semblent difficilement observables expérimentalement en raison de leurs plages fréquentielles restreintes et leurs seuils importants. Cependant, ces domaines sont représentés en *b* qui correspond à l'amplitude de réponse du système soumis à une excitation  $A \cos{(\gamma t)}$ . Ces seuils ne représentent donc pas les seuils d'amplitude d'excitation du système A mais les seuils sur l'amplitude de réponse du système.

Ainsi, pour une fréquence de modulation proche de  $\omega_2$ , le système entre en résonance et des instabilités présentant des seuils importants en *b* peuvent alors être excitées pour de faibles amplitudes d'excitation *A* comme représenté sur la figure 3.5 pour A = 0,075. La résonance harmonique du système sert ainsi de "tremplin" pour déclencher l'instabilité paramétrique. Ce mécanisme correspond à la résonance super-harmonique observée expérimentalement (figure 3.1).

En prenant en compte l'excitation de la résonance, les seuils de déclenchement des instabilités en amplitude d'excitation A se retrouvent inversés : 0,0701, 0,295 et 0,405 pour des fréquences de modulation respectives de  $\frac{2\omega_2}{3}$ ,  $\omega_2$  et  $2\omega_2$ . Les NL incurvent le pic de résonance et la résonance super-harmonique est excitée avant l'harmonique. La résonance sous-harmonique, ne correspondant pas à une résonance primaire du système, est excitée pour des amplitudes d'excitation importantes en contradiction avec les observations expérimentales (figure 3.1) où les déplacements acoustiques (amplitudes d'excitation) sont similaires pour l'instabilité sous-harmonique et superharmonique. Cet écart avec l'expérience peut provenir d'une dissipation visqueuse accrue pour une goutte posée due à l'interaction liquide-solide (couche limite et ligne de contact).

#### Influence de la viscosité

Afin de comprendre si la différence de dissipation est à l'origine de l'écart entre les prédictions théoriques pour une goutte en lévitation et l'expérience pour une goutte posée, nous étudions l'influence de la viscosité sur les seuils d'instabilité. Celle-ci modifie la stabilité du système de deux manières, (1) au travers de l'amplitude de réponse b du système et (2) au travers des seuils d'instabilité. Une augmentation de la viscosité diminue l'amplitude de résonance tout en élargissant la largeur du pic. Les résonances super-harmoniques et harmoniques sont donc plus difficilement excitées (limitation de l'amplitude) alors que l'excitation de la sous-harmonique est favorisée du fait de l'élargissement du pic, ce qui tendrait à égaliser les seuils. Mais la viscosité influence également les domaines d'instabilité et en particulier leur seuil de déclenchement. Les prédictions sont donc difficiles. Une étude rigoureuse de l'influence de la dissipation sur les seuils en A et b est donc menée en faisant varier le paramètre  $\lambda_2$ . Ce modèle, développé en première partie, est basé sur l'hypothèse d'irrotationnalité. La couche limite vorticale doit donc être faible devant le rayon de goutte. Pour cela, nous définissons arbitrairement que  $\delta < 15\%$ soit Ca < 0, 03.



FIGURE 3.6: Evolution des seuils critiques de l'amplitude b en fonction du nombre capillaire pour les trois premiers domaines d'instabilité en échelle linéaire et logarithmique (insert).

Les seuils  $b_c$  sont nuls lorsque les effets visqueux sont négligés, puis augmentent avec le nombre capillaire (figure 3.6). La viscosité joue donc un rôle stabilisateur au sein des équations de Ince en réduisant les domaines d'instabilité. L'évolution des seuils dépend de la fréquence d'excitation : les seuils des résonances super-harmoniques et harmonique augmentent rapidement, et ces instabilités ne sont excitables qu'en régime fortement non linéaire (b > 0, 9) pour des nombres capillaires supérieurs à 0,006 et 0,02 respectivement. Au contraire la résonance sous-harmonique, dont le seuil est peu sensible à l'augmentation du nombre capillaire, reste excitable pour de faibles amplitudes et des viscosités importantes. Les seuils des résonances sous-harmonique et harmonique évoluent (insert de la figure 3.6) en Ca et  $Ca^{1/2}$  à l'instar des seuils d'une équation de Mathieu, alors que la dépendance du seuil super-harmonique, évoluant en  $Ca^{0,44}$ , diffère de celle de l'équation de Mathieu ( $Ca^{1/3}$ ). Cette résonance est donc plus facilement observable lorsque le mouvement est régi par une équation de Ince.

Cependant, l'amplitude servant de paramètre à l'excitation du système est A, b correspondant à l'amplitude de réponse sans résonance paramétrique. La relation entre ces deux paramètres dépendant des phénomènes de résonance primaire, les seuils de déclenchement de l'instabilité en A vont alors différer de ceux obtenus en fonction de b. Nous comparons sur la figure 3.7 les seuils en amplitude A pour une réponse linéaire du système (en noir) et une réponse non linéaire (en rouge).

Dans le cas linéaire, les seuils  $A_c$  super-harmonique et sous-harmonique suivent la même évolution que ceux en b, *i.e.* ces fréquences étant éloignées de la résonance le seuil  $A_c$  est proportionnel à  $b_c$ . Par contre, le seuil harmonique est fortement diminué par la résonance linéaire du système et évolue d'une manière totalement différente avec le nombre capillaire. L'amplitude maximum de résonance excitant l'instabilité est proportionnelle à  $Ca^{-1}$ . L'ordre de déclenchement des instabilités est ainsi modifié par la résonance. La prise en compte des NL courbe le pic de résonance primaire vers les basses fréquences. En résulte des seuils harmoniques plus importants et l'excitation de l'instabilité super-harmonique par la résonance primaire harmonique comme le montre la figure 3.5. L'amplitude critique pour  $\frac{2\omega_2}{3}$  est alors la plus faible et suit une évolution similaire à celle du seuil harmonique linéaire.

Une augmentation de viscosité correspond à une résistance accrue au déplacement du liquide. L'amplitude d'excitation doit donc être modifiée pour tenir compte de ce phénomène. L'amplitude  $A' = \frac{A}{\lambda_2 \omega_2^2}$  compare la force excitatrice et les forces visqueuses, *i.e.* A' représente l'amplitude d'excitation nécessaire pour exciter de manière équivalente (à la même amplitude d'oscillation) deux liquides de viscosités différentes. L'amplitude critique modifiée des résonances super-harmonique et sous-harmonique est alors constante en fonction du nombre capillaire, *i.e.* l'augmentation de l'amplitude A pour ces instabilités (figure 3.7) compense seulement l'augmentation de la résistance au mouvement. Le seuil harmonique, quant à lui, évolue avec le nombre capillaire, *i.e.* l'amplitude d'excitation nécessaire à la déstabilisation, en plus du terme de mise en mouvement (A' =constante), augmente avec la viscosité. Cette élévation résulte du décalage du domaine d'instabilité vers les hautes fréquences lorsque la viscosité augmente. Ainsi, pour un liquide parfait Ca = 0, la résonance harmonique présente un seuil nul. Puis, au fur et à mesure que le nombre capillaire augmente, ce seuil augmente jusqu'à devenir supérieur aux deux autres.



FIGURE 3.7: Evolution des seuils critiques de l'amplitude A pour une réponse b linéaire (noir) et non linéaire (rouge) en fonction du nombre capillaire.

Cette étude de la viscosité a permis de mettre en évidence l'importance des non linéarités sur l'excitation des résonances paramétriques. En effet, au travers de la séparation des amplitudes b et A il est alors possible de dissocier les résonances "classiques" et paramétriques. Nous avons notamment pu mettre en évidence un effet "tremplin" joué par la résonance primaire harmonique non linéaire sur l'excitation de l'instabilité super-harmonique observée expérimentalement. Finalement, pour une goutte libre, même plus visqueuse, les seuils sous-harmoniques restent plus importants que ceux de la résonance super-harmonique. Cette différence avec les résultats expérimentaux peut avoir plusieurs origines : (1) la résonance super-harmonique survient dans un régime fortement NL où le modèle n'est plus valide; (2) les non linéarités d'une goutte posée peuvent prendre des valeurs différentes changeant ainsi la forme de la résonance et des domaines d'instabilité.

### Réponse sous-harmonique

Nous nous intéressons en dernier lieu à l'amplitude d'oscillation lorsque l'instabilité paramétrique sous-harmonique est excitée par un forçage de la forme  $A \cos (2\omega_2 + \xi)t$ . Pour ce faire, la méthode de Landau est reprise à l'instar de la résonance super-harmonique par combinaison de fréquences. Nous décomposons l'amplitude d'oscillation de manière classique en une réponse linéaire du premier ordre  $x_2^{(1)} = \frac{A}{3\omega_2^2} \cos (\omega_2 + \xi)t$  et non linéaire  $x_2^{(2)}$  du second ordre. Nous recherchons alors une solution à l'instabilité paramétrique sous-harmonique de la forme  $b \cos ((\omega_2 + \frac{1}{2}\xi)t + \varphi_0)$ où la constante  $\varphi_0$  (déphasage de la réponse) est omise dans les calculs car elle n'influence



FIGURE 3.8: Evolution des seuils critiques de l'amplitude A' (comparant la force excitatrice et les forces visqueuses) en fonction du nombre capillaire.

pas l'amplitude de réponse. En ne conservant que les termes résonants, le forçage non linéaire quadratique est  $A^{(2\omega_2)} \cos(\omega_2 + \frac{1}{2}\xi)$  où :

$$A^{(2\omega_2)} = -\frac{Ab}{3\omega_2^2} \left( s_2 + \frac{1}{2} (4c_2 - 5t_2)\omega_2^2 \right),$$

et l'équation (3.31) s'écrit :

$$b^{2}\left(\left(\frac{1}{2}\xi+\kappa b^{2}\right)^{2}+\lambda_{2}^{2}\right)=\frac{A^{(2\omega_{2})^{2}}}{4\omega_{2}^{2}}=\frac{A^{2}b^{2}\left(s_{2}+\frac{1}{2}(4c_{2}-5t_{2})\omega_{2}^{2}\right)^{2}}{36\omega_{2}^{6}}.$$
(3.33)

Le seuil  $A_c$  de l'instabilité est alors retrouvé lorsque le discriminant ( $\Delta$ ) de cette équation du second ordre en  $b^2$  s'annule. En effet si  $\Delta < 0$  l'équation n'admet pas de solution réelle et le système est stable. En posant  $C_{nl} = s_2 + \frac{1}{2}(4c_2 - 5t_2)\omega_2^2$ , qui englobe l'ensemble des non linéarités, le seuil critique  $A_c$  s'exprime :

$$\Delta = \frac{1}{9}\kappa^2 \left(\frac{A_c^2 C_{nl}^2}{\omega_2^6} - 36\lambda_2^2\right) = 0 \Leftrightarrow A_c = \frac{6\lambda_2\omega_2^3}{|C_{nl}|}.$$

On retrouve alors la valeur et l'évolution linéaire avec  $\lambda_2$  du seuil de l'instabilité. Nous pouvons spéculer qu'un accroissement du coefficient NL  $(C_{nl})$  est à l'origine de l'abaissement du seuil de l'instabilité sous-harmonique dans le cas d'une goutte posée.

L'équation (3.33), valide uniquement pour  $\xi \ll 1$ , donne des solutions non bornées lorsque le seuil de l'instabilité est franchi. Le décalage de la fréquence propre doit également être introduit dans le terme de forçage (terme de droite de l'équation (3.31)) pour que les solutions restent finies. L'équation finale se ramène alors à un polynôme de degré 8 en  $b^2$  résolu sous matlab.



FIGURE 3.9: Amplitude de réponse de la résonance sous-harmonique pour deux amplitudes d'excitation A=0,4 et 0,5.

Pour des amplitudes inférieures au seuil  $A_c$ , aucune oscillation à la fréquence propre n'est observée. Puis, lorsque le seuil est atteint,  $A = A_c$ , une oscillation importante apparait et la réponse subit un saut d'amplitude (figure 3.9). Une fois le seuil franchi, une augmentation de l'amplitude d'excitation change peu la forme de la réponse sous-harmonique, en accord avec les observations expérimentales (figure 3.1).

L'équation résolue pour la réponse sous-harmonique étant valable pour toute fréquence d'excitation nous pouvons nous intéresser à la réponse paramétrique harmonique. Pour une amplitude d'excitation légèrement supérieure au seuil de déclenchement, le maximum de réponse est un ordre grandeur en deçà de la réponse résonante primaire ou "classique". En supposant une interaction faible entre ces deux réponses, nous pouvons alors en conclure que la résonance paramétrique harmonique est négligeable devant la résonance "classique".

# **3.4** Conclusion et perspective

Dans ce chapitre, nous avons dans un premier temps développé un modèle faiblement non linéaire de l'oscillation d'une goutte. Nous montrons que le mouvement de l'interface est gouverné par une équation anharmonique due aux non linéarités de l'écoulement, à la déformation de la surface, et au couplage entre les deux introduit par la condition cinématique. Nous donnons une forme générale de cette équation qui pourra être utilisée à l'avenir pour l'étude faiblement non linéaire d'oscillation de goutte.

Dans une seconde partie, nous avons étudié le comportement non linéaire de l'oscillation du mode fondamental soumis à une excitation périodique. Cette analyse nous a permis de mettre en exergue une hystérèse du pic de résonance harmonique et l'excitation de résonances superharmoniques et sous-harmoniques par des instabilités paramétriques. L'étude de cette instabilité montre que la résonance harmonique primaire, décalée vers les basses fréquences par les non linéarités, est à l'origine du déclenchement de l'instabilité super-harmonique observée expérimentalement. Finalement, l'écart sur le seuil sous-harmonique entre l'expérience et le modèle peut s'expliquer par une augmentation des non linéarités dans le cas d'une goutte posée.

Cette hypothèse pourra être vérifiée, pour un fluide parfait, par l'adaptation de ce modèle au cas posé grâce à l'utilisation d'une nouvelle base de vecteurs propres donnée dans les travaux de Strani et Sabetta [211]. Cependant, la présence d'une interface solide-liquide induit des gradients de vitesse importants au sein de la couche limite. La dissipation visqueuse devra donc être corrigée par l'intégration du terme de vorticité donné par Strani [212] au sein de la fonction de dissipation. Cette adaptation rapide du modèle à une goutte posée visqueuse n'est applicable qu'à condition que la vorticité diffuse peu au sein du volume (condition d'irrotationnalité). Dans le cas contraire, celle-ci devra donc être intégrée dans le langrangien à l'aide de la décomposition de Clebsh [203]. Cela nécessitera alors des développements supplémentaires. En dernier lieu, la mobilité de la ligne de contact pourra être incorporée par l'utilisation de la forme variationnelle de Qian [213] basée sur la condition de Navier généralisée.

L'étude de l'équation anharmonique a été réalisée par l'introduction d'un terme de forçage  $A \cos \gamma t$  dans l'équation du mode fondamental. Cette hypothèse devra être modifiée pour intégrer les non linéarités du forçage induit par la pression de radiation, et cela afin que le modèle puisse prendre en compte une excitation plus réaliste. De plus, le champ acoustique se développant au sein du liquide peut exciter plusieurs modes propres de la goutte. L'oscillation des modes excités devra donc également être prise en considération. Enfin, la résonance interne entre le mode 2 et 4 devra être intégrée.

Chapitre 4

# Dynamique de gouttes sessiles et pendantes sur des plans horizontaux et inclinés : influence de la gravité, surfaces glissantes et émergence de dynamiques complexes

Dans ce chapitre, nous explorons expérimentalement la dynamique de gouttes sessiles et pendantes soumises à des ondes acoustiques de surface et posées sur des plans horizontaux ou inclinés. Malgré des nombres de Bond initiaux modérés, nos résultats soulignent l'importance des effets gravitationnels qui à la fois influencent et sont influencés par la réponse de la goutte au forçage acoustique. A faible puissance, les ondes acoustiques engendrent des vibrations de la surface de la goutte qui libèrent la ligne de contact et rendent la surface glissante. Ainsi une goutte posée sur un plan incliné et dont la ligne de contact est initialement piégée par les effets d'hystérésis se retrouve libérée, permettant à la goutte de translater sous l'effet de la pesanteur. De plus la pesanteur agit sur la fréquence de vibration de la goutte (modes inertiocapillaires dits de "Rayleigh-Lamb") via les non linéarités de la goutte provenant des équations de l'écoulement interne et de la déformation d'interface. Ces vibrations influent elles-même la vitesse de translation de la goutte à plus forte puissante résultant de l'asymétrie induite par le forçage acoustique unidirectionnel. Enfin, l'étude de la dynamique des gouttes pendantes et sur plans inclinés fait apparaître des régimes complexes dans des zones de transition des diagrammes de phase où se superposent plusieurs états possibles pour de mêmes paramètres de contrôle. Pour les gouttes pendantes sur plans horizontaux, ces régimes complexes surviennent près des seuils de détachement des gouttes. Dans le cas des plans inclinés, ils apparaissent à l'interface entre les régimes de montée et de descente des gouttes.

# 4.1 Introduction

Dans le chapitre 2, nous avons analysé les différents mécanismes mis en jeu lors du déplacement et de l'oscillation de gouttes soumises à des ondes acoustiques de surface. Nous avons notamment passé en revue : les mécanismes moteurs tels que le streaming et la pression de radiation acoustique ; les mécanismes résistants tels que la tension de surface et l'hystérésis de l'angle de contact.

L'objectif de ce chapitre est d'étudier expérimentalement la dynamique de gouttes sessiles et pendantes posées sur des plans horizontaux ou inclinés soumises à des ondes acoustiques de surface et notamment de caractériser le rôle joué par les effets gravitationnels. En microfluidique, la contribution de la gravité est généralement comparée aux effets capillaires via le nombre de Bond :

$$Bo = \frac{\Delta p_{gravite}}{\Delta p_{capillaire}} = \frac{\rho g L}{\sigma/L} = \frac{\rho g L^2}{\sigma}.$$
(4.1)

où L désigne la taille caractéristique du système, g l'accélération de la pesanteur et  $\sigma$  la tension superficielle.

Pour une goutte posée sur une surface, la longueur caractéristique L est égale à son rayon :  $R = \left(\frac{3V}{2\pi}\right)^{\frac{1}{3}}$  dans l'approximation d'une goutte hémisphérique. Les volumes V utilisés en microfluidique en goutte sont typiquement de l'ordre du microlitre correspondant à des nombres de Bond de l'ordre de  $10^{-1}$ . Ce nombre de Bond relativement faible prédit que les effets gravitationnels ont une influence modérée devant les effets capillaires. De plus, les effets de pesanteur peuvent être entièrement contrés par des effets de surface du substrat tels que les effets d'hystérésis de la ligne de contact. Ainsi, si l'on pose une goutte sur une surface inclinée ayant un état de surface inhomogène (impuretés chimiques, rugosité), la goutte restera piégée sur les impuretés de la surface jusqu'à un angle critique qui dépend de sa taille mais aussi de l'état de surface. Nous allons voir néanmoins dans la suite de ce chapitre que les ondes acoustiques modifient cet équilibre et peuvent (i) permettre de dépiéger la ligne de contact et (ii) d'augmenter les effets de pesanteur via l'émergence d'une nouvelle longueur caractéristique.

Pour caractériser cet effet, nous avons réalisé (i) une première série d'expériences en comparant la dynamique de gouttes sessiles et pendantes déposées sur un plan horizontal et excitées par des ondes acoustiques de surface et (ii) une deuxième série d'expériences sur des plans inclinés avec différents degrés d'inclinaison. Dans ces deux séries d'expériences, nous avons fait varier le volume des gouttes ainsi que la puissance acoustique appliquée.



FIGURE 4.1: Représentation des différentes expériences réalisées dans le plan caractérisant l'importance relative de la gravité sur le mouvement normal (Bo  $\cos \alpha$ ) et tangentiel (Bo  $\sin \alpha$ ), l'angle  $\alpha$  étant l'angle d'inclinaison (en haut à gauche).

En effet, le poids, comme toute force, peut-être caractérisé par deux paramètres : norme et direction. Ces deux aspects de la gravité ont été couverts par l'utilisation de plusieurs volumes (normes) et d'inclinaison de substrat (directions). La figure 4.1 résume les expériences réalisées dans le plan (Bo sin  $\alpha$ , Bo cos  $\alpha$ ). L'axe des abscisses représente la contribution relative de la force de gravité sur le déplacement normal à la surface. La gravité pour des gouttes sessiles (en rouge) contribue au rappel alors qu'elle tend à étirer la goutte pour le cas pendant (en bleu). La comparaison entre ces deux cas limites permet de mettre en évidence l'influence de la gravité sur le mouvement oscillatoire d'une goutte soumise à des ondes acoustiques de surface. La quantité Bo sin  $\alpha$  quant à elle représente la contribution relative de la gravité joue un rôle de rappel (cos  $\alpha > 0$ ) tout en s'opposant au forçage acoustique (dirigé dans le sens de propagation de l'onde acoustique), *i.e.* sin  $\alpha > 0$ . La plage de variation de l'angle d'inclinaison est déterminée expérimentalement en inclinant le plan jusqu'au glissement de la goutte. Cet angle critique correspond à l'équilibre entre la force de rétention (hystérésis de l'angle de contact) et la gravité [179] en l'absence de forçage acoustique.

Le second paramètre de contrôle est la puissance acoustique transférée au liquide par l'onde de surface. Sa contribution peut-être caractérisée par un nombre de Weber acoustique. Traditionnellement utilisé au sein d'études portant sur l'atomisation acoustique de gouttes [214] ou de lévitation acoustique [215], il caractérise la capacité d'une onde acoustique à déformer une interface en comparant la pression de radiation acoustique s'y exerçant et la pression capillaire. Cette première contribution peut être estimée en calculant le contraste de densité d'énergie acoustique de part et d'autre de l'interface [148]. Le coefficient de transmission entre l'eau et l'air étant de 0.1 % nous pouvons considérer cette interface comme totalement réfléchissante, et la densité d'énergie acoustique dans l'air peut être négligée. Sous incidence normale, la pression de radiation peut donc être estimée égale à deux fois (onde incidente et réfléchie) la moyenne de la densité d'énergie acoustique  $(e_L)$  transportée par l'onde dans le liquide. Finalement dans l'approximation d'onde plane, l'énergie acoustique totale est égale au double de l'énergie cinétique et le nombre de Weber acoustique peut être approximé par la formule suivante :

$$We_{ac} = \frac{p_{radiation}}{p_{capillaire}} = \frac{2\langle e_L \rangle L}{\sigma} = \frac{2\rho_L \langle v_L(\vec{x},t)^2 \rangle L}{\sigma} = \frac{\rho_L V_L^2 L}{\sigma}, \tag{4.2}$$

où  $v_L$  désigne la vitesse acoustique et  $V_L$  l'amplitude maximale.

En utilisant la continuité de la vitesse normale à l'interface liquide-solide (figure 4.2), la vitesse acoustique au sein du liquide peut s'exprimer en fonction de l'amplitude du déplacement acoustique normal du substrat ( $A_S$ ) mesuré par interférométrie-laser :

$$V_L = \frac{A_S \ \omega_{saw}}{\cos \theta_R},\tag{4.3}$$

avec  $\theta_R$  l'angle de Rayleigh (obtenu d'après la loi de Snell-Descartes) caractérisant la direction de propagation de l'onde acoustique au sein du liquide. En combinant ces deux équations, nous obtenons l'expression suivante du nombre de Weber acoustique :

$$We_{ac} \sim \frac{\rho_L A_S^2 \ \omega_{saw}^2 R}{\sigma \cos^2 \theta_R} \tag{4.4}$$

Une onde acoustique déformera d'autant plus une goutte que le volume de celle-ci est grand, en raison de la diminution de pression capillaire qui s'oppose aux déformations. Ainsi, la puissance acoustique requise pour déformer de manière similaire ( $We_{ac}$ =constante) deux gouttes de volumes différents diminue avec le rayon de celles-ci, en accord avec les observations expérimentales. L'application de différents voltages aux transducteurs acoustiques permet de contrôler  $A_S$  et a fortiori le nombre de Weber. La figure 4.2 représente l'évolution du nombre de Weber acoustique en fonction de l'amplitude de l'onde acoustique de surface. La plage de Weber étudiée dans ce travail expérimental est représentée en bleu.

Dans ce chapitre, nous étudions la dynamique d'une goutte sur une plage d'excitation où les effets acoustiques, de gravité et de tension de surface sont typiquement du même ordre de grandeur : 0, 1 < Bo < 0, 5 et  $0, 1 < We_{ac} < 4$ .



FIGURE 4.2: Evolution du nombre de Weber acoustique en fonction du déplacement acoustique pour les deux volumes extrêmes. Encadré : continuité du déplacement normal à l'interface liquide-solide

# 4.2 Dispositifs expérimentaux

Le dispositif expérimental (figure 4.3 a)) est constitué d'un substrat piézoélectrique (niobate de lithium coupe 128°Y) sur lequel sont déposées, par photolithographie, des électrodes interdigitées constituées d'un couche d'accroche de 20 nm de titane et d'une couche conductrice de 100 nm d'or. La largeur des électrodes et leur espacement, tous deux égaux à  $a = 43.75\mu m$ , déterminent la fréquence de résonance  $f_{saw}$  du transducteur par la relation  $f_{saw} = \frac{c_S}{\lambda} = \frac{c_S}{4a} = 19.7$  MHz où  $\lambda$  est la longueur d'onde et  $c_S=3484$  m/s la vitesse de propagation de l'onde de Rayleigh sur l'axe cristallographique Z du niobate de lithium. Une tension alternative à cette fréquence est appliquée par un générateur (IFR2023A) et amplifiée par un amplificateur (Empower, modele BBM0D3FEL) générant alors des ondes de Rayleigh à la surface du substrat. La puissance acoustique de l'onde générée est calculée à partir de la mesure du déplacement normal par interférométrie laser type Mach-Zender (Polytec...). Enfin, une couche monoatomique d'octadécyltrichlorosilane (OTS) est déposée sur la surface piézoélectrique pour le rendre hydrophobe et contrôler l'hystérésis d'angle de contact.

Pour chaque expérience, une goutte d'eau de volume calibré est déposée sur le substrat dans la configuration voulue (figure 4.3 (a)-(c)). Les ondes sont ensuite émises en continu et la goutte se met à osciller et à se translater sous l'effet de l'onde acoustique, de la pesanteur, et de la tension superficielle. La dynamique de la goutte est enregistrée par une caméra rapide (Photron SA3) équipée d'un soufflet et d'un objectif de 100 mm pour réduire la distance de travail et améliorer le grossissement. Enfin, la position des lignes de contact, la vitesse de déplacement ainsi que les oscillations de la surface libre sont obtenues par un traitement d'image (Image J) et de données (Matlab).



FIGURE 4.3: Schéma du dispositifs expérimental et des différentes configurations utilisées. (b) Configuration goutte sessile. (c) Configuration goutte pendante. d) Inclinaison du plan à différents angle  $\alpha$ .

# 4.3 Dynamique des gouttes pendantes et sessiles

Lorsque les gouttes sont soumises aux ondes acoustiques de surface, elles s'étirent asymétriquement et se mettent à osciller en raison des effets acoustiques non linéaires. L'observation des vidéos d'oscillation des gouttes sessiles (posées) pourrait donner l'impression que la force de rappel mise en jeu dans le mécanisme d'oscillation est principalement liée à la pesanteur, c'est à dire qu'une fois la goutte étirée, celle-ci "retombe" à cause de la gravité. Des travaux précédents de notre groupe [105] ont montré que l'évolution des fréquences propres d'oscillation des gouttes avec leur volume sont compatibles avec un mécanisme inertio-capillaire, indiquant que le principal ressort des oscillations sont les effets de tension superficielle. Néanmoins nous n'avons pas caractérisé l'influence des effets de pesanteur sur la réponse de la goutte.

Si les effets capillaires sont en effet dominants devant les effets de gravité, il est en principe possible de réaliser la même expérience avec une goutte posée sur le substrat ou une goutte pendante. La comparaison de la dynamique de la goutte dans ces deux cas nous permettra de quantifier directement le rôle joué par la gravité. C'est ce que nous étudions dans cette section. La figure 4.4 montre la différence de forme statique entre les gouttes pendantes et posées pour les différents volumes de gouttes étudiés dans ce chapitre.

## 4.3.1 Détachement des gouttes

Lorsqu'une goutte en contact avec un substrat est suffisamment étirée, elle finit par se détacher du substrat sous forme d'une goutte sphérique. Une goutte posée sera ramenée sur le substrat par la pesanteur et pourra continuer sa translation. En revanche, une goutte pendante sera définitivement décrochée. On ne peut donc bien sûr comparer les dynamiques des gouttes posées et pendantes qu'en dessous du seuil de puissance nécessaire au détachement de la goutte. Dans la gamme de paramètres que nous avons étudiée, le forçage acoustique n'est pas suffisant pour que



FIGURE 4.4: Comparaison de la forme initiale des gouttes posées et pendantes pour les volumes de 5  $\mu l$ , 10  $\mu l$  et 15 $\mu l$  correspondant respectivement à des nombres de Bond de 0.24, 0, 38 et 0, 5 : contour rouge goutte posée, contour bleu goutte pendante.

la goutte se détache dans le cas des gouttes sessiles (posées). En revanche, le détachement des gouttes a été observé pour les mêmes puissances acoustiques dans le cas des gouttes pendantes.



FIGURE 4.5: Séquence montrant le détachement d'une goutte de 10 microlitres excitée par une onde acoustique d'amplitude correspondant à un nombre de Weber acoustique We = 0, 41.

La figure 4.5 montre une séquence de détachement d'une goutte pendante de 10 microlitres excitée par des ondes de surface. Pour caractériser le mécanisme à l'origine du détachement de la goutte, nous avons mesuré le rapport d'aspect de la goutte  $h_c/R_c$  avant son détachement de la plaque, où  $h_c$  et  $R_c$  désignent la hauteur et le rayon critique (voir figure 4.5). Quel que soit le volume initial de la goutte, celle ci-se détache lorsque ce rapport d'aspect atteint une valeur de l'ordre de 4.5 (voir figure 4.6) en parfait accord avec la valeur prédite par Rayleigh dans le cadre de l'instabilité dite de Rayleigh-Plateau [176].

Cette instabilité classique peut être observée assez simplement dans la vie courante en laissant couler un filet de liquide d'un robinet. Le filet s'amincit en raison des effets de gravité et finit par devenir instable et former des gouttes de taille régulière. En 1833, Savart [216] a été le premier



FIGURE 4.6: Rapport de forme critique  $h_c/R_c$  aboutissant au détachement de la goutte pour différents volumes de gouttes initiaux.

à observer l'apparition d'ondulations le long d'un filet d'eau en écoulement. En 1849, Plateau [217] a montré que les ondulations ayant une longueur d'onde plus grande que le diamètre du jet en réduisent la surface libre et sont donc favorisées par la tension superficielle. Néanmoins, toutes les longueurs d'ondes supérieures au diamètre du jet sont instables et des considérations purement statiques devraient aboutir à la formation des gouttes les plus grosses possibles car ce sont elles qui minimisent la surface libre. Rayleigh a montré en 1879 [176] que les effets inertiels liés à l'écoulement dans la goutte ont un effet stabilisant. En faisant une analyse de stabilité linéaire du problème, il a alors prouvé que le taux de croissance le plus rapide correspond à une longueur d'onde  $\lambda \approx 9R_c$ , en accord avec les expériences de Savart. Si ce mécanisme d'instabilité est responsable du détachement d'une goutte unique dans nos expériences, celui-ci devrait donc survenir si l'étirement de la goutte est tel que  $h_c \approx \lambda/2 = 4.5R_c$ . C'est en effet ce qui est observé expérimentalement pour les trois tailles de gouttes étudiées dans ces expériences. Seuls deux points sont éloignés de la prédiction de Rayleigh ; ils peuvent être expliqués par l'apparition d'ondes capillaires qui se propagent le long de la goutte et viennent perturber la surface, réduisant l'élongation nécessaire pour que les gouttes se détachent 4.3.2.

Ces résultats pointent le rôle critique joué par le paramètre d'étirement h de la goutte pour sa stabilité. Il est maintenant assez simple de déduire le rôle joué par la pesanteur dans ce mécanisme. Dans le cas des gouttes sessiles, la pesanteur tend à s'opposer à l'étirement de la goutte alors qu'elle tend à le favoriser pour les gouttes pendantes, expliquant pourquoi le seuil de puissance nécessaire au détachement des gouttes est plus faible dans le cas des gouttes pendantes.

## 4.3.2 Apparition de nouveaux régimes



FIGURE 4.7: Diagramme de phase ( $We_{ac}$ , Bo) représentant la stabilité des gouttes pendantes. Apparition de nouveaux régimes (triangle et losange) près du seuil de détachement.

Un autre phénomène intéressant qui limite la comparaison entre la dynamique des gouttes sessiles et pendantes est l'apparition de nouveaux régimes, voire la coexistence de plusieurs régimes pour les mêmes paramètres de contrôle, à proximité du seuil de détachement des gouttes. Le diagramme de phase de la figure 4.7 résume les expériences que nous avons réalisées. Pour chaque paramètre de contrôle, les expériences ont été reproduites 3 fois. Ce diagramme de phase est divisé en 3 zones :

- une première zone de "détachement" où le détachement des gouttes est toujours observé,
- une seconde zone "stable" où la goutte reste en contact avec la paroi,
- enfin une troisième zone "intermédiaire" où les deux évolutions peuvent être observées.

Dans la région intermédiaire, les gouttes de 2 microlitres (Bo = 0, 13) adoptent toujours une dynamique semblable et le détachement ou non de la goutte est uniquement le résultat de faibles variations de l'amplitude d'oscillation qui permettent ou non de passer au dessus du seuil de détachement.

En revanche, pour les gouttes de 5 microlitres (Bo = 0.24), deux évolutions très différentes ont été observées pour les mêmes paramètres de contrôle (illustrées sur la figure 4.8). Après une première phase transitoire où les gouttes oscillent mais se déplacent peu, les oscillations de la goutte peuvent soit s'amplifier, aboutissant au détachement de la paroi (courbe rouge), soit au contraire diminuer progressivement et donc aboutir à une dynamique avec des oscillations très faibles (courbe bleu) mais en revanche une vitesse de translation plus élevée.



FIGURE 4.8: Evolution de la hauteur maximale de goutte en fonction du temps pour deux gouttes soumises aux mêmes paramètres ( $We_{ac} = 0, 44$  et Bo = 0.24). Une bifurcation entre deux régimes est observée (séquences d'images, à droite).

Enfin pour les gouttes de 15 microlitres (Bo = 0, 5) apparaît un nouveau régime (représenté par des triangles sur le diagramme de phase) où la goutte ne translate quasiment pas et prend une forme allongée, quasiment axisymétrique avec un étirement proche du seuil de détachement (figure 4.9). La force induite par la pression de radiation peut être dissociée en deux composantes : une normale, qui ajoutée à la gravité, vient fortement allonger la goutte, la seconde, tangentielle (dirigée dans le sens de l'onde), génère classiquement l'asymétrie et le déplacement. Or pour des nombres de Bond "importants", cette dernière devient négligeable devant la somme des composantes normales et donc l'angle formé par l'axe de la goutte avec le substrat est faible. La dynamique obtenue (figure 4.9) est la combinaison d'une oscillation quadripolaire (mode 2 de Rayleigh-Lamb) et d'ondes capillaires propagatives d'ordre supérieur (excitées par la composante tangentielle). La très faible asymétrie de la goutte dans ce régime explique pourquoi la goutte ne translate pas car les angles de contact à l'avant et l'arrière de la goutte ne dépassent pas les angles d'hystérésis.



FIGURE 4.9: Dynamique de goutte obtenue pour  $We_{ac} = 0,38$  et Bo = 0,5. Les ondes acoustiques de surface se propagent de la gauche vers la droite, les flèches en pointillées représentent l'onde acoustique incidente radiée par l'onde de Rayleigh généralisée.

## 4.3.3 Comparaison de la dynamique des gouttes sessiles et pendantes

Maintenant que nous avons étudié en détail les cas où la comparaison entre la dynamique des gouttes sessiles et pendantes n'est pas pertinente (détachement de gouttes, apparition de nouveaux régimes, bifurcations), nous pouvons quantifier l'effet de la gravité en comparant la dynamique dans les cas où les régimes sont similaires. Cette dynamique est caractérisée par une oscillation et une translation de la goutte, que nous allons étudier en détail dans les paragraphes suivants.

## Oscillation des gouttes

Le déclenchement des oscillations d'une goutte soumise à des ondes acoustiques de surface est le résultat d'un mécanisme non linéaire qui reste, à l'heure actuelle, méconnu dans la littérature [21] et qui fait l'objet d'études dans notre groupe. L'objectif de cette section est d'explorer expérimentalement l'influence de la gravité sur ces oscillations par la comparaison des fréquences, déformations moyennes et amplitudes d'oscillations entre le cas des gouttes pendantes et celui des gouttes sessiles à nombre de Weber constant.

Ces oscillations mettent en compétition l'inertie du liquide induite par les phénomènes acoustiques non linéaires et la tension de surface qui joue le rôle de ressort. Nous commençons par étudier l'influence de la gravité sur la fréquence d'oscillation en comparant le rapport des fréquences pour une goutte posée et pendante à différents nombres de Weber (figure 4.10). Ce rapport, toujours supérieur à l'unité, augmente avec le nombre de Bond. La gravité couplée avec le forçage acoustique joue donc un rôle important pour ces oscillations, puisqu'un rapport deux entre les fréquences des gouttes pendantes et sessiles peut être observé malgré des nombres de Bond modérés.

Les oscillations inertio-capillaires des gouttes peuvent être vues comme les oscillations d'un système masse-ressort où la force de rappel est d'origine capillaire. Dans un système masse-ressort décrit par une équation différentielle *linéaire*, la gravité ne modifie pas la fréquence propre du système mais uniquement sa position d'équilibre statique.

En effet, si k désigne la constante de raideur du ressort, m la masse du système, g la gravité, et x l'écart par rapport à la position de repos du ressort, les équations d'un oscillateur linéaire s'écrivent :

$$m\ddot{x} = -kx + mg$$

ou encore en introduisant la fréquence propre du ressort  $\omega_o$ :

$$\ddot{x} + \omega_o^2 x = g$$



FIGURE 4.10: Rapport des fréquences propres d'oscillation des gouttes dans les cas posé et pendant en fonction du nombre de Weber acoustique pour différents nombres de Bond (correspondant à différentes tailles de gouttes). Les régimes particuliers (étudiés dans la section 4.3.2) sont représentés en pointillés.

Si l'on introduit  $x_g = g/\omega_o^2$  la position d'équilibre (l'étirement) du ressort en présence des effets de gravité, alors en posant  $X = x - x_q$ , l'équation s'écrit :

$$\ddot{X} + \omega_o^2 X = 0$$

et l'on peut voir que la fréquence propre  $\omega_o$  n'est pas affectée par les effets de pesanteur.

Par conséquent, la gravité (ou plus généralement un champ de force stationnaire) ne peut influer sur la fréquence propre d'un système masse-ressort qu'à travers la non linéarité du système. Nous avons vu dans le chapitre 3 que la goutte se comporte pour des déformations d'amplitude restreintes devant le rayon comme un oscillateur non linéarire avec des non linéarités quadratiques et cubiques couplant les termes de déplacement x, de vitesse  $\dot{x}$ , et d'accélération  $\ddot{x}$ . Pour illustrer notre propos et par souci de simplicité, nous allons nous limiter dans les paragraphes suivants à des non linéarités quadratiques en  $x^2$  (correspondant à une non linéarité de la raideur du ressort) et nous expliquerons comment généraliser ce raisonnement à une équation plus complexe.

Si l'on étudie la réponse d'un système masse-ressort possédant des non linéarités quadratiques en  $x^2$  et soumis à un champ de force statique g tel que la gravité, celui-ci peut être décrit par une équation du type :

$$\ddot{x} + \omega_o^2 (1 + \alpha x) x = g \tag{4.5}$$

où  $\alpha$  désigne le coefficient de non linéarité quadratique du système. Comme pour l'oscillateur linéaire, on peut introduire  $x_g$ , la position d'équilibre statique du ressort solution de l'équation :

$$x_g + \alpha x_g^2 = \frac{g}{\omega_o^2}$$

soit :  $x_g = \frac{-1 + \sqrt{1 + 4\alpha g/\omega_o^2}}{2\alpha}$ . En introduisant, l'écart par rapport à la position d'équilibre statique  $X = x - x_g$ , l'équation (4.5) devient :

$$\ddot{X} + \omega_o^2 (1 + 2\alpha x_g + \alpha X) X = 0 \tag{4.6}$$

Dans cette équation, nous voyons que deux contributions viennent modifier la fréquence d'oscillation du système masse-ressort :

- 1. Le champ de force stationnaire g via le décalage de la position d'équilibre (terme  $2\alpha x_g$ ). Celui-ci va étirer (ou écraser selon son orientation) le système masse-ressort et donc modifier la raideur du ressort k (qui évolue avec l'étirement) et donc la fréquence de résonance.
- 2. Les effets dynamiques liés à l'oscillation non linéaire du système et donc proportionnels à l'amplitude d'oscillation (terme  $\alpha X$ ).

Nous voyons que ces deux effet agissent sur la fréquence d'oscillation *via les non linéarités* du système masse-ressort. Nous allons maintenant étudier chacun de ces effets séparément.

## Décalage en fréquence lié à un champ de force externe (type gravité) :

Si l'on suppose que le système masse-ressort oscille peu  $(X \ll x_g)$  autour de sa position d'équilibre  $x_g$  (afin de supprimer les effets dynamiques), la fréquence d'oscillation  $\omega_g$  du système modifiée par le champ de force g vérifie l'équation :

$$\omega_g^2 = \omega_o^2 (1 + 2\alpha x_g)$$

Si l'on se place dans le cas où l'étirement reste modéré, alors on a  $\alpha x_g \ll 1$  et donc :

$$\omega_g \approx \omega_o (1 + \alpha x_g) \tag{4.7}$$

On obtient une évolution linéaire de la fréquence d'oscillation du système avec l'étirement  $x_g$ .

#### Décalage en fréquence lié aux effets dynamiques :

Supposons maintenant que les effets dynamiques sont très supérieurs à ceux induits par le champ g, c'est à dire que  $X \gg x_g$ . Le calcul du décalage fréquentiel lié aux effets dynamiques est bien sûr plus complexe que celui des effets de gravité car l'on ne peut pas poser directement  $\omega_d^2 = \omega_o^2(1 + \alpha X)$ , X étant une variable de l'équation. Néanmoins, une simple analyse dimensionnelle

nous permet d'ores et déjà de comprendre que le décalage fréquentiel sera lié à une longueur  $x_d$  caractéristique des effets dynamiques non linéaires. Le décalage fréquentiel engendré par une non linéarité quadratique est un problème classique dont on peut trouver la résolution dans le livre de Landau (Course of Theoretical Physics Volume 1 : Mechanics [209] ). Pour obtenir ce décalage en fréquence, il suffit de faire un développement asymptotique raccordé à partir de l'équation non linéaire :

$$\ddot{X} + \omega_o^2 (1 + \alpha X) X = 0 \tag{4.8}$$

Pour ce faire, on cherche la solution de l'équation sous forme d'approximations successives :

$$X = \epsilon X_1 + \epsilon^2 X_2 + \epsilon^3 X_3 + \dots$$

où  $X_1 = A \cos(\omega_d t)$  et  $\omega_d = \omega_o + \epsilon \omega_1 + \epsilon^2 \omega_2 + \dots$  désigne la fréquence propre du système modifiée par les effets dynamiques non linéaires et A l'amplitude de réponse du système. Si l'on replace ces développements dans l'équation (4.8), on obtient simplement au deuxième ordre :

$$\ddot{X}_{2} + \omega_{o}^{2} X_{2} = -\frac{1}{2} \alpha \omega_{o}^{2} A^{2} - \frac{1}{2} \alpha \omega_{o}^{2} A^{2} \cos(2\omega_{o}t) + 2\omega_{o}\omega_{1} A \cos(\omega_{o}t)$$

Le dernier terme de l'équation est un terme résonant qui aboutit à la divergence des solutions de l'équation. La condition de non sécularité s'écrit donc simplement :  $\omega_1 = 0$ ; l'appliquant, la solution de cette équation s'écrit :

$$X_2 = -\frac{\alpha A^2}{2} + \frac{\alpha A^2}{6}\cos(2\omega_o t)$$

On retrouve le résultat classique : une non linéarité quadratique produit au premier ordre des termes correspondant aux combinaisons  $\omega_o - \omega_o = 0$  (terme stationnaire) et des termes en  $\omega_o + \omega_o = 2\omega_o$  (deuxième harmonique). On peut alors introduire  $x_d = -\frac{\alpha A^2}{2}$  la déformation stationnaire du système induite par les effets dynamiques non linéaires. Puis développer l'équation à l'ordre 3 pour calculer le décalage fréquentiel produit par la non linéarité quadratique. On obtient :

$$\ddot{X}_3 + \omega_o^2 X_3 = -\frac{\alpha^2 A^3 \omega_o^2}{6} \cos(3\omega_o t) + A \left[ 2\omega_o \omega_2 + \frac{5\alpha^2 A^2 \omega_o^2}{6} \right] \cos(\omega_o t)$$

La condition de non sécularité s'écrit ici :

$$\omega_2 = -\frac{5\alpha^2 A^2}{12}\omega_o = \frac{5}{6}\alpha x_d \omega_o$$

Cette équation nous montre (en accord avec l'analyse dimensionnelle développée au début de cette section) que la modification de la fréquence propre du système résulte de la déformation stationnaire du système masse-ressort  $x_d$  induite par les effets dynamiques non linéaires :

$$\omega_d = \omega_o (1 + 5/6 \alpha x_d) \quad \text{avec} \quad x_d \propto A^2$$
(4.9)

#### Décalage en fréquence total

Dans les deux cas étudiés (effets d'un champ de force statique, effets dynamiques non linéaires), le décalage fréquentiel est relié à l'étirement moyen du système masse-ressort  $\langle x \rangle_t$  (où les crochets indiquent une moyenne temporelle de la variable). Celui-ci affecte en effet la valeur moyenne de la raideur du ressort et donc sa fréquence d'oscillation.

Le décalage fréquentiel total  $\Delta \omega$  induit par la gravité et les effets non linéaires n'est ni plus ni moins (au premier ordre) que la somme des deux décalages en fréquence soit :

$$\omega = \omega_o + \Delta \omega = \omega_o \left( 1 + \alpha (x_g + 5/6 x_d) \right)$$

Cette expression nous montre que le décalage fréquentiel dépend de la déformation moyenne du système mais aussi de la non linéarité du système via le coefficient  $\alpha$ .

#### Généralisation pour une équation non linéaire plus complexe

Le même raisonnement peut être effectué pour des systèmes masse-ressort non linéaires plus complexes, tel que celui associé à l'oscillation d'une goutte. Dans le chapitre 3, nous avons montré qu'à l'ordre 2, l'équation non linéaire des oscillations quadripolaires d'une goutte prend la forme :

$$\ddot{x} + 2\lambda \dot{x} + \omega_o^2 x + \alpha \omega_o^2 x^2 + \beta \dot{x}^2 + \gamma x \ddot{x} = 0$$
(4.10)

Si l'on rajoute l'effet d'un champ de force constant g (type gravité) dans le second membre, on peut procéder comme précédemment et introduire la position d'équilibre statique  $x_g$  solution de l'équation  $x_g + \alpha x_g^2 = g/\omega_o^2$ , puis la variable  $X = x - x_g$ . L'équation (4.10) devient alors :

$$\ddot{X} + \frac{2\lambda}{1 + \gamma(x_g + X)}\dot{X} + \frac{1 + \alpha(2x_g + X)}{1 + \gamma(x_g + X)}\omega_o^2 X + \frac{\beta}{1 + \gamma(x_g + X)}\dot{X}^2 = 0$$

Dans le cas où  $X \ll x_g$ , c'est à dire que le système oscille peu mais est déformé significativement par les effets de pesanteur, et que l'amortissement  $\lambda$  est faible, cette équation se simplifie en :

$$\ddot{X} + \frac{1 + 2\alpha x_g}{1 + \gamma x_g} \omega_o^2 X = 0.$$

La fréquence modifiée par les effets de pesanteur s'écrit pour des faibles déformations telles que  $\alpha x_g, \gamma x_g \ll 1$ :

$$\omega_g = \omega_o \left( 1 + (\alpha - \frac{\gamma}{2}) x_g \right)$$
(4.11)

Il est intéressant de noter que les termes non linéaires inertiels en  $\beta \dot{x}^2$  n'influent pas sur la modification de la fréquence propre du système induite par le champ stationnaire g.

Dans le chapitre 3, nous avons aussi calculé le décalage fréquentiel induit par les effets dynamiques non linéaires. L'expression étant complexe, nous n'avons pu obtenir de forme analytique. Néanmoins, nous avons vu que, de manière similaire au cas simple développé ci-dessus d'une non linéarité quadratique en  $x^2$ , le décalage en fréquence  $\Delta \omega$  est proportionnel à la déformation stationnaire  $x_d$ , elle même proportionnelle à l'amplitude d'oscillation au carré  $A^2$ , et donc que la fréquence modifiée par les effets dynamiques non linéaires  $\omega_d$  est de la forme :

$$\omega_d = \omega_o (1 + K x_d) \quad \text{avec} \quad x_d \propto A^2 \tag{4.12}$$

où K désigne un coefficient qui dépend des coefficients de non linéarités quadratiques et cubiques du système. Remarque : le terme  $\beta \dot{x}^2$  intervient cette fois-ci dans l'expression de la fréquence de résonance.

## Application à l'oscillation de gouttes et analyse des données expérimentales.

L'analyse précédente nous indique que l'évolution de la fréquence de résonance d'un système masse-ressort est principalement liée à l'élongation moyenne du système (moyenne temporelle) qui peut être induite (via les non linéarités de l'oscillateur) par des forces stationnaires ou par des effets dynamiques liés à l'oscillation du système. Dans le cas d'une goutte, cette élongation stationnaire  $\Delta h_m$  peut être quantifiée à l'aide de la hauteur moyenne de la goutte au cours de son oscillation  $h_m = \langle h \rangle_t$ :

$$\Delta h_m / h_o = h_m / h_o - 1$$

où  $h_o$  désigne la hauteur de la goutte au repos en l'absence de champ de force extérieur. Deux forces externes s'appliquent sur la goutte : le poids et la pression de radiation induite par l'onde acoustique. La pression de radiation n'est pas une force entièrement stationnaire car elle dépend de la forme de la cavité acoustique formée par la goutte et celle-ci oscille. C'est justement ce couplage fort entre la forme de la goutte et le forçage acoustique qui est actuellement exploré par notre équipe pour tenter d'expliquer l'apparition spontanée des oscillations via une instabilité dite de cavité [218]. La pression de radiation peut donc se décomposer en une contribution moyenne  $\langle p_{rad} \rangle_t$  et une partie fluctuante  $p'_{rad} : p_{rad} = \langle p_{rad} \rangle_t + p'_{rad}$ . Le terme moyen contribuera comme la gravité à la déformation statique de la goutte. Selon le cas (goutte posée ou pendante), les deux effets s'additionnent ou s'opposent. Dans le cas de la goutte posée, la gravité et l'effet moyen de la pression de radiation s'opposent car la pression de radiation tend à étirer la goutte et la gravité à la ramener vers le substrat. Au contraire dans le cas pendant, les deux forces agissent dans le même sens et tendent à étirer la goutte. Nous allons voir que dans ces deux cas, la part jouée par les champs de forces stationnaires et les effets dynamiques sont différents.

La figure 4.11 représente l'évolution de la fréquence d'oscillation de la goutte f adimensionnée par la fréquence de Rayleigh-Lamb  $f_o$  en fonction du paramètre de déformation de la goutte  $h_m$ 



FIGURE 4.11: Evolution de la fréquence d'oscillation de la goutte f (adimensionnée par la fréquence de Rayleigh-Lamb  $f_o$ ) en fonction de la hauteur moyenne de la goutte  $h_m$  adimensionnée par le rayon initial  $R_o$ . Courbe en pointillés : évolution linéaire.

adimensionné par le rayon initial de la goutte  $R_o$ .<sup>1</sup> Les points rouges correspondent à la goutte posée et les points bleus à la goutte pendante. Tous les points (correspondant à différents volumes de gouttes et différentes puissances acoustiques) se regroupent en une courbe unique pour chaque cas (posé et pendant). Nous nous attendions en effet (suite aux développements effectués dans les paragraphes précédents) à ce que la fréquence d'oscillation dépende essentiellement de  $h_m$ . D'après cette même analyse, l'équation de cette courbe dépend de la non linéarité de l'oscillateur et du phénomène à l'origine des déformations (champ stationnaire, effets dynamiques). Pour les faibles déformations ( $h_m/R_o \approx 1$ ), une évolution linéaire décroissante est attendue. En revanche, plus la goutte se déforme, plus les non linéarités deviennent complexes et donc la tendance doit s'éloigner d'une évolution linéaire. C'est en effet ce qui est observé pour les gouttes posées, dont l'évolution suit une courbe en  $h_m^{-3/2}$  (voir aussi figure 4.14). Elle reste en revanche étonnamment très linéaire pour les gouttes pendantes, même pour des déformations conséquentes. Cela pourrait s'expliquer par le fait que dans le cas pendant, les gouttes s'approchent de leur seuil de détachement  $h_c$  lorsque  $h_m$  augmente et donc que de nouveaux effets apparaissent dans ce régime.

Nous allons maintenant essayer de comprendre quels effets (champ de force stationnaire ou effets dynamiques) sont principalement à l'origine du décalage fréquentiel dans les deux cas

<sup>1.</sup> N.B. : Le rayon initial de la goutte  $R_o$  est estimé en utilisant la formule  $R_o = (3V/2\pi)^{(3/2)}$  valable pour des gouttes hémisphériques. Cette formule n'est pas exacte dans le cas présent car l'angle de contact est légèrement supérieur à  $\pi/2$ . De même la fréquence  $f_o$  de Rayleigh Lamb est estimée à partir de  $R_o$ , en utilisant la formule :  $f_o = \frac{1}{2\pi}\sqrt{8\sigma/\rho R_o^3}$  valable pour des oscillations quadripolaires (mode n = 2) d'une goutte en lévitation. Le choix de cet adimensionnement explique pourquoi  $f/f_o$  ne tend pas exactement vers 1 lorsque  $h_m/R_o \to 1$  sur la figure 4.11. Néanmoins le faible décalage observé indique que les fréquences d'une goutte en contact avec un substrat diffèrent peu de celles d'une goutte en lévitation.


FIGURE 4.12: Evolution de la hauteur moyenne de la goutte  $h_m$  en fonction de son amplitude d'oscillation  $\Delta h$ , toutes deux adimensionnées par le rayon initial  $R_o$ .

(sessile, pendant). Pour cela nous avons tracé l'évolution de la déformation  $h_m/R_o$  en fonction de l'amplitude d'oscillation  $\Delta h/R_o$  (figure 4.12). Dans le cas où les forces stationnaires sont responsables de l'élongation du système, la déformation moyenne  $h_m$  et l'amplitude d'oscillation  $\Delta h$  devraient être décorrélées. En revanche dans le cas des effets dynamiques, une évolution du type  $h_m/R_o \propto 1 + K(\Delta h/R_o)^2$  est attendue (voir équation (4.12))<sup>2</sup>. Sur la figure 4.12, nous voyons en effet que, dans le cas des gouttes posées (et pour le cas d'une goutte pendante de  $2\mu L$ ),  $h_m \propto 1 + K(\Delta h/R_o)^2$  alors que pour les autres volumes de gouttes pendantes  $h_m$  et  $\Delta h$  sont décorrélés. De plus dans ces derniers cas, l'oscillation des gouttes évolue très peu avec l'étirement  $h_m$ , même lorsque la puissance acoustique augmente. Cette tendance indique que les forces statiques appliquées au système sont principalement responsables de la déformation  $h_m$ dans le cas des gouttes pendantes alors que ce sont principalement les effets dynamiques qui en sont responsables dans le cas des gouttes posées (et pour les gouttes pendantes de 2  $\mu L$ ).

En effet, dans le cas des gouttes pendantes, la gravité s'additionne à la pression de radiation moyenne pour déformer les gouttes, ce qui produit l'essentiel de la déformation moyenne. Dans le cas posé au contraire, la gravité et la pression de radiation moyenne agissent en sens opposé, ce qui réduit la déformation statique induite par ces deux forces et les effets dynamiques sont dominants. Enfin, pour les gouttes les plus petites  $(2\mu l)$ , le nombre de Bond est faible (Bo = 0.13), et donc les dynamiques des gouttes pendantes et sessiles se rapprochent car les effets de gravité deviennent négligeables. La pression de radiation moyenne n'est pas suffisante pour déformer singificativement la goutte car les effets de tension superficielle augmentent lorsque le rayon des gouttes diminuent. Dans ce cas, seuls les effets dynamiques arrivent à déformer significativement

<sup>2.</sup>  $(h_m/R_o - 1)$  joue le rôle de  $x_d$  et  $\Delta h/R_o$  le rôle de A



la goutte et donc à agir sur sa fréquence propre d'oscillation.

FIGURE 4.13: Rapport des hauteurs moyennes des gouttes  $h_m = \langle h \rangle_t$  dans les cas posé et pendant en fonction du nombre de Weber acoustique pour différents nombres de Bond. Les régimes particuliers apparaissant près du seuil de décrochement discutés en section 4.3.2 sont représentés en pointillés.

Si l'on revient maintenant à la figure 4.10 qui compare les fréquences propres des gouttes sessiles et pendantes, les fréquences plus élevées observées dans le cas des gouttes sessiles s'expliquent simplement par des déformations moyennes  $h_m$  plus faibles que dans le cas des gouttes pendantes (voir figure 4.13) et donc à une réduction moindre de la fréquence de résonance induite par les effets non linéaires (à l'exception des régimes particuliers étudiés dans la section 4.3.2). Plus les gouttes sont grosses (et donc le nombre de Bond élevé), plus la gravité joue un rôle important et les différences sont marquées entre les dynamiques des gouttes sessiles et pendantes.

#### Conclusion

En conclusion, la fréquence propre de la goutte est modifiée via les effets non linéaires par sa déformation moyenne qui peut résulter soit des forces stationnaires (poids, pression de radiation moyenne) agissant sur elle ou soit des effets dynamiques liés à son oscillation. La gravité agit sur l'élongation statique de la goutte et donc directement sur sa fréquence propre mais elle agit aussi indirectement sur l'amplitude des oscillations de la goutte et donc les effets dynamiques. Un dernier point intéressant est qu'il est possible de faire coïncider tous les points expérimentaux (quels que soient le volume de la goutte, la puissance acoustique appliquée ou le cas considéré, pendant ou posé) en remplaçant simplement dans la formule de Rayleigh-Lamb, le rayon de la goutte par sa hauteur moyenne  $h_m$  (voir figure 4.14). Cette tendance indique simplement que dans le cas non linéaire la dimension caractéristique de la goutte n'est plus son rayon  $R_o$  mais sa hauteur moyenne  $h_m$ . On voit sur cette figure que pour les goutte sessiles, les points suivent très bien cette tendance, alors qu'ils s'en détachent progressivement pour les gouttes pendantes



FIGURE 4.14: Evolution de la fréquence de la goutte f en fonction de la hauteur moyenne de la goutte  $h_m$ . La ligne discontinue indique un fit avec la formule de Rayleigh Lamb en remplaçant le rayon au repos de la goutte  $R_o$  par  $h_m$ .

lorsque la hauteur des gouttes approche de leur seuil de détachement (points correspondant aux  $h_m$  les plus élevés pour chaque volume de goutte).

#### Vitesse de translation

#### Introduction

Une goutte soumise à des ondes acoustiques de surface propagatives se déplace dans le sens de propagation de l'onde acoustique. Cette translation résulte de la différence d'angle entre les lignes de contact avant et arrière induite par l'asymétrie de la goutte, résultant elle-même de l'asymétrie du champ acoustique qui est radié suivant l'angle de Rayleigh. Notre équipe a montré récemment [107] que l'oscillation de la goutte joue un rôle fondamental sur sa translation en réduisant de manière considérable la puissance acoustique nécessaire pour la déplacer.

L'effet de l'oscillation sur la translation est représenté sur la figure 4.15 où les régimes particuliers (apparaissant près du seuil de détachement des gouttes) ont été omis. Elle représente l'évolution de la vitesse de translation des gouttes en fonction de leur amplitude d'oscillation. Le regroupement relativement bon des données suivant une courbe directrice (pour des tailles de gouttes et puissances très différentes) sur ce graphique indique que l'amplitude des oscillations de la goutte est l'un des principaux facteurs agissant sur sa vitesse de translation. Deux zones apparaissent sur ce graphique, une première zone ( $\Delta h/R_o < 0,7$ ) où l'évolution de la vitesse avec l'amplitude d'oscillation est très rapide et une deuxième zone où une saturation est observée.



FIGURE 4.15: Vitesse de goutte en fonction de l'amplitude d'oscillation verticale adimensionnée par  $R_0$ . Les régimes critiques ont été omis.



FIGURE 4.16: Rapport des vitesses de translation des gouttes dans les cas posé et pendant en fonction du nombre de Weber acoustique pour différents nombres de Bond. Les régimes critiques discutés en section 4.3.2 sont représentés en pointillés.

#### Influence de la gravité

La figure 4.16 compare les vitesses des gouttes posées et pendantes en fonction du nombre de Weber, pour différents nombres de Bond. Contrairement aux fréquences d'oscillation des gouttes, aucune tendance simple ne se dégage dans ces expériences. Néanmoins, si l'on compare l'allure des courbes obtenues pour ce rapport des vitesses à l'allure des courbes obtenues pour le rapport des amplitudes d'oscillation (figure 4.17), nous observons des tendances d'évolution très similaires (sauf pour les plus faibles puissances acoustiques très sensibles à l'état de surface), confirmant ainsi le rôle prépondérant joué par l'amplitude d'oscillation des gouttes sur leur vitesse de déplacement (même s'il n'est pas bien sûr le seul facteur). Il est difficile en revanche de prédire l'évolution de l'amplitude d'oscillation avec les paramètres de l'expérience (puissance acoustique et taille des gouttes) car le mécanisme non linéaire sous jacent n'a pas encore été identifié.



FIGURE 4.17: Rapport des amplitudes d'oscillation du cas posé et pendant en fonction du nombre de Weber acoustique pour différents nombres de Bond. Les régimes critiques discutés en section 1.3.1.2 sont représentés en pointillés.

Pour affiner la compréhension des mécanismes à l'origine du déplacement des gouttes (et identifier les autres facteurs), il est intéressant d'étudier l'évolution d'une goutte pour laquelle l'amplitude d'oscillation est identique pour les cas sessile et pendant. Ceci se produit pour deux des expériences réalisées avec une goutte de 10  $\mu L$  (Bo = 0, 38) excitée à une puissance acoustique correspondant à un nombre de Weber égal à 0.31. Dans ce cas, malgré l'égalité des amplitudes d'oscillation (et de la puissance), la goutte sessile se déplace plus vite (rapport  $\approx 2$ ) que la goutte pendante. La figure 4.18 représente l'évolution de la forme de la goutte pour les cas posé et pendant pendant un cycle d'oscillation. Une période d'oscillation peut être dissociée en deux phases : l'élongation (centre) et l'écrasement (droite). Lors de la phase d'élongation, la zone de contact avec le substrat diminue. Le mouvement des lignes de contact arrière et avant diffère selon l'orientation de la goutte. Dans le cas sessile, la ligne de contact avant est très peu mobile et l'étirement de la goutte se fait essentiellement via l'avancée de la ligne de contact arrière. Au contraire, dans le cas pendant, la ligne de contact arrière est très peu mobile et l'élongation de la goutte se fait essentiellement via le recul de la ligne de contact avant. En revanche dans la phase d'écrasement de la goutte, les dynamiques des lignes de contacts sont semblables dans les deux cas : la ligne de contact arrière est très peu mobile et l'écrasement de la goutte est obtenu via l'avancée de la ligne de contact avant.

Cet effet des lignes de contact est observé quelle que soit l'amplitude d'oscillation. La figure 4.19, compare, dans les cas pendant et sessiles, le déplacement de la ligne de contact avant en fonction de l'amplitude d'oscillation des gouttes. Sur cette figure, on peut voir que dans



FIGURE 4.18: Forme d'une goutte de 10  $\mu$ L avant et après une période (gauche) et son évolution (centre : élongation, droite : écrasement) au cours d'une période à nombre de Weber (0.31) et amplitude d'oscillation constants.

la phase d'écrasement des gouttes (graphique de gauche), la loi d'évolution de l'avancée de la ligne de contact en fonction de l'amplitude d'oscillation de la goutte est identique dans les cas sessile et pendant et cette évolution peut être approximée par une loi linéaire<sup>3</sup>. Dans la phase d'élongation en revanche (graphique de droite), nous voyons que le recul de la ligne de contact est beaucoup plus important dans le cas pendant. Les lois sont de nouveau relativement linéaires même si une grande dispersion est observée dans le cas des gouttes posées mais qui s'explique aisément par la faible mobilité de la ligne de contact dans ce cas, qui est donc nécessairement très dépendante des angles d'hystérésis (et donc de l'état de surface).



FIGURE 4.19: Avancée et recul de la ligne de contact avant en fonction de l'amplitude d'oscillation de goutte pour les gouttes pendantes et sessiles

La vitesse de déplacement d'une goutte en oscillation peut être construite comme le produit du déplacement net par cycle d'oscillation et de la fréquence. Le déplacement net dépend de l'amplitude d'oscillation et du cas (sessile ou pendant). A amplitude d'oscillation égale, il est plus faible dans le cas des gouttes pendantes à cause d'un recul plus important de la ligne de contact dans la phase d'élongation. De plus, la fréquence d'oscillation des gouttes sessiles est plus grande

<sup>3.</sup> En réalité la loi est plus complexe et dépend de la manière dont se disymétrise la goutte

que celle des gouttes pendantes selon l'analyse développée dans la section précédente. L'effet du recul de la ligne de contact et de la fréquence sur la vitesse de déplacement sont visibles sur la figure 4.15 où l'on observe (à amplitude d'oscillation constante) une vitesse toujours plus faible dans le cas des gouttes pendantes par rapport aux gouttes sessiles.

#### <u>Conclusion</u> :

La vitesse de translation d'une goutte en oscillation dépend essentiellement de son amplitude d'oscillation comme le montre le regroupement relativement bon des données en une seule courbe directrice sur la figure 4.15. Néanmoins, à amplitude d'oscillation fixée, on peut voir que la vitesse est toujours inférieure dans le cas des gouttes pendantes. En effet la vitesse de translation peut être construite comme le produit du déplacement net par cycle d'oscillation et de la fréquence d'oscillation. Le premier facteur dépend linéairement de l'amplitude d'oscillation des gouttes. Le déplacement net est en revanche plus grand dans le cas des gouttes sessiles par rapport au cas des gouttes pendantes (à amplitude d'oscillation fixée) en raison du recul de la ligne de contact avant dans la phase d'élongation des gouttes observé dans ce dernier cas. La fréquence f dépend elle de la hauteur moyenne  $h_m = \langle h \rangle_t$  de la goutte selon une loi du type  $f \propto h_m^{-3/2}$ . Or cette hauteur  $h_m$  est toujours plus grande (voir figure 4.12) dans le cas pendant que dans le cas sessile, menant à des fréquences d'oscillation plus faibles dans ce premier cas. Ces deux effets expliquent la vitesse moindre des gouttes pendantes par rapport à celles des gouttes posées à amplitude d'oscillation fixée.

Pour comprendre l'évolution du rapport des vitesses des gouttes pendantes et sessiles en fonction des paramètres de l'expérience (nombres de Weber et de Bond), il nous faudrait maintenant déterminer les lois d'évolution de l'amplitude d'oscillation des gouttes en fonction de ces paramètres. Pour cela, il nous manque une pièce essentielle du puzzle; le mécanisme d'instabilité à l'origine des oscillations de la goutte.

# 4.3.4 Loi d'évolution de la vitesse de translation de la goutte dans le cas sessile.

Dans la section précédente, nous avons montré que :

- La vitesse de translation V d'une goutte en oscillation peut se décomposer comme le produit du déplacement net par cycle  $D_{net}$  et de sa fréquence d'oscillation :  $V = D_{net} \times f$
- Le déplacement net par cycle évolue quasiment linéairement avec l'amplitude d'oscillation (car l'avancée et le recul de la ligne de contact avant dépendent tous les deux quasiment linéairement de l'amplitude d'oscillation), *i.e.* :  $D_{net}/R_o \approx K_1 \times \Delta h/R_o + K_2$

— La fréquence est reliée à la hauteur moyenne de la goutte suivant la loi :  $f/f_o = K_3(h_m/R_o)^{-3/2}$  avec la hauteur moyenne  $h_m$  qui dépend elle même du carré de l'amplitude d'oscillation de la goutte (dans le cas de gouttes posées) :  $h_m/R_o = K_4 + K_5 (\Delta h/R_o)^2$ 

avec  $K_1 = 0, 50, K_2 = -0.02, K_3 = 1.41, K_4 = 1.25$  et  $K_5 = 0.21$ .

En combinant ces relations, on peut déterminer l'évolution de la vitesse en fonction de l'amplitude d'oscillation des gouttes. On obtient une loi du type :

$$\frac{V}{V_o} = C_1 \left[ \frac{\Delta h}{R_o} + C_2 \right] \times \left[ 1 + C_3 \left( \frac{\Delta h}{R_o} \right)^2 \right]^{-3/2}$$
(4.13)

avec  $V_o = f_o R_o$  la vitesse caractéristique liée à l'oscillation d'une goutte,  $C_1 = K_1 K_3 K_4^{-3/2} \approx 0,50, C_2 = K_2/K_1 \approx -0,04$  et enfin  $C_3 = \frac{K_5}{K_4} \approx 0,17$ .

La figure 4.20 compare la courbe obtenue avec cette équation aux données expérimentales. L'équation 4.13 reproduit globalement les tendances, même si une légère différence est constatée pour les amplitudes d'oscillation intermédiaires. Ces différences s'expliquent par le fait que la loi reliant le déplacement net à l'amplitude d'oscillation diffère légèrement de l'évolution linéaire (voir Figure 4.19). Néanmoins cette comparaison nous permet de comprendre que la saturation de la vitesse observée pour les amplitudes d'oscillation  $\Delta h/R_o > 0.7$  résulte essentiellement de la baisse de la fréquence d'oscillation de la goutte induite par les effets non linéaires dynamiques.



FIGURE 4.20: Vitesse de translation de la goutte V adimensionnée par la vitesse caractéristique d'oscillation de la goutte  $V_o = f_o R_o$  en fonction de l'amplitude d'oscillation de la goutte dimensionnée  $\Delta h/R_o$ . La courbe en pointillés correspond à l'équation 4.13

#### 4.4 Dynamique de gouttes sur plans inclinés ( $Bo\sin\alpha \neq 0$ )

Au cours de l'étude précédente, nous avons comparé la dynamique de gouttes posées et pendantes se déplaçant respectivement sur et sous une plaque horizontale afin d'identifier le rôle joué par la gravité. Dans cette section, nous allons étudier la dynamique de gouttes sur des plans inclinés. La gravité ne s'applique donc plus perpendiculairement au substrat et sa projection sur le substrat est mise en compétition avec le forçage acoustique dirigé dans le sens opposé (figure 5.2 (d)). En couvrant une large gamme de puissances acoustiques, nous avons observé soit la montée, soit la descente ou encore la stagnation de la goutte, avec dans ces régimes intermédiaires l'apparition de dynamiques complexes. Nous rappelons que dans les cas étudiés dans cette section, l'onde acoustique de surface se propage toujours vers le haut du substrat.

#### 4.4.1 Diagramme de phase

Le sens de déplacement de la goutte est contrôlé par les projections de la gravité et de la force acoustique sur la direction tangente au substrat. Lorsqu'elle est soumise à une excitation acoustique, la goutte se déforme essentiellement selon la direction de propagation des ondes acoustiques dans le liquide, c'est-à-dire suivant l'angle de Rayleigh. Cet angle étant constant, la contribution relative de la pression de radiation au mouvement sera représentée par le nombre de Weber acoustique. Vu les puissances utilisées, la goutte peut être très déformée par les ondes acoustiques et la longueur pertinente pour calculer les effet de pesanteur lorsque la goutte est étirée au maximum n'est plus le rayon  $R_o$  au repos mais la hauteur maximale  $h_{max}$ . Ainsi nous introduisons le nombre de Bond modifié :  $Bo_m = \frac{\rho g h_{max}}{\sigma/R_0}$  où  $h_{max}$  désigne la déformation maximale. La contribution relative de la gravité sur le déplacement est finalement estimée par  $Bo_m \sin \alpha$ .

La figure 4.21 regroupe les régimes de montée (rouge), de descente (bleu) et de stagnation (noir) pour différentes excitations acoustiques et inclinaisons.

#### 4.4.2 Dynamique aux nombres de Weber les plus faibles

# Nombres de Weber < 0.2: dépiégeage de la ligne de contact et descente de la goutte via les effets de gravité.

Pour des nombres de Weber inférieurs à 0.2, une descente de la goutte est toujours observée. Dans ce régime, la goutte oscille très peu et la projection sur le substrat de la force acoustique reste faible devant les effets de la gravité. Les effets acoustiques ne sont donc pas suffisants pour déplacer la goutte dans le sens de l'onde. En revanche, l'onde acoustique fait vibrer la goutte



FIGURE 4.21: Diagramme de phase dans le plan  $(We_{ac}, Bo_m sin\alpha)$  regroupant les régimes de descente (bleu), de stagnation (noir) et de montée (rouge) des gouttes.

ce qui permet de dépièger les lignes de contact. Par conséquent, la goutte qui était initialement piégée par des effets d'hystérésis descend sous l'effet de la gravité.

# Nombres de Weber intermédiaires $(0.2 < We_{ac} < 0.8)$ : transition entre montée et descente de la goutte.

Pour des puissances plus importantes ( $0.2 < We_{ac} < 0.7$ ), les deux régimes (ascendant ou descendant) sont observés selon la valeur du nombre de Weber et l'angle  $\alpha$ . A Weber constant, le choix du régime dépend donc de la projection du poids sur le substrat et a fortiori de l'inclinaison. Ainsi une goutte monte pour des inclinaisons faibles, descend pour des fortes et stagne au point d'équilibre entre ces deux effets :  $Bo_m \sin \alpha \sim We_{ac} \sin \theta_R$ . La zone de transition (point d'équilibre) évolue donc linéairement avec le nombre de Weber. Dans la zone de transition, les gouttes peuvent, dans une même expérience, alterner des périodes de montée et de descente. Un exemple correspondant à une goutte de  $15\mu$ L est illustré sur la figure 4.22. Dans ce régime, une légère augmentation de l'amplitude d'oscillation peut résulter en une disymétrisation plus importante de la goutte dans sa phase d'étirement et donc à une remontée de la goutte. La montée ou descente de la goutte est donc très sensible à la dynamique d'oscillation de la goutte.

#### 4.4.3 Dynamique aux nombres de Weber acoustique les plus élevés

Dans ce cas, des régimes de montée et descente de la goutte sont de nouveau observés mais ils sont très différents de ceux décrits précédemment. De plus, la zone de transition entre ces deux régimes s'élargit avec l'apparition de dynamiques complexes dans cette zone intermédiaire.



FIGURE 4.22: Hauteur et position d'une goutte de  $15\mu$ L à  $We_{ac}=0.33$  et  $\alpha=19^{\circ}$ . Les photos représentent les formes de goutte pour élongation maximale.

#### Régime de descente

A ces nombres de Weber acoustiques, les déformations des gouttes sont très importantes (4 à 5 fois le rayon initial). Pour de fortes inclinaisons ( $\alpha > 30^{\circ}$ ), un régime à asymétrie inversée est alors observé (losanges bleu sur le diagramme de phase). Dans ce cas, la goutte commence par s'étirer suivant un angle correspondant globalement à celui de la radiation de l'énergie acoustique dans la goutte (1ère ligne de la figure 4.23). Puis l'asymétrie s'inverse au cours de la phase de retombée de la goutte, sous l'effet de la gravité (2ème ligne de la figure 4.23). Dans



FIGURE 4.23: Régime à forte inclinaison et excitation acoustique.

ce régime, les effets capillaires et de pesanteur sont comparables et jouent tous les deux le rôle de ressort. On peut donc à l'aide d'une simple analyse dimensionnelle introduire la fréquence caractéristique de l'oscillation des gouttes sous la forme :

$$\omega^2 = \frac{g}{R_o} + \frac{\sigma}{\rho R_o^3} \tag{4.14}$$

Si l'on estime le temps caractéristique associé à chacun des effets ( $T_g$  pour la gravité et  $T_c$  pour les effets capillaires), on peut montrer qu'ils sont en effet du même ordre de grandeur :

$$T_g \sim \sqrt{\frac{g}{R_0}} \sim 80 \ ms \qquad T_c \sim \sqrt{\frac{\sigma}{\rho R_0^3}} \sim 50 \ ms$$
 (4.15)

#### Régime de montée

Pour des nombres de Weber supérieurs à l'unité et des angles d'inclinaisons faibles ( $\alpha < 20^{\circ}$ ) une goutte gravit le plan avec une dynamique efficace pour le déplacement (losanges rouges sur le diagramme de phase). En effet, les déformations excitées sont faibles et l'angle d'asymétrie grand engendrant des vitesses importantes (80 mm/s).



FIGURE 4.24: Régime à faible inclinaison et forte excitation acoustique.  $We_{ac}=1.3$  et  $\alpha=10.5^{\circ}$ .

La gravité dans ce cas joue un rôle difficile à interpréter car les angles pris par la plaque étant réduits et l'élongation étant faible, l'effet de la gravité ne devrait pas être très différent de celui joué pour les plaques horizontales. Or ce régime de déplacement n'est observé que sur un plan incliné suggérant que la gravité joue un rôle dans le choix du mode de déplacement de la goutte.

#### 4.4.4 Dynamiques complexes

Dans la zone de transition entre les régimes de montée et de descente de la goutte apparaissent des dynamiques complexes que nous allons décrire dans cette section.

#### Dédoublement de période et scénario de transition vers le chaos

Pour des excitations modérées  $(0.3 < We_{ac} < 0.6)$ , il existe une gamme d'angles d'inclinaison où le forçage acoustique et la gravité sont du même ordre de grandeur. L'opposition de ces deux forces excite alors une dynamique de goutte instationnaire (carrés sur la figure 4.21) dont un exemple est représenté par sa section de Poincarré sur la figure 4.25, où  $y_G$  désigne la position normale à la surface du centre de gravité et  $v_G$  sa vitesse.



FIGURE 4.25: Section de Poincarré pour une goutte de 10  $\mu$ L à  $We_{ac}=0.36$  et  $\alpha=15.5^{\circ}$ .

On peut voir sur cette figure un dédoublement de la période qui est connu pour être l'un des scénarios possibles de la transition vers le chaos. Le déclenchement de ce régime est lié au nombre de Weber acoustique. En augmentant ce paramètre, des branches supplémentaires apparaissent sur le diagramme de phase (figure 4.26).



FIGURE 4.26: Section de Poincarré pour une goutte de 10  $\mu$ L à  $We_{ac}=0.45$  et  $\alpha=15.5^{\circ}$ .

#### Séparation

A fort nombre de Weber acoustique, l'étirement de la goutte peut aboutir à sa division (voir figure 4.27). Le volume peut se diviser de différentes manières : par atomisation en haut de goutte (provoqué par la pression de radiation) ou sous les effets opposés de la gravité et de l'acoustique. Nous nous intéresserons à cette dernière qui apparait pour des angles d'inclinaison supérieurs à  $20^{\circ}$ .

La pression de radiation impose une déformation extrême allant jusqu'à plusieurs fois le rayon initial et la gravité tend à faire descendre le liquide (figure 4.27 (a)-(b)). Dans ces conditions la pression capillaire n'est plus suffisante pour contenir ces deux effets opposés et la goutte se sépare en deux. La majorité du volume emportée par la gravité vient alors se placer entre le transducteur et la goutte secondaire (figure 4.27 (c)). Cette dernière est stabilisée par l'augmentation de la pression capillaire (volume plus faible) et la diminution de l'énergie acoustique reçue qui est majoritairement captée par la goutte principale. Ce mécanisme se répète jusqu'au moment où la goutte la plus proche du transducteur (captant le maximum d'énergie) devient stable grâce à l'augmentation de sa pression capillaire (figure 4.27 (d)-(f)). L'influence de la gravité est alors minimisée et la dynamique de goutte est contrôlée par l'acoustique. S'en suit une remontée de la goutte la plus basse qui récupère les gouttes secondaires pour finalement reformer une seule goutte (figure 4.27 (g)-(h)). Or cette dernière est instable et la cascade de séparation recommence.



FIGURE 4.27: Séparation d'une goutte de 10  $\mu$ L à  $We_{ac}=1.67$  et  $\alpha=23^{\circ}$ .

Ce régime n'apparait que pour une gamme d'angles d'inclinaison et de puissances acoustiques restreinte. En effet, si l'inclinaison est trop faible, la goutte la plus grosse retombe tout près de la secondaire et les deux gouttes se rassemblent rapidement. Par ailleurs, si la puissance acoustique est trop importante les gouttes secondaires montent sur le plan et aucune réformation n'est observée. Un travail futur pourrait se concentrer sur l'étude de cette cascade de manière statistique.

#### 4.5 Conclusion

L'étude des gouttes posées et pendantes nous a permis de comprendre les paramètres essentiels régulant la dynamique de la goutte. Nous avons montré que le détachement de la goutte de la surface ainsi que la fréquence d'oscillation dépendent essentiellement du paramètre d'étirement de la goutte. La gravité tend à augmenter le paramètre d'étirement pour les gouttes pendantes et à le réduire pour les gouttes sessiles expliquant les réductions significatives du seuil de puissance nécessaires au détachement des gouttes et la diminution de la fréquence des modes capillaroinertiels observés dans le cas de gouttes pendantes. Puis la décomposition de la vitesse de translation comme le produit de la fréquence et du déplacement net a mis en évidence l'influence de la gravité et l'importance de l'amplitude d'oscillation sur la mobilité des lignes de contact. Finalement la saturation de la vitesse des gouttes sessiles est expliquée grâce aux évolutions non linéaires de la fréquence et de l'amplitude d'oscillation avec l'étirement de goutte.

Dans une seconde partie, la mise en compétition du forçage acoustique et de la gravité par l'utilisation d'un plan incliné a mis en exergue une variété de dynamiques intéressantes avec notamment l'apparition d'un dédoublement de période ou des mécanismes de fusion/division de la goutte. Cette richesse de dynamique met en avant le caractère auto-adaptatif du système étudié. En dernier lieu, le dépiégeage de la goutte à faible nombre de Weber ouvre des perspectives pour l'amélioration du glissement de la goutte sur une surface induite par des ondes de Rayleigh.

## Chapitre 5

# Décollement et tri cellulaire en microfluidique digitale par ondes acoustiques de surface

Dans les chapitres précédents, nous avons couvert différents aspects fondamentaux de la mise en mouvement d'une goutte par ondes acoustiques de surface. Ces phénomènes peuvent être utilisés au sein d'un laboratoire sur puce (LSP). Le déplacement, le mélange, le chauffage et la séparation de petites quantités de liquides constituent des étapes élémentaires de ce type de système et peuvent être effectués par ondes acoustiques de surface [19]. Ces opérations sont nécessaires à un LSP mais ne sont pas suffisantes pour réaliser des analyses biologiques variées. En effet, dans une optique d'applications biomédicales et biologiques, telles que le diagnostic, la thérapie cellulaire ou encore la biologie cellulaire, l'intégration d'étapes supplémentaires comme le détachement ou le tri cellulaire sont nécessaires.

Dans ce chapitre, nous présentons une méthode de tri cellulaire basée sur une différence d'adhésion des cellules et exploitant des phénomènes propres à la microfluidique en goutte. Le système utilise la déformation cyclique de la surface libre, excitée par une modulation des ondes acoustiques de surface, pour générer des écoulements à forts gradients qui permettent de détacher et de trier efficacement des cellules adhérant au substrat. L'exploitation des caractéristiques propres de la goutte permet de réduire les niveaux d'énergie nécessaires pour effectuer ce type d'opération et donc de limiter l'évaporation de la goutte, ce qui constitue un des facteurs limitants pour de nombreux autres systèmes. Ce travail a été réalisé en collaboration avec le Laboratoire de Biophotonique et d'Optoélectronique et l'Institut de Pharmacologie de l'Université de Sherbrooke (Québec) et a abouti à la publication d'un article dans le journal Lab on a Chip [112].

#### 5.1 Contexte biologique et microfluidique

L'isolement d'un type de cellule à partir d'un échantillon hétérogène tel que le sang est une étape fondamentale pour une large gamme d'applications. En effet, les cellules, une fois isolées, peuvent être analysées à des fins médicales (diagnostic) ou être exploitées, grâce à une mise en culture, pour la thérapie cellulaire [219], les biotechnologies [220], la recherche médicale ou encore la biologie cellulaire. Cette variété d'applications a conduit à l'élaboration de techniques de tri cellulaire modulables qui font, à l'heure actuelle, office de standard.

#### 5.1.1 Méthodes conventionnelles de tri

Trois techniques de tri sont largement utilisées dans les hôpitaux et laboratoires de recherches. Le tri par centrifugation [221], méthode la plus ancienne, exploite la différence de masse et de taille entre les cellules pour les séparer. Cette méthode présente l'avantage d'être simple et rapide mais peut modifier le phénotype des cellules par l'application d'une excitation intense (plusieurs centaines de g) et la récupération des différents types cellulaires fait appel à un certain savoir-faire. De plus, cette méthode n'est applicable que pour des cellules avec des coefficients de sédimentation (dépendant de la taille et de la masse) différents.

Dans les années 1940, une nouvelle technique d'analyse des propriétés cellulaires basée sur la lumière diffusée par une cellule passant au sein d'un faisceau laser voit le jour : la cytométrie en flux [222]. Cette méthode permet une étude quantitative (une seule cellule est analysée à la fois) et qualitative (diffusion dépendant de la taille et de la constitution de la cellule) d'un échantillon biologique hétérogène. L'encapsulation d'une cellule dans une goutte chargée selon le résultat de l'analyse permet alors de trier les cellules grâce à la déflexion imposée par un champ électrique extérieur lors de la chute de ces gouttes (figure 5.1). Cette méthode, connue sous le nom de tri activé par fluorescence (FACS) [223], s'étend alors à une variété d'application grâce aux marquages des cellules par des fluorochromes (détection par fluorescence) par des ligands spécifiques. Cette technique rapide (plusieurs milliers de cellules par seconde), efficace (détection multi-paramètres) et modulable (grâce aux marquages) devient alors le standard du tri cellulaire. Cependant la complexité du système de mesure et de tri la rend onéreuse.

La tri cellulaire magnétique (MACS) [224], basé sur le marquage des cellules par des microou nanoparticules magnétiques permet de s'affranchir de cette méthode de détection et de tri. La suspension cellulaire est introduite dans une colonne placée dans un aimant. Les cellules marquées sont retenues dans la colonne alors que le cellules non marquées sont éluées dans un premier récipient. En retirant le champ magnétique, les cellules marquées sont évacuées dans un second récipient. Cette méthode est donc moins onéreuse, bien que la consommation en nanoparticules adaptées représente un coût non négligeable.



FIGURE 5.1: Principe de fonctionnement du tri activé par fluorescence [223].

Ces trois techniques utilisées à tour de rôle, ou indépendamment, permettent alors de couvrir une large gamme de types cellulaires et d'efficacité. Cependant, avec l'avancée de la recherche médicale, des applications nouvelles comme la thérapie cellulaire [219] ou la reprogrammation de cellules souches [225] requièrent un tri cellulaire limitant le stress cellulaire. Le marquage ou la centrifugation rendent ces méthodes conventionnelles inadaptées pour ces applications.

#### 5.1.2 Tri microfluidique

Les plateformes microfluidiques permettent d'apporter des solutions à ces nouveaux challenges [226]. En effet, grâce à leur aptitude à travailler à l'échelle cellulaire, les LSP ouvrent la porte à une multitude de techniques de tri cellulaire dites "sans marquage" [227]. Nous pouvons notamment citer le filtrage hydrodynamique [228] ou le déplacement latéral déterministe [229] basé sur la taille, la dielectrophorèse [230, 231], les pinces optiques [232, 233], le tri par raideur [234, 235], l'acoustophorèse [77, 236] et le tri par différence d'adhésion cellulaire [237–239] tel que celui développé au sein de cette étude. L'utilisation de ces techniques reste encore limitée en raison des faibles différences de propriétés intrinsèques (faible modulabilité) et à leur relative nouveauté. Cependant, la distinction de pouvoir d'adhésion entre deux cellules peut être amplifiée par une nanostructuration [238] de surface, ou une biofonctionnalisation [239] (traitement de la surface avec des protéines d'adhésion spécifiques) faisant du tri par adhésion un candidat prometteur.

#### 5.1.3 Décollement cellulaire

La culture cellulaire constitue également une étape importante pour la thérapie cellulaire, et de manière plus générale pour la biologie cellulaire. En effet, l'étude d'une cellule est précédée par

une culture cellulaire généralement réalisée dans une boîte de Pétri. Un décollement des cellules de la surface de culture est donc nécessaire pour les récolter. Traditionnellement, celui-ci est effectué par l'utilisation de Trypsin-EDTA [240] qui digère les protéines d'adhésion et rompt alors les liaisons de la cellule. Cette méthode peut s'avérer agressive pour les cellules et nécessite une étape de rinçage. Une technique alternative consiste à soumettre les cellules adhérées à un écoulement cisaillant. L'efficacité de cette méthode a été prouvée par l'utilisation d'un disque rotatif [241] et plus récemment via un écoulement en microcanal [242] alimenté par une pompe extérieure ou des ondes acoustiques de surface [54, 55]. Dans un contexte de laboratoire sur puce, il est intéressant d'intégrer cette étape pour la récolte des cellules après culture [243] ou pour le nettoyage de surface.

#### 5.1.4 Microfluidique digitale

Le tri et le décollement cellulaire en microfluidique en microcanaux [244, 245] ont connu un développement rapide ces dernières années, mais restent peu étudiés en microfluidique en goutte, basée sur une physique complètement distincte. La microfluidique digitale (en goutte) (MDF) permet de réduire les volumes utilisés [246], et est plus adaptée pour l'étude des propriétés d'une petite population de cellules, par exemple pour l'investigation des mécanismes complexes d'adhésion cellulaire qui suscitent un vaste intérêt [247, 248]. Cette réduction de volume restreint ou rend inexploitables les effets développés en géométrie fermée. Cependant, l'exploitation de phénomènes propres à la MDF tels que la déformation de la surface libre peut créer, voire améliorer, certaines fonctions. L'activation de liquide en MFD est généralement réalisée par des ondes acoustiques de surface (SAW) [19, 35], électromouillage [249], ou diélectrophorèse [250]. Cette dernière a d'ailleurs été utilisée dans la première étude de tri cellulaire en goutte [251]. Une adaptation du tri cellulaire magnétique a ensuite été utilisée pour la seconde étude de tri [252]. Le tri par adhésion, quant à lui, n'a pas encore été étudié en MFD en raison des faibles forces générées par l'électromouillage et de la sensibilité des membranes cellulaires aux excitations diélectrophorèses intenses [253, 254]. Les ondes acoustiques de surface peuvent répondre à ce manque. En effet, grâce aux écoulements créés par "vent" acoustique, il est possible d'imposer un cisaillement suffisant pour détacher une couche cellulaire en microcanaux [54, 55]. Cependant, en goutte ces écoulements sont limités par le confinement, la restriction de puissance acoustique imposée par l'évaporation, et le déplacement de goutte. L'objectif de ce travail a donc été de surmonter ces contraintes afin de décoller et trier des cellules adhérant à la surface de contact d'une goutte sessile.

Au vu de la complexité des écoulements se développant au sein d'une goutte soumise à des ondes acoustiques de surface, cette étude se décompose en deux phases. Dans un premier temps nous avons exploré le potentiel d'un tel système à décoller un type cellulaire. Pour ce faire, nous avons testé une gamme de puissances, différents états d'adhésion de la couche cellulaire et plusieurs types d'excitations. Ce travail préliminaire [255] a permis de mettre en exergue l'efficacité des signaux modulés, en comparaison d'une excitation continue, pour décoller des cellules. Dans un second temps, nous avons cherché à comprendre l'origine hydrodynamique de cette amélioration pour exploiter et optimiser ce phénomène. Puis nous avons testé l'efficacité de cette méthode pour trier deux types de cellules.

#### 5.2 Matériels et méthodes

Nous commençons par passer en revue le système expérimental, les dispositifs à ondes acoustiques de surface et les protocoles cellulaires utilisés.

#### 5.2.1 Dispositif et procédure expérimentaux

Les expériences ont été réalisées sur des cellules (en pointillés rouges sur la figure 5.2) adhérées à la surface du niobate de lithium (LiNbO<sub>3</sub>) et immergées dans une goutte de 20  $\mu$ L de tampon phosphate salin (PBS). Les ondes de Rayleigh sont générées par l'application d'un signal sinusoïdal aux peignes interdigités (PI). L'excitation est assurée par un générateur radiofréquence (Agilent, modèle N9310a) suppléé par un amplificateur (Empower, model BBM0D3FEL) afin d'atteindre une puissance électrique de l'ordre du watt.



FIGURE 5.2: Schéma du dispositif expérimental.

Une zone de travail (emplacement de goutte) de  $8 \times 8 \text{ mm}^2$  est délimitée par des marqueurs à la surface du substrat. L'échantillon est placé sous un microscope à contraste de phase (Motic, model AE 30/31) équipé d'un objectif possédant un rapport de grossissement de 10, pour zoomer sur la couche cellulaire (la zone d'observation étant de 2 mm de diamètre). Le décollement cellulaire est enregistré par une caméra "normale" (25 fps, Guppy F-146B) pour les expériences préliminaires et une caméra rapide (1000 fps,10 bits CMOS, PCO, model pco.1200hs) par la suite. Un test de survie à court terme est effectué à la fin de chaque expérience par l'utilisation de Bleu de Trypan. Les images sont traitées et les cellules sont comptées à l'aide du logiciel

ImageJ. Les deux types cellulaires sont distingués grâce à leur différence de caractéristiques morphologiques (figure 5.3).



FIGURE 5.3: Photographie de co-adhésion des deux lignées cellulaires (A7r5 et HEK 293) après incubation dans une solution de cellules resuspendues. Les flèches permettent de mettre en évidence deux specimens typiques de cellules.

#### 5.2.2 Dispositifs à ondes acoustiques de surface

Dans un premier temps, les expériences exploratoires ont été réalisées en utilisant des dispositifs classiques ayant une fréquence de résonance de 23 MHz.

Puis pour la seconde phase de l'étude, une nouvelle génération de dispositifs a été fabriquée. Les ondes acoustiques, pour ces nouveaux dispositifs, se propagent dans une seule direction à une fréquence de 17,1 MHz grâce à l'utilisation d'un design de type EWC-SPUDT (Electrode Width Controlled Single-Phase Unidirectionnal Transducers) [121] pour les peignes interdigités. Le substrat piezoélectrique utilisé est du niobate de lithium d'un millimètre d'épaisseur en coupe X (Newlight Photonics). La direction de propagation des ondes est orientée selon l'axe cristallographique Z afin d'obtenir un meilleur coefficient de couplage électromécanique (K<sub>z</sub> = 4.9 %).

La microfabrication des substrats est réalisée suivant un procédé liftoff de photolithographie. Une épaisseur de  $2\mu$ m d'une résine photosensible positive (Shipley S18-13, Microchem) est étalée sur la surface du LiNbO<sub>3</sub> par enduction centrifuge. Les motifs des marqueurs de la zone de travail et des électrodes sont reproduits dans la résine par une insolation suivie d'une révélation. Une couche de 20 nm de titane (couche d'accroche) et de 200 nm d'or (couche conductrice) est déposée par évaporation sous vide. Finalement, cette couche est retirée de la zone non insolée par un bain d'acétone (procédé liftoff) révélant seulement les motifs voulus.

#### 5.2.3 Préparation cellulaire

Deux lignées cellulaires ont été utilisées pour ces expériences : les cellules rénales embryonnaires humaines HEK-293 et les cellules musculaires lisses aortiques de rat A7r5. Ces deux types cellulaires présentent l'avantage d'être facilement cultivables et ont des forces d'adhésion comparables aux cellules normales [256] et cancéreuses [257]. Cependant, l'adhésion d'une cellule est sensible à la composition et à la préparation de la surface en raison de la complexité des mécanismes sous-jacents (sécrétion de protéines d'adhésion). Pour les expériences préliminaires, nous avons utilisé des échantillons recouverts d'or. Cependant la surface se dégradant rapidement (rayures pendant la phase de nettoyage), nous avons choisi, pour la seconde génération de dispositif, de fair adhérer les cellules directement sur le substrat de LiNbO<sub>3</sub>. L'adhésion sur ces deux surfaces est différente [258] et les résultats entre ces deux études ne seront donc pas comparés. Le choix du LiNbO<sub>3</sub>, matériau communément utilisé pour générer des ondes acoustiques de surface, nous permet de définir un point de référence. De plus, le substrat pourra, si nécessaire, être fonctionnalisé par un traitement de surface spécifique dédié à l'adhésion cellulaire [259, 260]. Les cellules adhèrent à la surface, soit directement pendant la phase de croissance pour les expériences avec une seule lignée, soit par incubation du dispositif dans une solution de cellules resuspendues après culture pour les expériences avec une ou deux lignées.

Les cellules A7r5 et HEK 293 sont cultivées séparément dans des boîtes de Pétri de 60 mm contenant un milieu de culture (DMEM suppléé par 10% de sérum de foetus bovin inactivé par chauffage, 2 mM de L-glutamine, 50 IU/mL de pénicilline, 50  $\mu$ g/mL de streptomycin, Wisent). Elles sont incubées sous une atmosphère contrôlée en dioxyde de carbone (5 %) à 37°C pendant 24h à 48h. Pour les expériences où l'adhésion est obtenue pendant la croissance des cellules, le substrat de LiNbO<sub>3</sub> est placé au fond de la boîte de Petri durant la phase de culture.

Pour les autres expériences, les solutions de cellules resuspendues pour le décollement sont préparées par le protocole suivant : rinçage des cellules dans du PBS après 24h de culture ; incubation dans 500  $\mu$ L de trypsin-EDTA pendant 5 min à 37°C pour casser les liaisons cellulesboîtes de Pétri et cellules-cellules ; resuspension dans 2 mL de milieu de culture afin de stopper la digestion de la trypsin ; centrifugation pendant 5 min pour pouvoir séparer les cellules de la solution ; resuspension dans une solution saline tapée par HEPES (HBSS) (20 mM Hepes à pH 7.4, 120 mM de NaCl, 5.3 mM de KCl, 0.8 mM de MgSO4, 1.8 mM de CaCl2, and 11.1 mM de dextrose). Les solutions pour le tri sont, elles, préparées en combinant les solutions d'HEK 293 et d'A7r5 resuspendues dans des proportions déterminées expérimentalement pour atteindre un nombre de cellules équivalent de chaque lignée dans la solution finale. Enfin, les substrats de Niobate sont placés dans une boîte de Petri, immergés dans la solution de cellules resuspendues et incubés à 37°C pendant un temps variable (15 à 90 min). Ce protocole a été mis en place par Yannick Miron (technicien cellulaire de l'institut de pharmacologie de l'Université de Sherbrooke) pour les besoins de cette étude. Le substrat n'a plus besoin d'être incubé pendant la croissance des cellules et il est alors possible de réaliser plusieurs expériences par jour sur le même dispositif (une culture dure de 24h à 48h), accélérant drastiquement l'étude. De plus, nous pouvons ainsi "contrôler" l'adhésion cellulaire grâce à la variation du temps d'incubation.

Le substrat, après la phase d'adhésion, est rincé dans du PBS. Les cellules en dehors de la zone de travail sont séchées et retirées mécaniquement, laissant une couche cellulaire adhérée de  $8 \times 8 \text{ mm}^2$  recouverte par un film mince de PBS. Une goutte de 20  $\mu$ L de PBS est ajoutée sur cette zone. Il est intéressant de remarquer que la surface de travail, en raison de la sécrétion des cellules adhérées, devient fortement hydrophile; le liquide s'étale sur la zone carrée avec un angle de contact important.

#### 5.3 Etude préliminaire

Ce travail s'est concentré sur l'étude du décollement d'une lignée cellulaire (HEK 293) par ondes acoustiques de surface. Les cellules adhèrent à la surface du dispositif pendant la phase de croissance. En faisant varier le temps de culture, nous obtenons deux types de couches cellulaires (figure 5.4) : une couche non confluente (pas de liaisons cellules-cellules) obtenue après 1 jour de culture et une couche confluente obtenue après 2 jours de culture, où les cellules ont une forte interaction entre elles.



FIGURE 5.4: Différentes couches cellulaires, (a) couche confluente après 2 jours de culture, (b) couche non confluente après 1 jour de culture.

Seules les couches confluentes sont décollées sous une excitation continue et une puissance électrique de 1,6 W. L'écoulement de "streaming" commence par détacher les bords de la couche, la partie décollée est alors soumise à des forces hydrodynamiques plus importantes engendrant un détachement de la couche entière à cause des liaisons cellules-cellules. Pour des couches non confluentes, ce phénomène d'ensemble n'est plus possible et l'écoulement est insuffisant pour décoller des cellules isolées. Une augmentation de la puissance injectée n'entraîne pas de détachement de ces couches et conduit à la mort des cellules. Dans une étude précédente, nous avons montré que la puissance acoustique nécessaire au déplacement de goutte pouvait être réduite grâce à une modulation de l'excitation [107]. Nous avons donc utilisé des trains d'ondes acoustiques pour exciter le système. Avec ce type d'excitation, le décollement des couches confluentes est amélioré et les cellules isolées sont détachées. De plus, cette méthode permet de réduire la puissance acoustique injectée, qui peut être nocive pour la viabilité des cellules [261] et de limiter l'échauffement du liquide [96]. L'oscillation de la surface libre améliore donc considérablement le décollement cellulaire. La suite de cette étude s'est intéressée à la compréhension et l'optimisation hydrodynamique du système.

#### 5.4 Dynamique de goutte et interaction cellules-écoulement

Le détachement est le résultat d'une excitation hydrodynamique faisant intervenir l'oscillation de l'interface liquide-air. Afin de mettre en évidence ce phénomène, nous enregistrons la dynamique de l'interface vue de côté à l'aide d'une caméra rapide.

#### 5.4.1 Régimes hydrodynamiques

La déformation cyclique de l'interface entre la forme déformée (figure 5.5 haut) et relaxée (figure 5.5 bas) est obtenue par la modulation en créneaux de l'excitation (ON, OFF). Pendant la phase d'excitation, les effets d'acoustique non linéaire induisent un écoulement interne et une déformation de l'interface dans le sens de propagation de l'onde. Puis lors de la phase de relaxation, l'énergie potentielle capillaire stockée par l'interface impose un écoulement dans le sens inverse. La fréquence de modulation (5 Hz) et le rapport cyclique (25%) sont déterminés expérimentalement : la période du signal correspond à la somme du temps de relaxation de l'interface (150 ms) et du temps d'établissement d'une forme stable sous une excitation acoustique (50 ms) de 30 dBm.



FIGURE 5.5: Déformations extrêmes atteintes par une goutte soumise à des onde acoustiques de surface (SAW) de 1 W modulées par un signal créneaux de période 200 ms et de rapport cyclique 25 %.

La brève excitation (50 ms) déplace la ligne de contact avant (à gauche sur la figure 5.5) de quelques microns par cycle, alors que la ligne arrière reste piégée du fait de la forte hystérèse de l'angle de contact et des propriétés mouillantes de la couche cellulaire. Une goutte se déplace donc en s'étalant dans le sens de l'onde à une vitesse d'environ 0.01 mm/s. De cet étalement résultent trois régimes fluidiques, comme le montre la figure 5.6.

Au départ, l'expansion est faible et une goutte oscille entre deux positions extrêmes représentées sur la figure 5.6 (b) et la figure 5.5. Pendant la phase d'excitation, le liquide est emporté par les effets d'acoustique non linéaire dans le sens de l'onde regroupant l'essentiel du volume à l'avant d'une goutte, appelé ici "masse" liquide, et laissant un mince film liquide à l'arrière, phénomène précédemment observé par Kurosawa *et al.* [13], Rezk *et al.* [262] et Collins *et al.* [214]. Lors de la relaxation capillaire, la goutte revient à une forme relaxée symétrique.



FIGURE 5.6: Diagramme des différents régimes fluidiques sous une excitation modulée (ON : 50 ms; OFF : 150 ms). Le champ d'observation du microscope est représenté en violet. (a) Forme au repos. (b) Formes extrêmes initiales. (c) Après plusieurs cycles, le temps de relaxation n'est plus suffisant et la symétrie de goutte est brisée. Trois régimes fluidiques apparaissent : une "masse" liquide (bleu), une zone d'oscillation du front liquide (gris) et un film mince (orange). (d) Lorsque l'étalement est important, le champ de la caméra est confiné au film mince.

Après un certain nombre de cycles, le déplacement de la ligne de contact avant devient significatif ( $\sim 0.5$  mm). La largeur de goutte est augmentée et un temps de relaxation de 150 ms entre deux excitations n'est plus suffisant pour ramener une goutte dans une position relâchée symétrique. Trois régimes hydrodynamiques peuvent alors être distingués (figure 5.6 (c)). Comme précédemment, les extremums sont : (1) une "masse" liquide (en bleu) où le cisaillement de la couche cellulaire est une combinaison de tourbillons à grande échelle induits par le streaming d'Eckart [139] et de vortex à petites échelles dus aux streamings de Rayleigh et de Schlichting [161, 263] près de la couche limite; (2) le film mince (orange) où les streamings de Rayleigh et de Schlichting générés par une onde stationnaire (mis en évidence par une déformation périodique sur la figure 5.7 (a)) sont prédominants [262]. Entre les deux, une zone intermédiaire apparait (en gris) où la couche cellulaire est balayée par la frontière entre le film mince et la masse liquide, que nous appellerons dans la suite "front liquide" (figure 5.7 (b)). Il est important de noter que la couche cellulaire de 10  $\mu$ m d'épaisseur est en permanence immergée, même au sein du film liquide d'environ 100  $\mu$ m d'épaisseur, comme le montre la figure 5.7 (b), maintenant ainsi les cellules en vie.



FIGURE 5.7: (a) Zoom sur le film mince à l'arrière d'une goutte. L'interface est déformée suivant un motif d'onde stationnaire. (b) Profil de vitesse linéaire induit par le front liquide, et grandeurs caractéristiques du film mince.

Le champ d'observation étant fixe (zone verticale sur la figure 5.6) par rapport à l'étalement de la goutte, ces régimes fluidiques sont successivement enregistrés au cours d'une expérience. Il est alors possible de comparer l'efficacité du décollement induit par ces différentes excitations hydrodynamiques. Pour ce faire, des expériences ont été réalisées sur des cellules adhérées suivant les deux méthodes décrites précédemment : (1) adhésion des cellules pendant la phase de croissance de 24h et (2) incubation du substrat dans une solution de cellules resuspendues pendant 60 min. Pour ces expériences environ 300 cellules visibles (dans le champ de la caméra) sont initialement adhérées à la surface.

#### 5.4.2 Taux de détachement

Pour comparer ces deux expériences en termes d'efficacité de décollement, nous utilisons un taux de détachement. L'adhésion et le décollement d'une cellule sont extrêmement sensibles à de nombreuses conditions telles que son histoire ou son environnement (pH, température, composition du milieu, cisaillement). Le taux de détachement est donc normalisé afin de comparer les expériences.

Pour un taux de détachement normalisé  $(R_0)$  constant, la proportion (en opposition au nombre) de cellules se détachant de la surface pour un intervalle de temps fixé est la même à n'importe quel instant. Dans ces conditions, le nombre de cellules adhérant à la surface en fonction du temps N(t) suit un profil exponentiel,  $N(t) = N_0 e^{-R_0 t}$ , où  $N_0$  est le nombre initial de cellules. Or, au cours de nos expériences, ce taux de détachement R(t) varie avec le temps. Nous l'évaluons donc de manière "instantanée" par :

$$R(t) = -\frac{1}{N(t)} \frac{dN(t)}{dt}.$$
(5.1)

La figure 5.8 représente l'évolution de la fraction de cellules adhérées et du taux de décollement normalisé, sous une excitation modulée, en fonction du temps pour des cellules HEK 293 préparées suivant les deux protocoles : à gauche pour une adhésion pendant la croissance, et à droite pour une incubation dans une solution de cellules resuspendues. Les différentes couleurs de fond mettent en évidence les trois régimes fluidiques décrits précédemment ("masse" liquide, intermédiaire et film liquide). Les transitions entre les différents régimes sont déterminées par l'analyse de l'enregistrement sur lequel le front liquide est clairement visible. L'erreur de mesure sur les temps de transitions est estimée à  $\pm$  5 s.



FIGURE 5.8: Evolution de la fraction de cellule adhérée  $(N/N_0)$  et du taux de détachement normalisé (R) en fonction du temps pour des cellules HEK 293 adhérées pendant la croissance (gauche) et après 60 min d'incubation dans une solution de cellules resuspendues (droite).

#### 5.4.3 Comparaison des différents régimes

Lorsque les cellules sont soumises au régime de masse liquide, le taux de détachement est inférieur à  $0,005 \text{ s}^{-1}$  indiquant que le cisaillement imposé est faible. Ici, seules les cellules partiellement adhérées sont décollées. L'étalement de la goutte expose alors la couche cellulaire observée au régime intermédiaire. Le taux de détachement augmente drastiquement pour atteindre un maximum supérieur à  $0,025 \text{ s}^{-1}$  après un certain temps d'exposition à ce régime. Au cours d'une excitation acoustique (50 ms), la vitesse du front liquide évolue en fonction du temps. Elle est maximale au début puis décroît rapidement. Donc, lorsque le régime intermédiaire commence, la zone observée est soumise aux cisaillements imposés par les vitesses les plus faibles. Puis, au fur et à mesure que la goutte s'étale, cette même zone est soumise à des vitesses de plus en plus importantes et le taux de détachement augmente jusqu'à atteindre un maximum, comme le montre la figure 5.8. Lorsque la goutte atteint des étalements extrêmes, la zone observée se trouve dans le film liquide. Le taux de détachement décroît alors jusqu'à s'annuler pour des temps longs. Cependant, sur la figure 5.8 de gauche un taux de détachement ( $R \sim 0, 13$ ) constant est observé au début du régime en film mince, suggérant que les écoulements générés au sein du film liquide peuvent être efficaces. Pour des expériences de tri cellulaire, un décollement dans le régime en film mince est également observé.

En conclusion, le décollement est maximal lorsque la couche cellulaire est balayée par le front liquide. Ce mécanisme impose des vitesses importantes proches de la paroi. Ainsi, la dynamique de goutte excitée par une modulation permet d'atteindre des cisaillements conséquents grâce aux déformations de la surface libre. Ce système en goutte cumule ainsi les effets de la pression de radiation et d'acoustic streaming contrairement aux écoulements en microcanaux où seulement le vent acoustique est exploité.

#### 5.4.4 Estimation du cisaillement imposé par le front liquide

Le cisaillement imposé par l'oscillation du front liquide est alors estimé à partir de la séquence d'images. En supposant une condition de non-glissement à la paroi et un profil linéaire de la vitesse, le cisaillement  $\tau$  s'écrit :

$$\tau = \mu \frac{\partial v}{\partial y} \sim \mu \frac{V_{front \ liquide}}{h},\tag{5.2}$$

où y est la coordonnée spatiale normale à la surface, v la vitesse du liquide parallèle à la paroi à l'altitude y, et  $\mu$  la viscosité dynamique du liquide  $(10^{-3}m^2.s^{-1}$  pour le PBS) [264]. Dans cette formule,  $V_{front \ liquide}$  et h représentent respectivement la vitesse de la surface et l'épaisseur du film liquide estimées depuis la séquence d'image  $(h \sim 100 \ \mu m)$ . Pendant l'excitation, la vitesse du front liquide est d'environ 100 mm/s correspondant alors à un cisaillement de 1 Pa. Lors de la phase de relaxation, la vitesse du front liquide est bien inférieure (~ 10 mm/s) et le cisaillement est estimé à 0,1 Pa. A titre de comparaison, les valeurs de cisaillement utilisées dans la littérature pour détacher des cellules d'une surface traitée, ou non, sont comprises entre 0,01 et 10 Pa [55, 239, 242, 265].

En plus des forces visqueuses, un écoulement oscillant impose également des forces instationnaires. La contribution relative de ces forces est quantifiée par le nombre de Womersley [266] :

$$Wo = \sqrt{\frac{\rho \frac{\partial v}{\partial t}}{\mu \Delta v}} = \sqrt{\frac{\rho \omega V L^2}{\mu}} \sim \sqrt{\frac{2\pi h^2 \ V_{front \ liquide}}{\nu \ T_{modulation}}} \sim 0, 2.$$
(5.3)

Les forces instationnaires ne jouent donc pas dans notre système un rôle dominant dans le décollement mais y contribuent notablement. L'utilisation de deux peignes interdigités de part et d'autre du liquide permettrait d'optimiser ces forces en s'affranchissant de la limite de fréquence de modulation induite par la relaxation capillaire. D'autre part, les propriétés d'adhésion d'une cellule diffèrent entre un écoulement statique et pulsé [267]. Nous pouvons donc spéculer que le mécanisme de décollement est également modifié par l'application d'une contrainte oscillante comparée à un cisaillement statique.

#### 5.4.5 Caractérisation de la méthode

L'inverse du maximum de taux de détachement normalisé  $(1/\max(R))$  peut être considéré comme le temps caractéristique du système lorsque l'efficacité est optimale, *i.e.* le temps nécessaire à ce que le nombre de cellules adhérées soit égal à  $N_0/e$  lorsque le taux de détachement est maximum. Ce temps est d'environ 35 s dans les deux cas et le système a une constante de temps de l'ordre de la minute.

La durée d'exposition de la couche cellulaire au régime intermédiaire est également un paramètre intéressant à considérer. Pour l'expérience d'adhésion en croissance, le temps de ce régime est plus long ( $\sim 63$  s) et l'efficacité finale est plus importante (N < 10 %) que ceux obtenus pour l'expérience d'adhésion après incubation, 46 s et N  $\sim 25$  %, respectivement. Cette différence est due à un étalement de la goutte plus rapide dans la seconde expérience. Une délimitation de la zone de travail par un traitement hydrophobe permettrait un meilleur contrôle de la forme de goutte et de son avancement. Le régime, ainsi que sa durée, pourraient alors être sélectionnés. L'efficacité du système serait ainsi améliorée.

Les graphiques de la figure 5.8 présentent des maximums de taux de détachement comparables, indiquant que les deux méthodes d'adhésion conduisent à une force d'adhésion similaire (sous l'hypothèse que le taux de détachement est une indication de l'adhésion). Cela valide ainsi le protocole d'adhésion de cellules resuspendues.

#### 5.5 Tri cellulaire

Nous avons alors étudié l'efficacité de cette méthode pour trier deux lignées cellulaires en fonction de leur pouvoir d'adhésion. Les dispositifs sont incubés dans une solution de cellules resuspendues composée des deux lignées (A7r5 et HEK 293) pendant 15, 25 et 60 min. Le tri cellulaire peut être caractérisé par deux paramètres : la pureté et l'efficacité, évaluées lorsque le système a atteint un équilibre, *i.e.* lorsque le nombre de cellules adhérées n'évolue plus (typiquement  $\sim 2 \text{ min}$ ). Ces deux paramètres sont définis mathématiquement de la manière suivante :

$$Pureté = \frac{\% \text{ HEK } 293_{d\acute{e}tach\acute{e}}}{\% \text{ HEK } 293_{d\acute{e}tach\acute{e}} + \% \text{ A}7r5_{d\acute{e}tach\acute{e}}},$$
(5.4)

Efficacité = 
$$\%$$
 HEK 293<sub>détaché</sub>. (5.5)

La *pureté* correspond au pourcentage de cellules cibles détachées par rapport à l'ensemble des cellules qui se sont détachées du substrat suite à l'excitation acoustique. L'*efficacité* correspond tout simplement au pourcentage de cellules cibles détachées par rapport au nombre de cellules cibles adhérant initialement à la surface.

La pureté finale augmente avec le temps d'incubation, comme le montre la figure 5.9 de gauche. L'adhésion d'une cellule passe par l'adsorption à la surface puis par la sécrétion de protéines d'adhésion (telle que l'intégrine) qui sont des mécanismes "lents" (une à plusieurs dizaine de minutes). Les cellules ont donc besoin d'un certain temps pour adhérer de manière spécifique à la surface, et a fortiori maximiser la différence de force d'adhésion entre deux cellules. De plus, il est possible que la matrice de protéines extra-cellulaires sécrétées par les A7r5 perturbe l'adhésion des HEK 293. En effet, cette "interférence" entre cellules au cours de l'adhésion a déjà été reporté par Kwon *et al.* [238]. Ces auteurs ont montré que l'adhésion des cellules cancéreuses (MCF7) était améliorée par la présence de cellules épithéliales mammaires humaines (MCF10A). L'efficacité, quant à elle, n'évolue pas avec le temps d'incubation et est toujours supérieure à 90 %, comme le montre la figure 5.9 de droite, indiquant que l'on réussit toujours à arracher les cellules cibles de la surface.



FIGURE 5.9: Evolution de la pureté (gauche) et efficacité (droite) finale du système en fonction du temps d'incubation.

Les essais de viabilité réalisés pour ces expériences sont comparés aux essais menés sur des cellules subissant la même préparation mais sur lesquelles aucune excitation n'est appliquée

(contrôle négatif). Les résultats indiquent que cette méthode altère légèrement la viabilité des cellules (taux d'apothéose inférieur à 5 %).

#### 5.6 Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre, nous avons développé une méthode de décollement et de tri cellulaire dans des micro-gouttes par l'utilisation d'ondes acoustiques de surface modulées. Nous avons tout d'abord étudié la dynamique de la surface libre et son influence sur le décollement cellulaire. Les résultats montrent que la déformation périodique de l'interface permet d'imposer un cisaillement important (de l'ordre du Pascal) à une couche cellulaire conduisant à son décollement. Puis, par l'utilisation de deux types cellulaires, nous avons montré que cette méthode peut être efficacement appliquée au tri cellulaire par adhésion.

Cette méthode peut être généralisée à un plus grand nombre de cellules s'adhérant de manière intrinsèque ou contrôlée (par la biofonctionnalisation de surface). L'adhésion cellulaire dépendant de la compétition de sécrétion de protéines entre cellules, de la composition chimique et de la préparation de la surface, nous pouvons nous attendre à une modification des paramètres d'excitation et des performances du système.

Des études supplémentaires pourraient se concentrer sur l'utilisation d'une excitation à l'aide de deux peignes disposés l'un en face de l'autre pour maximiser les forces instationnaires, ou sur l'emploi de traitement de surface hydrophobe pour délimiter la zone d'étude et ainsi obtenir un meilleur contrôle de l'étalement de la goutte et des régimes fluidiques excités.

En dernier lieu, le décollement cellulaire hydrodynamique nécessite l'imposition de forts gradients de vitesse. Nous pouvons donc nous interroger sur la pertinence de l'utilisation de la ligne de contact à cet effet. Pour une puissance plus importante, la ligne de contact arrière est débloquée et passe alors dans le champ de vision de la caméra permettant d'observer l'interaction entre la ligne triple et les cellules. Cette expérience montre que les gradients de ligne de contact permettent de détacher les cellules de manière plus efficace mais sont trop élevés pour assurer la viabilité des cellules.

## Chapitre 6

## Conclusion générale et perspectives

#### Bilan du travail réalisé

Le travail réalisé a porté sur l'étude théorique et expérimentale du déplacement et de l'oscillation d'une goutte soumise à des ondes acoustique de surface.

Au chapitre 2 grâce à l'étude des propriétés acoustiques d'une goutte, nous avons mis en évidence qu'elle se comporte comme une cavité et accumule de l'énergie sous forme acoustique pour des fréquences d'excitation inférieures à 50 MHz. Le facteur de qualité du système a alors été calculé sous l'hypothèse de champ réfléchi. Nous avons ensuite exposé les mécanismes non linéaires impliqués dans l'actionnement. Les mesures par interférométrie laser de la vibration de la surface libre ont mis en évidence l'apparition d'un transfert d'énergie entre la fréquence d'excitation de 20 MHz et une fréquence de 20 kHz. Ce transfert a été expliqué par l'excitation d'ondes capillaires par le champ de pression de radiation s'établissant au sein d'une goutte. Ces mesures de vibration d'interface ont également montré un second effet : la discrétisation du spectre fréquentiel entre cette fréquence de 20 kHz et le mode fondamental d'une goutte mettant en exergue l'excitation de plusieurs modes propres de la goutte.

L'oscillation faiblement non linéaire d'une goutte a été modélisée au chapitre 3 sous l'hypothèse de goutte libre faiblement visqueuse. L'analyse du système d'équations obtenu a montré la possibilité d'une cascade d'énergie *inverse* via les couplages non linéaires de modes. Dans une seconde partie, nous avons montré que l'oscillation du mode fondamental est régie par une équation anharmonique de type Duffing. L'étude de stabilité de cette équation a mis en évidence la présence d'instabilités paramétrique super-harmonique et sous-harmonique observées expérimentalement. Finalement, nous avons identifié un mécanisme original d'excitation de résonance super-harmonique.
La comparaison des dynamiques de gouttes pendantes et posées, détaillée au chapitre 4, a montré que la gravité joue un rôle important d'une part sur l'oscillation et d'autre part sur le déplacement de gouttes. Nous avons mis en évidence que le détachement de la goutte de la surface et la fréquence d'oscillation dépendent essentiellement du paramètre d'étirement de la goutte. En utilisant le modèle développé au chapitre 3 nous avons montré que cette évolution est

induite par les non-linéarités d'oscillation. De plus, la décomposition de la vitesse de déplacement d'une goute comme le produit du déplacement net par cycle et de la fréquence nous a permis de mettre en relation la saturation de vitesse observée et cette dépendance de la fréquence. La mise en compétition du forçage acoustique et de la gravité au sein des expériences en plan incliné a fait apparaître une variété de dynamiques complexes avec des scénarios semblables à ceux observés dans les transitions vers des régimes chaotiques.

Enfin, l'étude biologique exposée au chapitre 5 a permis d'apporter un outil supplémentaire à ces microsystèmes. Nous avons exploité une déformation d'interface contrôlée pour imposer un écoulement cisaillant et ainsi décoller et/ou trier des cellules en fonction de leur pouvoir d'adhésion de manière viable. Cette application se démarque des études en microcanaux par l'exploitation conjointe du streaming acoustique et de la pression de radiation acoustique à travers la déformation de l'interface.

#### Perspectives

La première perspective porte sur l'étude du mécanisme sous-jacent à l'excitation spontanée du mode fondamental d'une goutte. Nous avons identifié deux transferts non linéaires de l'énergie pour une goutte de 10  $\mu$ L soumise à des ondes acoustiques de 20 MHz.

Tout d'abord le transfert entre 20 MHz et 20 kHz est relié à l'excitation d'ondes capillaires par le champ de pression de radiation acoustique. Cependant, le mécanisme exact reste encore à déterminer. L'identification du seuil de réponse, son évolution avec la fréquence d'excitation et le volume devront être examinés afin de mieux comprendre l'instabilité sous-jacente à l'apparition de la turbulence d'ondes capillaires. Notons qu'une étude des effets de la viscosité serait intéressante; il faudra alors veiller à ne pas modifier le caractère de la cavité acoustique.

La seconde question concerne l'excitation des modes d'oscillations quadripolaires (modes 2) d'une goutte dont la fréquence caractéristique est typiquement une centaine de Hertz. Les mesures du spectre à ces fréquences présentent un caractère discret indiquant que plusieurs modes propres de la goutte sont mis en jeu. Le modèle théorique d'oscillation faiblement non linéaire développé reste valide pour les modes d'ordres supérieurs. Il pourra alors être mis à contribution pour étudier les différents couplages non linéaires entre les modes propres dans le but de mieux comprendre la cascade d'énergie *inverse* observée expérimentalement. Cette étude devra s'intéresser en particulier aux phénomènes de résonances internes et aux combinaisons de résonances favorisant le transport de l'énergie vers les modes inférieurs.

La seconde perspective concerne le mécanisme responsable de la déformation asymétrique d'une goutte. Nous pouvons décomposer le champ acoustique en une partie incidente et une partie réfléchie. Pour de faibles élongations, la dynamique est quasi-symétrique puis passé au delà d'un certain seuil, une déformation asymétrique apparait brusquement (voir figure 6.1)



FIGURE 6.1: Première ligne : déformation d'une goutte au cours d'une phase d'élévation et déclenchement de l'asymétrie. Seconde ligne : champ de pression de radiation incident correspondant.

La figure 6.1 montre l'évolution du champ de pression de radiation au cours d'une déformation sphéroïdale. On peut remarquer que pour une déformation importante (image de droite), la pression de radiation atteint un maximum correspondant au point où l'onde incidente impacte l'interface en incidence normale. Le système est dans une configuration de résonateur entre le champ incident et la première réflexion à l'interface liquide-air. La pression de radiation s'appliquant à cette dernière peut alors drastiquement augmenter, une goutte se déforme à l'angle de Rayleigh et sert de guide d'onde acoustique.

## Annexe A

# Calcul du nombre d'onde du champ dans le fluide

La solution de l'équation de Stoneley est de la forme  $V_{Rg} = V_{Rg}{}^r + iV_{Rg}{}^i$  avec  $V_{Rg}{}^i \ll V_{Rg}{}^r$ . Le nombre d'onde de l'onde de Rayleigh généralisée s'écrit :

$$k = \frac{\omega}{V_{Rg}} = \frac{\omega V_{Rg}^{\ r}}{(V_{Rg}^{\ r})^2 + (V_{Rg}^{\ i})^2} - i \frac{\omega V_{Rg}^{\ i}}{(V_{Rg}^{\ r})^2 + (V_{Rg}^{\ i})^2} \approx \frac{\omega}{V_{Rg}^{\ r}} - i \frac{\omega V_{Rg}^{\ i}}{(V_{Rg}^{\ r})^2}, \tag{A.1}$$

ou plus simplement :

$$k = k_r + ik_i$$
 avec  $k_r = \frac{\omega}{V_{Rg}r}$  et  $k_i = -\frac{\omega V_{Rg}i}{(V_{Rg}r)^2}$ . (A.2)

Le nombre d'onde dans le fluide  $\gamma_f$  est, d'après la forme de la solution choisie, donné par : :

$$\gamma_f{}^2 = k^2 - k_f{}^2 \approx k_r{}^2 - k_f{}^2 + 2ik_rk_i = a + ib, \tag{A.3}$$

avec  $|b| \ll |a|, b < 0$  et a < 0. La racine carré du nombre d'onde est alors  $\gamma_f = \pm (\delta + i\beta)$  avec :

$$\delta = \sqrt{\frac{a + \sqrt{a^2 + b^2}}{2}} \approx \sqrt{\frac{a + |a| \left(1 + \frac{1}{2} \frac{b^2}{a^2}\right)}{2}} = \frac{1}{2} \frac{|b|}{\sqrt{|a|}},\tag{A.4}$$

$$\beta = \frac{|b|}{b} \sqrt{\frac{-a + \sqrt{a^2 + b^2}}{2}} \approx \frac{|b|}{b} \sqrt{|a|}.$$
 (A.5)

L'onde dans le fluide doit se propager suivant la direction  $-x_3$ , la partie imaginaire du nombre d'onde doit donc être positive. Or comme b < 0, la solution est donée par  $-\delta - i\beta$ . Le nombre d'onde dans le fluide est donc égale à :

$$\gamma_f \approx \frac{k_r k_i}{\sqrt{k_f^2 - k_r^2}} + i\sqrt{k_f^2 - k_r^2}.$$
 (A.6)

## Annexe B

# Puissance transmise à une goutte par des ondes de Rayleigh

La puissance transmise à une goutte peut être calculée en intégrant l'intensité acoustique sur la zone de contact  $S_c$ . Cette méthode revient donc à intégrer  $dP_{ac}$  sur  $S_c$ .

$$P_{trans} = \iint_{S_c} \langle I_l(x_1, x_2, t) \rangle dS = \rho_l c_l \iint_{S_c} \langle v_l(x_1, x_2, t)^2 \rangle dS, \tag{B.1}$$

où  $c_l$  et  $\rho_l$  sont respectivement la célérité et la masse volumique du liquide. La vitesse du liquide à l'interface est déterminée par la répartition imposée par l'onde de Rayleigh généralisée,  $v_l = v_0 e^{-\alpha_R(x_1 + \sqrt{R_0^2 - x_2^2})} e^{i\omega t}$  où l'origine du repère  $(O, x_1, x_2)$  est située au centre de la goutte. La puissance transmise est alors :

$$P_{trans} = \frac{1}{2} \rho_l c_l v_0^2 \int_{-R_0}^{R_0} \int_{-\sqrt{R_0^2 - x_2^2}}^{\sqrt{R_0^2 - x_2^2}} e^{-2\alpha_R (x_1 + \sqrt{R_0^2 - x_2^2})} dx_1 dx_2$$
(B.2)

$$= \frac{1}{2}\rho_l c_l v_0^2 \frac{R_0}{\alpha_R} \left( 1 - \frac{1}{2} \int_{-1}^{1} e^{-4\alpha_R R_0 \sqrt{1 - x^2}} dx \right).$$
(B.3)

Le calcul du coefficient de transmission utilisé ici fait intervenir l'hypothèse de vitesse dans le liquide normale à l'interface. Cette hypothèse doit également être posée ici pour trouver une puissance cohérente avec le calcul de Dransfeld. En effet, si nous considérons l'inclinaison de l'onde émise (à l'angle de Rayleigh) le coefficient de transmission  $\alpha_R$  devra être corrigé par l'intermédiaire de l'équation 2.33. Ici, nous recherchons une estimation de la puissance transmise et négligeons donc la composante tangente à l'interface de la vitesse dans le fluide. Nous avons donc :

$$P_{trans} = \frac{1}{2}\rho_l c_l a_n^2 \omega^2 R_0 \frac{\rho_s V_R^2}{\rho_l c_l f} \left( 1 - \frac{1}{2} \int_{-1}^{1} e^{-4\alpha_R R_0 \sqrt{1 - x^2}} dx \right) = P_{ac} F_{dist}.$$
 (B.4)

$$F_{dist} = 1 - \frac{1}{2} \int_{-1}^{1} e^{-4\alpha_R R_0 \sqrt{1 - x^2}} dx$$
(B.6)

Le coefficient de transmission  $T_R = \frac{P_{trans}}{P_{ac}} = F_{dist}$  dépend de la forme de la zone de contact et du coefficient  $\alpha_R$  et tend vers 1 lorsque les dimensions du système sont supérieures à  $L_R$ . La puissance transmise peut également s'écrire sous la forme  $P_{trans} = I_0 S_{trans}$  avec  $S_{trans} = R_0 L_R F_{dist}$ . Remarquons, que la prise en considération de l'angle d'émission modifie la longueur transmission et donc la puissance transmise à travers le facteur  $F_{dist}$ .

où

## Annexe C

# Calcul du champ de pression de radiation induit par le champ incident

Le calcul de la pression de radiation induite par le champ incident sur l'interface liquide-air s'écrit :

$$p_{rad} = 2\langle E_i \rangle \cos^2 \theta_i.$$
(C.1)

FIGURE C.1: Définition des repère pour le calcul de la pression de radiation.

L'énergie acoustique est calculée dans l'hypothèse d'une onde plane  $E = \rho_0 v^2$ . Le système de coordonnées choisi est donné dans la figure C.1. Dans ce système, la vitesse acoustique s'exprime à partir du gradient du potentiel des vitesses déterminé dans la section 2.1.3 où l'axe  $x_3$  est inversé, i.e. dirigé vers le fluide. Nous posons  $\sin \theta_R = \frac{k_r}{k_f}$ ,  $\cos \theta_R = \frac{\sqrt{k_f^2 - k_r^2}}{k_f}$  et  $\tan \theta_R = \frac{k_r}{\sqrt{k_f^2 - k_r^2}}$ .  $\psi_f$  s'exprime alors :

$$\psi_f = H_0 \mathrm{e}^{\alpha_R (\tan \theta_R x_3 - x_1)} \mathrm{e}^{i(\omega t - k_f (\sin \theta_R x_1 + \cos \theta_R x_3))} + c.c. \tag{C.2}$$

$$= \frac{1}{2} H_0 e^{\alpha_R (\tan \theta_R x_3 - x_1)} \cos \left(\omega t - k_f (\sin \theta_R x_1 + \cos \theta_R x_3)\right).$$
(C.3)

Nous définissons un nouveau repère  $(x_R, x_2, z_R)$  lié à la propagation de l'onde dans le fluide. Le changement de base donne :  $x_R = \sin \theta_R x_1 + \cos \theta_R x_3$  et  $z_R = -\cos \theta_R x_1 + \sin \theta_R x_3$ . Le potentiel dans cette nouvelle base est donnée :

$$\psi_f = \frac{1}{2} H_0 e^{\alpha_R \frac{z_R}{\cos \theta_R}} \cos \left(\omega t - k_f x_R\right) \tag{C.4}$$

La vitesse acoustique est alors déterminée par le gradient du potentiel :

$$\vec{v} = \vec{\nabla}\psi_f = \frac{1}{2}H_0 e^{\alpha_R \frac{z_R}{\cos\theta_R}} \left( k_f \sin\left(\omega t - k_f x_R\right) \vec{x}_R + \frac{\alpha_R}{\cos\theta_R} \cos\left(\omega t - k_f x_R\right) \vec{z}_R \right)$$
(C.5)

Remarquons que le rotationel de ce champ est nul, ce qui indique que ce champ de vitesse vérifie bien les conditions d'un champ acoustique.  $H_0$  est déterminée par la continuité de la vitesse normale à l'entrée dans le liquide :

$$\frac{1}{2}H_0(k_f\cos\theta_R + \alpha_R\tan\theta_R) = a_n\omega.$$
(C.6)

En remarquant que

$$\frac{\alpha_R \tan \theta_R}{k_f \cos \theta_R} = \frac{\rho c}{2\pi \rho_S V_R^3 \left(\frac{1}{c^2} - \frac{1}{V_R^2}\right)} \approx 10^{-3},\tag{C.7}$$

la constante  $H_0$  peut être estimée par :

$$\frac{1}{2}H_0 = \frac{a_n\omega}{k_f \cos\theta_R} = \frac{a_n\omega}{\sqrt{k_f^2 - k_r^2}} = \frac{a_nc}{\sqrt{1 - \frac{c^2}{V_R^2}}}.$$
 (C.8)

La moyenne de l'énergie acoustique s'exprime :

$$\langle E_i \rangle = \rho \langle v^2 \rangle = \frac{1}{2} \rho \frac{a_n^2 c^2}{1 - \frac{c^2}{V_R^2}} e^{2\alpha_R \frac{z_R}{\cos \theta_R}} \left( k_f^2 + \frac{\alpha_R^2}{\cos^2 \theta_R} \right), \tag{C.9}$$

En utilisant le fait que  $\frac{\alpha_R}{\cos \theta_R} \ll k_f$ , l'énergie acoustique moyenne peut être réécrite sous la forme :

$$\langle E_i \rangle = \frac{1}{2} \rho \frac{a_n^2 \omega^2}{1 - \frac{c^2}{V_R^2}} e^{2\alpha_R \frac{z_R}{\cos \theta_R}} = E_0 e^{2\alpha_R (\tan \theta_R x_3 - x_1)}.$$
 (C.10)

Ce calcul est étendu au cas tridimensionnel en suivant la même méthode que pour le calcul de la puissance transmise. Jusqu'alors les calculs ont été développés en 2D en prenant l'origine du repère à la ligne de contact. Nous déplaçons maintenant cette origine au centre de la surface de contact (figure C.1), ce qui revient à remplacer  $x_1$  par  $x_1 + \sqrt{R_0^2 - x_2^2}$ . Nous évaluons ensuite l'énergie acoustique sur la sphère soit pour  $x_3 = \sqrt{R_0^2 - x_2^2 - x_1^2}$ . Ainsi, l'énergie de l'onde incidente à l'interface est donnée par :

$$\langle E_i \rangle = E_0 \mathrm{e}^{-2\alpha_R \left( x_1 - \sqrt{R_0^2 - x_2^2 - x_1^2} \tan \theta_R + \sqrt{R_0^2 - x_2^2} \right)}.$$
 (C.11)

La coefficient d'incidence de l'onde, donnée par  $\cos^2 \theta_i$ , est déterminé à partir du produit scalaire entre la normale à l'interface  $\vec{e}_R$  (figure C.1) et le vecteur  $\vec{x}_R$  (nous négligeons ici la composante de la vitesse sur  $\vec{z}_R$  dont la contribution est négligeable devant celle en  $\vec{x}_R$ ) :

$$\cos^2 \theta_i = (\vec{x}_R \cdot \vec{e}_r)^2 = (\sin \theta_R \sin \theta \cos \varphi + \cos \theta_R \cos \theta)^2, \tag{C.12}$$

où les angles  $\theta$  et  $\varphi$  sont représentés sur la figure C.1. Le champ de pression de radiation induit par l'onde incidente est le produit des deux quantités déterminées dans cette annexe :  $\langle E_i \rangle$  et  $\cos^2 \theta_i$ . Les figures du chapitre 2 représentent la répartition de la pression de radiation et non la pression absolue soit :  $\frac{p_{rad}}{2E_0}$ .

Notons que ce champ de pression de radiation ne prend pas en compte les effets de diffraction induits par la ligne de contact. Ces derniers vont modifier la réparation de l'énergie à l'interface solide-liquide (diffraction de l'onde de Rayleigh) et dans le liquide (diffraction de l'onde émise).

## Annexe D

# Calcul des énergies associées au lagrangien

#### Conservation du volume

```
 \begin{aligned} \mathbf{V}[\boldsymbol{\epsilon}_{-}, \boldsymbol{\theta}_{-}, \boldsymbol{\zeta}_{-}] &= \\ \mathbf{FullSimplify}[\mathbf{Series}[\mathbf{Integrate}[\eta^{2}, \{\eta, \mathbf{0}, \mathbf{1} + \boldsymbol{\epsilon} \mathbf{F}[\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\zeta}]\}], \{\boldsymbol{\epsilon}, \mathbf{0}, \mathbf{4}\}]] \\ &\frac{1}{3} + \mathbf{F}[\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\zeta}] \boldsymbol{\epsilon} + \mathbf{F}[\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\zeta}]^{2} \boldsymbol{\epsilon}^{2} + \frac{1}{3} \mathbf{F}[\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\zeta}]^{3} \boldsymbol{\epsilon}^{3} + \mathbf{O}[\boldsymbol{\epsilon}]^{5} \end{aligned}
```

#### Calcul de la surface

```
 \begin{split} & \mathbf{es}\left[\epsilon_{-}, \, \theta_{-}, \, \xi_{-}\right] = \\ & \left(1 + \mathbf{F}\left[\theta, \, \xi\right] \, \epsilon\right)^{2} \mathbf{Sqrt}\left[1 + \left(\left(\mathbf{D}\left[\mathbf{F}\left[\theta, \, \xi\right], \, \left\{\theta, \, 1\right\}\right] \, \epsilon\right) \, / \, \left(1 + \mathbf{F}\left[\theta, \, \xi\right] \, \epsilon\right)\right)^{2} \right] \\ & \left(1 + \epsilon \, \mathbf{F}\left[\theta, \, \xi\right]\right)^{2} \sqrt{1 + \frac{\epsilon^{2} \, \mathbf{F}^{\left(1, \, 0\right)} \left[\theta, \, \xi\right]^{2}}{\left(1 + \epsilon \, \mathbf{F}\left[\theta, \, \xi\right]\right)^{2}}} \\ \\ & \mathbf{Es}\left[\epsilon_{-}, \, \theta_{-}, \, \xi_{-}\right] = \mathbf{FullSimplify}\left[\mathbf{Series}\left[\mathbf{es}\left[\epsilon, \, \theta, \, \xi\right], \, \left\{\epsilon, \, 0, \, 5\right\}\right]\right] \\ & 1 + 2 \, \mathbf{F}\left[\theta, \, \xi\right] \, \epsilon + \left(\mathbf{F}\left[\theta, \, \xi\right]^{2} + \frac{1}{2} \, \mathbf{F}^{\left(1, \, 0\right)} \left[\theta, \, \xi\right]^{2}\right) \, \epsilon^{2} - \\ & \frac{1}{8} \, \mathbf{F}^{\left(1, \, 0\right)} \left[\theta, \, \xi\right]^{4} \, \epsilon^{4} + \frac{1}{4} \, \mathbf{F}\left[\theta, \, \xi\right] \, \mathbf{F}^{\left(1, \, 0\right)} \left[\theta, \, \xi\right]^{4} \, \epsilon^{5} + \mathbf{O}\left[\epsilon\right]^{6} \end{split}
```

#### Calcul de l'énergie cinétique

```
\begin{split} & \mathbf{ec} \left[ \mathbf{e}_{-}, \eta_{-}, \mathbf{\theta}_{-}, \mathbf{\xi}_{-} \right] = \\ & (\mathbf{1}/2) \mathbf{e}^{2} \left( \left( \mathbf{D} \left[ \phi \left[ \eta, \theta, \mathbf{\xi} \right] \right], \left\{ \eta, \mathbf{1} \right\} \right] \right)^{2} \eta^{2} \mathbf{2} + \left( \mathbf{D} \left[ \phi \left[ \eta, \theta, \mathbf{\xi} \right] \right], \left\{ \theta, \mathbf{1} \right\} \right] \right)^{2} \right) \\ & \frac{1}{2} \mathbf{e}^{2} \left( \phi^{(0,1,0)} \left[ \eta, \theta, \mathbf{\xi} \right]^{2} + \eta^{2} \phi^{(1,0,0)} \left[ \eta, \theta, \mathbf{\xi} \right]^{2} \right) \\ & \mathbf{Ec} \left[ \mathbf{e}_{-}, \theta_{-}, \mathbf{\xi}_{-} \right] = \\ & \mathbf{FullSimplify[Series[Integrate[ec[e, \eta, \theta, \mathbf{\xi}], \left\{ \eta, \mathbf{0}, \mathbf{1} + \mathbf{F} \left[ \theta, \mathbf{\xi} \right] \mathbf{e} \right\} \right], \left\{ \mathbf{e}, \mathbf{0}, \mathbf{4} \} \right] \right] \\ & \frac{1}{2} \left( \int_{0}^{1} \left( \phi^{(0,1,0)} \left[ \eta, \theta, \mathbf{\xi} \right]^{2} + \eta^{2} \phi^{(1,0,0)} \left[ \eta, \theta, \mathbf{\xi} \right]^{2} \right) d\eta \right) \mathbf{e}^{2} + \\ & \frac{1}{2} \mathbf{F} \left[ \theta, \mathbf{\xi} \right] \left( \phi^{(0,1,0)} \left[ \mathbf{1}, \theta, \mathbf{\xi} \right]^{2} + \phi^{(1,0,0)} \left[ \mathbf{1}, \theta, \mathbf{\xi} \right]^{2} \right) \mathbf{e}^{3} + \\ & \frac{1}{2} \mathbf{F} \left[ \theta, \mathbf{\xi} \right]^{2} \left( \phi^{(0,1,0)} \left[ \mathbf{1}, \theta, \mathbf{\xi} \right] \phi^{(1,1,0)} \left[ \mathbf{1}, \theta, \mathbf{\xi} \right] + \\ & \phi^{(1,0,0)} \left[ \mathbf{1}, \theta, \mathbf{\xi} \right] \left( \phi^{(1,0,0)} \left[ \mathbf{1}, \theta, \mathbf{\xi} \right] + \phi^{(2,0,0)} \left[ \mathbf{1}, \theta, \mathbf{\xi} \right] \right) \right) \mathbf{e}^{4} + \mathbf{O} \left[ \mathbf{e} \right]^{5} \end{split}
```

#### Calcul du terme instationnaire

```
\begin{aligned} & \mathbf{et} [\boldsymbol{\epsilon}_{-}, \eta_{-}, \boldsymbol{\theta}_{-}, \boldsymbol{\xi}_{-}] = \boldsymbol{\epsilon} \, \mathbf{D} [\phi[\eta, \theta, \boldsymbol{\xi}], \{\boldsymbol{\xi}, 1\}] \, \eta^{2} \\ & \boldsymbol{\epsilon} \, \eta^{2} \, \phi^{(0,0,1)} [\eta, \theta, \boldsymbol{\xi}] \\ & \mathbf{Et} [\boldsymbol{\epsilon}_{-}, \boldsymbol{\theta}_{-}, \boldsymbol{\xi}_{-}] = \\ & \mathbf{FullSimplify} [\mathbf{Series} [\mathbf{Integrate} [\mathbf{et} [\boldsymbol{\epsilon}, \eta, \theta, \boldsymbol{\xi}], \{\eta, \mathbf{0}, \mathbf{1} + \mathbf{F} [\theta, \boldsymbol{\xi}] \, \boldsymbol{\epsilon}\}], \{\boldsymbol{\epsilon}, \mathbf{0}, 4\}]] \\ & \left( \int_{0}^{1} \eta^{2} \, \phi^{(0,0,1)} [\eta, \theta, \boldsymbol{\xi}] \, \mathrm{d}\eta \right) \, \boldsymbol{\epsilon} + \mathbf{F} [\theta, \boldsymbol{\xi}] \, \phi^{(0,0,1)} [1, \theta, \boldsymbol{\xi}] \, \boldsymbol{\epsilon}^{2} + \\ & \frac{1}{2} \, \mathbf{F} [\theta, \boldsymbol{\xi}]^{2} \, \left( 2 \, \phi^{(0,0,1)} [1, \theta, \boldsymbol{\xi}] + \phi^{(1,0,1)} [1, \theta, \boldsymbol{\xi}] \right) \, \boldsymbol{\epsilon}^{3} + \\ & \frac{1}{6} \, \mathbf{F} [\theta, \boldsymbol{\xi}]^{3} \, \left( 2 \, \phi^{(0,0,1)} [1, \theta, \boldsymbol{\xi}] + 4 \, \phi^{(1,0,1)} [1, \theta, \boldsymbol{\xi}] + \phi^{(2,0,1)} [1, \theta, \boldsymbol{\xi}] \right) \, \boldsymbol{\epsilon}^{4} + \mathbf{O} [\boldsymbol{\epsilon}]^{5} \end{aligned}
```

Annexe E

# Décalage non linéaire de la fréquence de résonance

#### Définition des équations

```
 \begin{split} & \text{Eq2} := D[x_2[t], \{t, 2\}] + \omega_2 \,^2 x_2[t] + tt_2 \, x_2[t] \, D[x_2[t], \{t, 2\}] + \\ & \text{c}_2 \, D[x_2[t], \{t, 1\}] \,^2 + s_2 \, x_2[t] \,^2 + T_2 \, x_2[t] \,^2 D[x_2[t], \{t, 2\}] + \\ & \text{c}_2 \, x_2[t] \, D[x_2[t], \{t, 1\}] \,^2 + s_2 \, x_2[t] \,^3 + i_{t42} \, x_4[t] \, D[x_2[t], \{t, 2\}] + \\ & i_{t24} \, x_2[t] \, D[x_4[t], \{t, 2\}] + i_c \, D[x_4[t], \{t, 1\}] \, D[x_2[t], \{t, 1\}] + i_s \, x_2[t] \, x_4[t] \\ & \text{Eq4} := D[x_4[t], \{t, 2\}] + \omega_4 \,^2 \, x_4[t] + t_4 \, x_2[t] \, D[x_2[t], \{t, 2\}] + c_4 \, D[x_2[t], \{t, 1\}] \,^2 + \\ & s_4 \, x_2[t] \,^2 + T_4 \, x_2[t] \,^2 \, D[x_2[t], \{t, 2\}] + C_4 \, x_2[t] \, D[x_2[t], \{t, 1\}] \,^2 + s_2 \, x_2[t] \,^3 \end{split}
```

#### Détermination des équations aux différents ordres

```
x_{2}[t] = \epsilon x_{21}[t] + \epsilon^{2} x_{22}[t] + \epsilon^{3} x_{23}[t]
 x_4[t] = \epsilon^2 x_{41}[t] + \epsilon^3 x_{42}[t]
 A = Series[Eq2, \{\epsilon, 0, 3\}];
 B = Series[Eq4, {\epsilon, 0, 3}];
 EqL2 = SeriesCoefficient[A, 1]
  EqNLQ2 = SeriesCoefficient[A, 2]
 EqNLC2 = SeriesCoefficient[A, 3]
  EqNLQ4 = SeriesCoefficient[B, 2]
 \in x_{21}[t] + \epsilon^2 x_{22}[t] + \epsilon^3 x_{23}[t]
 e^{2} x_{41} [t] + e^{3} x_{42} [t]
\omega_2^2 \, {\bf x}_{21} \, [\, {\bf t}\,] \, + {\bf x}_{21}^{\,\prime\prime} \, [\, {\bf t}\,]
  s_{2} x_{21} [t]^{2} + \omega_{2}^{2} x_{22} [t] + c_{2} x_{21}' [t]^{2} + tt_{2} x_{21} [t] x_{21}'' [t] + x_{22}'' [t]
 S_{2} x_{21} [\texttt{t}]^{3} + 2 s_{2} x_{21} [\texttt{t}] x_{22} [\texttt{t}] + \omega_{2}^{2} x_{23} [\texttt{t}] + i_{s} x_{21} [\texttt{t}] x_{41} [\texttt{t}] + C_{2} x_{21} [\texttt{t}] x_{21}' [\texttt{t}]^{2} + C_{2} x_{21} [\texttt{t}]^{2}
        2 c_{2} x_{21}'[t] x_{22}'[t] + i_{c} x_{21}'[t] x_{41}'[t] + T_{2} x_{21}[t]^{2} x_{21}''[t] + tt_{2} x_{22}[t] x_{21}''[t] + tt_{2} x_{21}''[t] + tt_{2} x_{22}[t] x_{21}''[t] + tt_{2} x_{21}''
           \mathtt{i}_{\mathtt{t}42}\, \mathtt{x}_{41}\,[\,\mathtt{t}\,]\,\, \mathtt{x}_{21}^{\prime\prime}\,[\,\mathtt{t}\,]\, +\, \mathtt{t}\mathtt{t}_{2}\, \mathtt{x}_{21}\,[\,\mathtt{t}\,]\,\, \mathtt{x}_{22}^{\prime\prime}\,[\,\mathtt{t}\,]\, +\, \mathtt{x}_{23}^{\prime\prime}\,[\,\mathtt{t}\,]\, +\, \mathtt{i}_{\mathtt{t}24}\, \mathtt{x}_{21}\,[\,\mathtt{t}\,]\,\, \mathtt{x}_{41}^{\prime\prime}\,[\,\mathtt{t}\,]
  s_4 x_{21} [t]^2 + \omega_4^2 x_{41} [t] + c_4 x_{21}' [t]^2 + t_4 x_{21} [t] x_{21}'' [t] + x_{41}'' [t]
```

#### Résolution par approximations succesives (cf Landau)

```
\begin{aligned} \mathbf{x}_{21}[t] &= a \cos[\omega_{2} t] \\ \mathbf{x}_{22}[t] &= \mathbf{X}_{2m} a^{2} + \mathbf{X}_{2a} a^{2} \cos[2\omega_{2} t] \\ \mathbf{x}_{41}[t] &= \mathbf{X}_{4m} a^{2} + \mathbf{X}_{4a} a^{2} \cos[2\omega_{2} t] \\ \mathbf{x}_{2}[t] &= \epsilon \mathbf{x}_{21}[t] + \epsilon^{2} \mathbf{x}_{22}[t] + \epsilon^{3} \mathbf{x}_{23}[t] \\ \mathbf{x}_{4}[t] &= \epsilon^{2} \mathbf{x}_{41}[t] + \epsilon^{3} \mathbf{x}_{42}[t] \\ a \cos[t\omega_{2}] \\ a^{2} \cos[2 t\omega_{2}] \mathbf{X}_{2a} + a^{2} \mathbf{X}_{2m} \\ a^{2} \cos[2 t\omega_{2}] \mathbf{X}_{4a} + a^{2} \mathbf{X}_{4m} \\ a \in \cos[t\omega_{2}] + \epsilon^{2} \left(a^{2} \cos[2 t\omega_{2}] \mathbf{X}_{2a} + a^{2} \mathbf{X}_{2m}\right) + \epsilon^{3} \mathbf{x}_{23}[t] \\ \epsilon^{2} \left(a^{2} \cos[2 t\omega_{2}] \mathbf{X}_{4a} + a^{2} \mathbf{X}_{4m}\right) + \epsilon^{3} \mathbf{x}_{42}[t] \end{aligned}
```

```
\begin{aligned} &\mathsf{A} = \operatorname{Series}[\mathsf{Eq2}, \{\varepsilon, \mathbf{0}, 3\}]; \\ &\mathsf{EqL} = \operatorname{SeriesCoefficient}[\mathsf{A}, 1] \\ &\mathsf{EqNLQ} = \\ &\mathsf{Collect}[\operatorname{TrigReduce}[\operatorname{SeriesCoefficient}[\mathsf{A}, 2]], \{\operatorname{Cos}[\omega_2 t], \operatorname{Cos}[2 \omega_2 t]\}, \operatorname{Simplify}] \\ &\mathsf{EqNLC} = \operatorname{Collect}[\operatorname{TrigReduce}[\operatorname{SeriesCoefficient}[\mathsf{A}, 3]], \\ &\{\operatorname{Cos}[\omega_2 t], \operatorname{Cos}[3 \omega_2 t]\}, \operatorname{Simplify}] \\ &\mathsf{0} \\ &\frac{1}{2} a^2 \operatorname{Cos}[2 t \omega_2] \left( \mathsf{s}_2 - (\mathsf{c}_2 + \mathsf{tt}_2 + 6 X_{2 a}) \, \omega_2^2 \right) + \frac{1}{2} a^2 \left( \mathsf{s}_2 + (\mathsf{c}_2 - \mathsf{tt}_2 + 2 X_{2 m}) \, \omega_2^2 \right) \\ &\frac{1}{4} a^3 \operatorname{Cos}[3 t \omega_2] \left( \mathsf{s}_2 + 4 \mathsf{s}_2 X_{2 a} + 2 \mathsf{i}_s X_{4 a} - \mathsf{C}_2 \, \omega_2^2 - \mathsf{T}_2 \, \omega_2^2 - 8 \mathsf{c}_2 X_{2 a} \, \omega_2^2 - \\ &10 \, \mathsf{tt}_2 \, \mathsf{X}_{2 a} \, \omega_2^2 - 4 \mathsf{i}_c \, \mathsf{X}_{4 a} \, \omega_2^2 - 8 \, \mathsf{i}_{\mathsf{t24}} \, \mathsf{X}_{4 a} \, \omega_2^2 - 2 \, \mathsf{i}_{\mathsf{t42}} \, \mathsf{X}_{4 a} \, \omega_2^2 \right) + \frac{1}{4} a^3 \operatorname{Cos}[\mathsf{t} \, \omega_2] \\ &\left( 3 \, \mathsf{S}_2 + 2 \, \mathsf{i}_s \, \mathsf{X}_{4 a} + 4 \, \mathsf{s}_2 \, (\mathsf{X}_{2 a} + 2 \, \mathsf{X}_{2 m}) + 4 \, \mathsf{i}_s \, \mathsf{X}_{4 m} + \mathsf{C}_2 \, \omega_2^2 - 3 \, \mathsf{T}_2 \, \omega_2^2 + 8 \, \mathsf{c}_2 \, \mathsf{X}_{2 a} \, \omega_2^2 - 10 \, \mathsf{tt}_2 \, \mathsf{X}_{2 a} \, \omega_2^2 + \\ &4 \, \mathsf{i}_c \, \mathsf{X}_{4 a} \, \omega_2^2 - 8 \, \mathsf{i}_{\mathsf{t24}} \, \mathsf{X}_{4 a} \, \omega_2^2 - 2 \, \mathsf{i}_{\mathsf{t42}} \, \mathsf{X}_{4 m} \, \omega_2^2 - 4 \, \mathsf{tt}_2 \, \mathsf{X}_{2 m} \, \omega_2^2 - 4 \, \mathsf{i}_{\mathsf{t42}} \, \mathsf{X}_{4 m} \, \omega_2^2 \right) + \omega_2^2 \, \mathsf{x}_{23} \, [\mathsf{t}] + \mathsf{x}_{23}'''[\mathsf{t}] \end{aligned} \right\}
```

## Résolution numérique : $\omega_{22}$ représente le décalage adimensionnée par $\omega_2$

```
X_{2a} = (s_2 - \omega_2^2 (c_2 + tt_2)) / (6 \omega_2^2);
X_{2m} = (-s_2 + \omega_2^2 (tt_2 - c_2)) / (2\omega_2^2);
 X_{4m} = (-s_4 + \omega_2^2 (tt_4 - c_4)) / (2 \omega_4^2);
X_{4a} = (-s_4 + \omega_2^2 (c_4 + tt_4)) / (2 (\omega_4^2 - 4 \omega_2^2));
  \sqrt{\frac{5}{\pi}}
             14
tt_2 = 9\sqrt{5}/(14\sqrt{Pi}); c_2 = 4/7\sqrt{5/Pi}; s_2 = -4/7\sqrt{5/Pi};
T_2 = -67 / (98 \text{Pi}); C_2 = -585 / (196 \text{Pi}); S_2 = -76 / (7 \text{Pi}); i_{t42} = 24 / (7 \sqrt{\text{Pi}});
i_{t24} = 15 / (14 \sqrt{Pi}); i_c = 75 / (14 \sqrt{Pi}); i_s = -24 / (7 \sqrt{Pi}); tt_4 = 15 / (7 \sqrt{Pi});
\mathbf{c}_{4}=-9\left/ \right. \left(7 \sqrt{\mathtt{Pi}}\right); \ \mathbf{s}_{4}=-24 \left/ \right. \left(7 \sqrt{\mathtt{Pi}}\right); \ \boldsymbol{\omega}_{2}=\sqrt{2 \times 1 \times 4}; \ \boldsymbol{\omega}_{4}=\sqrt{4 \times 3 \times 6}; \ \boldsymbol{\omega}_{4}=\sqrt{4 \times 3 \times 6};
\omega_{22} = \text{Simplify}[\text{Coefficient}[\text{EqNLC}, \cos[\omega_2 t]] / (2 \omega_2^2 a)]
\kappa = \omega_2 * \omega_{22}
              6347 a<sup>2</sup>
                 7840 π
                          6347 a²
              1960 \sqrt{2} \pi
                                                                                                                                  2369 a²
 \omega_{22 \text{ Ecoulement}} = --
                                                                                                                                  11760. л
  -0.0641221 a^{2}
```

```
ω<sub>22 surface</sub> = -389 a^2 / (735. Pi)
- 0.168466 a<sup>2</sup>
ω<sub>22 surface</sub> + ω<sub>22 Ecoulement</sub>
- 0.232588 a<sup>2</sup>
N[ω<sub>22</sub>]
- 0.257693 a<sup>2</sup>
N[x]
- 0.728866 a<sup>2</sup>
```

## Comparaison avec Tsamopoulos :

 $a_{\text{Tsamo}} = a_{\text{Chernova}} \sqrt{(2 n + 1)/4 \text{Pi}}$ 

```
\omega_{\text{Tsamol}} = -37559. / 29400 * a^2 * 5 / (8 Pi)

\omega_{\text{Tsamol}} / \omega_{22} * 1.

-0.254154 a^2

0.986266
```

## Annexe F

# Coefficients des matrices B et C de l'étude de stabilité

Les coefficients  $y_n$  respectent l'équation :

$$(\omega_2^2 - (n+\alpha)^2 \gamma^2 + 2i\lambda_2(n+\alpha)\gamma) y_n = \frac{1}{2} b(D_n^{\alpha}(y_{n-1}^r \cos\varphi - y_{n-1}^i \sin\varphi) + E_n^{\alpha}(y_{n+1}^r \cos\varphi + y_{n+1}^i \sin\varphi)) + \frac{1}{2} bi(D_n^{\alpha}(y_{n-1}^r \sin\varphi + y_{n-1}^i \cos\varphi) + E_n^{\alpha}(-y_{n+1}^r \sin\varphi + y_{n+1}^i \cos\varphi)),$$

avec :

$$D_n^{\ \alpha} = t_2(n-1+\alpha)^2 \gamma^2 + 2c_2\gamma(n-1+\alpha)\gamma - 2s_2 + t_2\gamma^2,$$
  
$$E_n^{\ \alpha} = t_2(n-1+\alpha)^2 \gamma^2 - 2c_2\gamma(n-1+\alpha)\gamma - 2s_2 + t_2\gamma^2.$$

Ce système d'équation peut s'écrire sous la forme :

$$\mathbf{B} Y = b \mathbf{C} Y,$$

avec :

$$Y = \begin{pmatrix} y_0^r \\ y_0^i \\ y_1^r \\ y_1^r \\ \dots \end{pmatrix},$$

$$B = \begin{pmatrix} B_0^r & -B_0^i & 0 & 0 & 0 & \cdots \\ B_0^i & B_0^r & 0 & 0 & 0 & \cdots \\ 0 & 0 & B_1^r & -B_1^i & 0 & \cdots \\ 0 & 0 & B_1^i & B_1^r & 0 & \cdots \\ \vdots & \vdots & 0 & \ddots & \ddots & \ddots \end{pmatrix}, \qquad B_n = \omega_2^2 - (n+\alpha)^2 \gamma^2 + 2i\lambda_2(n+\alpha)\gamma,$$

 $\operatorname{et}$ 

$$C = \begin{pmatrix} C_{1,1} & C_{1,2} & C_{1,3} & C_{1,4} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \cdots \\ C_{2,1} & C_{2,2} & C_{2,2} & C_{2,4} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \cdots \\ C_{3,1} & C_{3,2} & 0 & 0 & C_{3,5} & C_{3,6} & 0 & 0 & 0 & \cdots \\ C_{4,1} & C_{4,2} & 0 & 0 & C_{4,5} & C_{4,6} & 0 & 0 & 0 & \cdots \\ 0 & 0 & C_{5,3} & C_{5,4} & 0 & 0 & C_{5,7} & C_{5,8} & 0 & \cdots \\ 0 & 0 & C_{6,3} & C_{6,4} & 0 & 0 & C_{6,7} & C_{6,8} & 0 & \cdots \\ \vdots & \vdots & 0 & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \end{pmatrix},$$

avec :

$$C_{2n+1,2n-1} = \frac{1}{2} D_n^{\alpha} \cos \varphi \qquad C_{2n+1,2n+3} = \frac{1}{2} E_n^{\alpha} \cos \varphi C_{2n+1,2n} = -\frac{1}{2} D_n^{\alpha} \sin \varphi \qquad C_{2n+1,2n+4} = \frac{1}{2} E_n^{\alpha} \sin \varphi C_{2n+2,2n-1} = \frac{1}{2} D_n^{\alpha} \sin \varphi \qquad C_{2n+2,2n+3} = -\frac{1}{2} E_n^{\alpha} \sin \varphi C_{2n+2,2n} = \frac{1}{2} D_n^{\alpha} \cos \varphi \qquad C_{2n+2,2n+4} = \frac{1}{2} E_n^{\alpha} \cos \varphi$$

Les huit premiers coefficients de la matrice C dépendent de la valeur de  $\alpha$ . Pour  $\alpha = 0$ , la condition d'initialisation s'écrit  $y_{-1} = y_1^*$  et les coefficients s'écrivent :

$$C_{1,1} = C_{1,2} = C_{2,1} = C_{2,2} = 0,$$
  

$$C_{1,3} = \frac{1}{2} (D_0^0 + E_0^0) \cos \varphi \qquad C_{2,3} = \frac{1}{2} (D_0^0 - E_0^0) \sin \varphi,$$
  

$$C_{1,4} = \frac{1}{2} (D_0^0 + E_0^0) \sin \varphi \qquad C_{2,4} = \frac{1}{2} (-D_0^0 - E_0^0) \cos \varphi.$$

Pour  $\alpha = \frac{1}{2}$ , la condition d'initialisation s'exprime  $y_{-1} = y_0^*$  et les coefficients sont donnés par :

$$C_{1,1} = \frac{1}{2} D_0^{\alpha} \cos \varphi \qquad C_{1,2} = \frac{1}{2} D_0^{\alpha} \sin \varphi,$$
  

$$C_{2,1} = \frac{1}{2} D_0^{\alpha} \sin \varphi \qquad C_{2,2} = -\frac{1}{2} D_0^{\alpha} \cos \varphi,$$
  

$$C_{1,3} = \frac{1}{2} E_0^{\alpha} \cos \varphi \qquad C_{1,4} = \frac{1}{2} E_0^{\alpha} \sin \varphi,$$
  

$$C_{2,3} = -\frac{1}{2} E_0^{\alpha} \sin \varphi \qquad C_{2,4} = \frac{1}{2} E_0^{\alpha} \cos \varphi.$$

## Bibliographie

- D. R. Reyes, D. Iossifidis, P.-A. Auroux et A. Manz. Micro Total Analysis Systems. 1. Introduction, Theory, and Technology. *Analytical Chemistry*, 74(12): 2623–2636, 2002.
- [2] S. C. Terry, J. H. Jerman et J. B. Angell. A Gas Chromatographic Air Analyzer Fabricated. *IEEE Transactions on Electron Devices*, 26(12): 1880–1886, 1979.
- [3] A. Manz, D. J. Harrison, E. M. J. Verpoorte, J. C. Fettinger, A. Paulus, H. Li et H. M. Widmer. Planar chips technology for miniaturization and integration of separation techniques into monitoring systems Capillary electrophoresis on a chip. *Journal of Chromatography*, 593 : 253–258, 1992.
- [4] G. M. Whitesides. The origins and the future of microfluidics. Nature, 442(7101): 368–73, 2006.
- [5] A. Manz, N. Graber et H. Widmer. Miniaturized Total Chemical Analysis Systems : a Novel Concept for Chemical Sensing. Sensors and Actuators, B1 : 244–248, 1990.
- [6] D. Mark, S. Haeberle, G. Roth, F. von Stetten et R. Zengerle. Microfluidic lab-on-a-chip platforms : requirements, characteristics and applications. *Chemical Society reviews*, **39** (3) : 1153–82, 2010.
- [7] L. Rayleigh. On Waves Propagated along the Plane Surface of an Elastic Solid. Proceeding of the London Mathematical Society, 17(1): 4–11, 1885.
- [8] A. E. H. Love. Some problems of geodynamics. *Cambdrige University Press*, 1911.
- D. P. Morgan. History of saw devices. *IEEE International Frequency Control Symposium*, pages 439–460, 1998.
- [10] R. M. White et F. W. Voltmer. Direct Piezoelectric Coupling To Surface Elastic Waves. Applied Physics Letters, 7(12): 314, 1965.
- [11] S. Shiokawa, Y. Matsui et T. Ueda. Liquid Streaming and Droplet formation Caused by Leaky Rayleigh Waves. Ultrasonics Symposium, pages 643–646, 1989.

- [12] R. Moroney, R. White et R. Howe. Fluid motion produced by ultrasonic Lamb waves. *IEEE Symposium on Ultrasonics*, pages 355–358, 1990.
- [13] M. Kurosawa, T. Watanabe et P. M. Engineering. Surface Acoustic Wave Atomizer with Pumping Effect. *IEEE 8th International Workshop on MEMS*, pages 25–30, 1995.
- [14] A. Wixforth, C. Gauer, M. Wassermeier et R. Kirchner. Flat fluidics : a new route toward programmable biochips. *Proceeding SPIE : Microfluidics, BioMEMS, and Medical Microsystems*, 4932 : 235–242, 2003.
- [15] K. Länge, B. E. Rapp et M. Rapp. Surface acoustic wave biosensors : a review. Analytical and bioanalytical chemistry, 391(5) : 1509–19, 2008.
- [16] D. Beyssen, L. Le Brizoual, O. Elmazria et P. Alnot. Microfluidic device based on surface acoustic wave. Sensors and Actuators B : Chemical, 118(1-2) : 380–385, 2006.
- T. a. Franke et A. Wixforth. Microfluidics for miniaturized laboratories on a chip. Chemphyschem : a European journal of chemical physics and physical chemistry, 9(15): 2140–56, 2008.
- [18] T. Dung Luong et N. Trung Nguyen. Surface Acoustic Wave Driven Microfluidics A Review. Micro and Nanosystems, 2(3): 217–225, 2010.
- [19] J. Friend et L. Yeo. Microscale acoustofluidics : Microfluidics driven via acoustics and ultrasonics. *Reviews of Modern Physics*, 83(2) : 647–704, 2011.
- [20] X. Ding, P. Li, S.-C. S. Lin, Z. S. Stratton, N. Nama, F. Guo, D. Slotcavage, X. Mao, J. Shi, F. Costanzo et T. J. Huang. Surface acoustic wave microfluidics. *Lab on a chip*, 13(18): 3626–49, 2013.
- [21] L. Y. Yeo et J. R. Friend. Surface Acoustic Wave Microfluidics. Annual Review of Fluid Mechanics, 46(1): 379–406, 2014.
- [22] K. Sritharan, C. J. Strobl, M. F. Schneider, a. Wixforth et Z. Guttenberg. Acoustic mixing at low Reynold's numbers. *Applied Physics Letters*, 88(5): 054102, 2006.
- [23] W.-K. Tseng, J.-L. Lin, W.-C. Sung, S.-H. Chen et G.-B. Lee. Active micro-mixers using surface acoustic waves on Y-cut 128 LiNbO 3. *Journal of Micromechanics and Microen*gineering, 16(3): 539–548, 2006.
- [24] M. K. Tan, L. Y. Yeo et J. R. Friend. Rapid fluid flow and mixing induced in microchannels using surface acoustic waves. *EPL (Europhysics Letters)*, 87(4): 47003, 2009.
- [25] T.-D. Luong, V.-N. Phan et N.-T. Nguyen. High-throughput micromixers based on acoustic streaming induced by surface acoustic wave. *Microfluidics and Nanofluidics*, 10(3): 619–625, 2010.

- [26] M. Maezawa, H. Nomura et T. Kamakura. Liquid Mixing using Streaming in Frequency-Modulated Ultrasound Beams Radiated from SAW Devices. *Proceedind of 20th International Congresse on Acoustic*, pages 1–5, 2010.
- [27] Q. Zeng, F. Guo, L. Yao, H. Zhu, L. Zheng, Z. Guo, W. Liu, Y. Chen, S. Guo et X. Zhao. Milliseconds mixing in microfluidic channel using focused surface acoustic wave. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 160(1) : 1552–1556, 2011.
- [28] M. C. Jo et R. Guldiken. Dual surface acoustic wave-based active mixing in a microfluidic channel. Sensors and Actuators A : Physical, 196 : 1–7, 2013.
- [29] T. Saiki et Y. Utsumi. High-Efficiency Mixing Chip with Liquid Flow Actuators Operated by Surface Acoustic Waves. *Electronics and Communications in Japan*, **97**(1): 54–61, 2014.
- [30] A. Wixforth. Acoustically driven planar microfluidics. Superlattices and Microstructures, 33(5-6): 389–396, 2004.
- [31] R. Shilton, M. K. Tan, L. Y. Yeo et J. R. Friend. Particle concentration and mixing in microdrops driven by focused surface acoustic waves. *Journal of Applied Physics*, 104(1): 014910, 2008.
- [32] X. Y. Du, M. E. Swanwick, Y. Q. Fu, J. K. Luo, a. J. Flewitt, D. S. Lee, S. Maeng et W. I. Milne. Surface acoustic wave induced streaming and pumping in 128 Y-cut LiNbO 3 for microfluidic applications. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 19(3): 035016, 2009.
- [33] R. J. Shilton, L. Y. Yeo et J. R. Friend. Quantification of surface acoustic wave induced chaotic mixing-flows in microfluidic wells. Sensors and Actuators B : Chemical, 160(1): 1565–1572, 2011.
- [34] T. Frommelt, M. Kostur, M. Wenzel-Schäfer, P. Talkner, P. Hänggi et A. Wixforth. Microfluidic Mixing via Acoustically Driven Chaotic Advection. *Physical Review Letters*, 100(3): 034502, 2008.
- [35] A. Wixforth, C. Strobl, C. Gauer, A. Toegl, J. Scriba et Z. v Guttenberg. Acoustic manipulation of small droplets. *Analytical and bioanalytical chemistry*, 379(7-8): 982–91, 2004.
- [36] Z. Guttenberg, H. Muller, H. Habermüller, A. Geisbauer, J. Pipper, J. Felbel, M. Kielpinski, J. Scriba et A. Wixforth. Planar chip device for PCR and hybridization with surface acoustic wave pump. *Lab on a chip*, 5(3) : 308–17, 2005.

- [37] E. Galopin, A. Renaudin, V. Thomy, J. Camart, P. Tabourier et C. Druon. Enhanced protein capture by ultrafast SAW droplet micromixing. *Proceedings of the 10th International Conference on Miniaturized Systems for Chemistry and Life Sciences, MicroTAS2006*, pages 651–653, 2006.
- [38] W. F. Paxton, M. J. O'Hara, S. M. Peper, S. L. Petersen et J. W. Grate. Accelerated analyte uptake on single beads in microliter-scale batch separations using acoustic streaming : plutonium uptake by anion exchange for analysis by mass spectrometry. *Analytical chemistry*, 80(11) : 4070–7, 2008.
- [39] O. Ducloux, E. Galopin, F. Zoueshtiagh, A. Merlen et V. Thomy. Enhancement of biosensing performance in a droplet-based bioreactor by in situ microstreaming. *Biomicrofluidics*, 4(1): 11102, 2010.
- [40] R. Béland, A. Renaudin, A. Bourque-viens, J.-p. Cloarec, V. Aimez, Y. Chevolot, P. G. Charette, U. D. Sherbrooke, U. D. Lyon, N. D. Lyon et C. D. Lyon. Improved Microcalorimetry for Biosensing Through Accelerated Microfluific Mixing with Surface Acoustic Waves. In *Internaional Conference on Miniaturized for Chemistry and Life Sciences*, pages 206–208, 2011.
- [41] E. Galopin, M. Beaugeois, B. Pinchemel, J.-C. Camart, M. Bouazaoui et V. Thomy. SPR biosensing coupled to a digital microfluidic microstreaming system. *Biosensors & bioelectronics*, 23(5): 746–50, 2007.
- [42] A. Renaudin, V. Chabot, E. Grondin, V. Aimez et P. G. Charette. Integrated active mixing and biosensing using surface acoustic waves (SAW) and surface plasmon resonance (SPR) on a common substrate. *Lab on a chip*, **10**(1): 111–5, 2010.
- [43] N.-T. Nguyen, X. Huang et T. K. Chuan. MEMS-Micropumps : A Review. Journal of Fluids Engineering, 124(2) : 384, 2002.
- [44] J. K. Luo, Y. Q. Fu, Y. Li, X. Y. Du, a. J. Flewitt, a. J. Walton et W. I. Milne. Movingpart-free microfluidic systems for lab-on-a-chip. *Journal of Micromechanics and Microen*gineering, 19(5): 054001, 2009.
- [45] N.-T. Nguyen, A. H. Meng, J. Black et R. M. White. Integrated flow sensor for in situ measurement and control of acoustic streaming in flexural plate wave micropumps. Sensors and Actuators A : Physical, 79(2) : 115–121, 2000.
- [46] N. T. Nguyen et R. M. White. Acoustic streaming in micromachined flexural plate wave devices : numerical simulation and experimental verification. *IEEE transactions on ultra*sonics, ferroelectrics, and frequency control, 47(6) : 1463–71, 2000.

- [47] Z. Guttenberg, a. Rathgeber, S. Keller, J. R\u00e4dler, a. Wixforth, M. Kostur, M. Schindler et P. Talkner. Flow profiling of a surface-acoustic-wave nanopump. *Physical Review E*, 70(5): 056311, 2004.
- [48] G. Lindner, H. Faustmann, T. Fischer, S. Krempel, M. Münch, S. Rothballer et M. Schmitt. Acoustic Surface Wave Induced Propagation of Liquids in Open Channels. *IEEE Ultrasonics Symposium*, pages 2331–2334, 2007.
- [49] D. Fukuoka et Y. Utsumi. Fabrication of the cyclical fluid channel using the surface acoustic wave actuator and continuous fluid pumping in the cyclical fluid channel. *Microsystem Technologies*, 14(9-11) : 1395–1398, 2008.
- [50] S. M. Langelier, L. Y. Yeo et J. Friend. UV epoxy bonding for enhanced SAW transmission and microscale acoustofluidic integration. *Lab on a chip*, **12**(16) : 2970–6, 2012.
- [51] R. P. Hodgson, M. Tan, L. Yeo et J. Friend. Transmitting high power rf acoustic radiation via fluid couplants into superstrates for microfluidics. *Applied Physics Letters*, 94(2): 024102, 2009.
- [52] L. Schmid, A. Wixforth, D. a. Weitz et T. Franke. Novel surface acoustic wave (SAW)driven closed PDMS flow chamber. *Microfluidics and Nanofluidics*, **12**(1-4) : 229–235, 2011.
- [53] M. B. Dentry, J. R. Friend et L. Y. Yeo. Continuous flow actuation between external reservoirs in small-scale devices driven by surface acoustic waves. *Lab on a chip*, 14(4): 750–8, 2014.
- [54] M. F. Schneider, Z. Guttenberg, S. W. Schneider, K. Sritharan, V. M. Myles, U. Pamukci et A. Wixforth. An acoustically driven microliter flow chamber on a chip (muFCC) for cellcell and cell-surface interaction studies. *Chemphyschem : a European journal of chemical physics and physical chemistry*, 9(4) : 641–5, 2008.
- [55] A. Hartmann, M. Stamp, R. Kmeth, S. Buchegger, B. Stritzker, B. Saldamli, R. Burgkart, M. F. Schneider et A. Wixforth. A novel tool for dynamic cell adhesion studies - the De-Adhesion Number Investigator DANI. Lab on a chip, 14(3) : 542–6, 2013.
- [56] S. W. Schneider, S. Nuschele, a. Wixforth, C. Gorzelanny, a. Alexander-Katz, R. R. Netz et M. F. Schneider. Shear-induced unfolding triggers adhesion of von Willebrand factor fibers. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 104(19): 7899–903, 2007.
- [57] S. Girardo, M. Cecchini, F. Beltram, R. Cingolani et D. Pisignano. Polydimethylsiloxane-LiNbO3 surface acoustic wave micropump devices for fluid control into microchannels. *Lab on a chip*, 8(9) : 1557–63, 2008.

- [58] L. Masini, M. Cecchini, S. Girardo, R. Cingolani, D. Pisignano et F. Beltram. Surface-acoustic-wave counterflow micropumps for on-chip liquid motion control in twodimensional microchannel arrays. *Lab on a chip*, **10**(15) : 1997–2000, 2010.
- [59] A. R. Rezk, A. Qi, J. R. Friend, W. H. Li et L. Y. Yeo. Uniform mixing in paper-based microfluidic systems using surface acoustic waves. *Lab on a chip*, 12(4): 773–9, 2012.
- [60] H. Li, J. Friend et L. Yeo. Microfluidic Colloidal Island Formation and Erasure Induced by Surface Acoustic Wave Radiation. *Physical Review Letters*, **101**(8): 084502, 2008.
- [61] H. Li, J. R. Friend et L. Y. Yeo. Surface acoustic wave concentration of particle and bioparticle suspensions. *Biomedical microdevices*, 9(5): 647–56, 2007.
- [62] R. V. Raghavan, J. R. Friend et L. Y. Yeo. Particle concentration via acoustically driven microcentrifugation : microPIV flow visualization and numerical modelling studies. *Microfluidics and Nanofluidics*, 8(1) : 73–84, 2009.
- [63] R. Wilson, J. Reboud, Y. Bourquin, S. L. Neale, Y. Zhang et J. M. Cooper. Phononic crystal structures for acoustically driven microfluidic manipulations. *Lab on a chip*, **11** (2): 323–8, 2011.
- [64] R. Shilton, M. K. Tan, L. Y. Yeo et J. R. Friend. Particle concentration and mixing in microdrops driven by focused surface acoustic waves. *Journal of Applied Physics*, 104(1): 014910, 2008.
- [65] P. R. Rogers, J. R. Friend et L. Y. Yeo. Exploitation of surface acoustic waves to drive size-dependent microparticle concentration within a droplet. *Lab on a chip*, 10(21) : 2979–85, 2010.
- [66] A. Zhang, W. Liu, Z. Jiang et J. Fei. Rapid concentration of particle and bioparticle suspension based on surface acoustic wave. *Applied Acoustics*, 70(8): 1137–1142, 2009.
- [67] T. Franke, A. R. Abate, D. a. Weitz et A. Wixforth. Surface acoustic wave (SAW) directed droplet flow in microfluidics for PDMS devices. *Lab on a chip*, 9(18) : 2625–7, 2009.
- [68] T. Franke, S. Braunmüller, L. Schmid, a. Wixforth et D. a. Weitz. Surface acoustic wave actuated cell sorting (SAWACS). *Lab on a chip*, 10(6): 789–94, 2010.
- [69] S.-C. S. Lin, X. Mao et T. J. Huang. Surface acoustic wave (SAW) acoustophoresis : now and beyond. Lab on a chip, 12(16) : 2766–70, 2012.
- [70] N. D. Orloff, J. R. Dennis, M. Cecchini, E. Schonbrun, E. Rocas, Y. Wang, D. Novotny, R. W. Simmonds, J. Moreland, I. Takeuchi et J. C. Booth. Manipulating particle trajectories with phase-control in surface acoustic wave microfluidics. *Biomicrofluidics*, 5(4): 44107–441079, 2011.

- [71] J. Shi, X. Mao, D. Ahmed, A. Colletti et T. J. Huang. Focusing microparticles in a microfluidic channel with standing surface acoustic waves (SSAW). Lab on a chip, 8(2): 221–223, 2008.
- [72] L. Meng, F. Cai, Z. Zhang, L. Niu, Q. Jin, F. Yan, J. Wu, Z. Wang et H. Zheng. Transportation of single cell and microbubbles by phase-shift introduced to standing leaky surface acoustic waves. *Biomicrofluidics*, 5(4): 044104, 2011.
- [73] L. Johansson, J. Enlund, S. Johansson, I. Katardjiev et V. Yantchev. Surface acoustic wave induced particle manipulation in a PDMS channel–principle concepts for continuous flow applications. *Biomedical microdevices*, 14(2): 279–89, 2012.
- [74] J. Shi, H. Huang, Z. Stratton, Y. Huang et T. J. Huang. Continuous particle separation in a microfluidic channel via standing surface acoustic waves (SSAW). Lab on a chip, 9 (23): 3354–9, 2009.
- [75] J. Nam, H. Lim, C. Kim, J. Yoon Kang et S. Shin. Density-dependent separation of encapsulated cells in a microfluidic channel by using a standing surface acoustic wave. *Biomicrofluidics*, 6(2): 24120–2412010, 2012.
- [76] M. C. Jo et R. Guldiken. Acoustic Microfluidic Platform for Size and Density-Based Cell Separation. In Ultrasonics Symposium (IUS), 2011 IEEE International, pages 204–207, 2011.
- [77] Y. Ai, C. K. Sanders et B. L. Marrone. Separation of Escherichia coli Bacteria from Peripheral Blood Mononuclear Cells Using Standing Surface Acoustic Waves. Analytical chemistry, 85(19): 9126–9134, 2013.
- [78] X. Ding, S.-C. S. Lin, M. I. Lapsley, S. Li, X. Guo, C. Y. Chan, I.-K. Chiang, L. Wang, J. P. McCoy et T. J. Huang. Standing surface acoustic wave (SSAW) based multichannel cell sorting. *Lab on a chip*, **12**(21) : 4228–31, 2012.
- [79] J. Shi, D. Ahmed, X. Mao, S.-C. S. Lin, A. Lawit et T. J. Huang. Acoustic tweezers : patterning cells and microparticles using standing surface acoustic waves (SSAW). *Lab* on a chip, 9(20) : 2890–5, 2009.
- [80] C. D. Wood, J. E. Cunningham, R. O Rorke, C. Walti, E. H. Linfield, a. G. Davies et S. D. Evans. Formation and manipulation of two-dimensional arrays of micron-scale particles in microfluidic systems by surface acoustic waves. *Applied Physics Letters*, 94(5): 054101, 2009.
- [81] S. B. Q. Tran, P. Marmottant et P. Thibault. Fast acoustic tweezers for the twodimensional manipulation of individual particles in microfluidic channels. *Applied Physics Letters*, **101**(11) : 114103, 2012.

- [82] X. Ding, S.-C. S. Lin, B. Kiraly, H. Yue, S. Li, I.-K. Chiang, J. Shi, S. J. Benkovic et T. J. Huang. On-chip manipulation of single microparticles, cells, and organisms using surface acoustic waves. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 109(28) : 11105–9, 2012.
- [83] J. Bennès, S. Alzuaga, S. Ballandras, F. Chérioux, F. Bastien et J. Manceau. Droplet ejector using surface acoustic waves. *IEEE International Ultrasonics*, pages 823–826, 2005.
- [84] M. Tan, J. Friend et L. Yeo. Interfacial Jetting Phenomena Induced by Focused Surface Vibrations. *Physical Review Letters*, 103(2): 024501, 2009.
- [85] P. K. Bhattacharjee, a. G. McDonnell, R. Prabhakar, L. Y. Yeo et J. Friend. Extensional flow of low-viscosity fluids in capillary bridges formed by pulsed surface acoustic wave jetting. *New Journal of Physics*, 13(2): 023005, 2011.
- [86] A. Qi, L. Y. Yeo et J. R. Friend. Interfacial destabilization and atomization driven by surface acoustic waves. *Physics of Fluids*, 20(7): 074103, 2008.
- [87] K. Chono, N. Shimizu, Y. Matsui, J. Kondoh et S. Shiokawa. Development of Novel Atomization System Based on SAW Streaming. *Japanese Journal of Applied Physics*, 43 (5B): 2987–2991, 2004.
- [88] J. R. Friend, L. Y. Yeo, D. R. Arifin et A. Mechler. Evaporative self-assembly assisted synthesis of polymeric nanoparticles by surface acoustic wave atomization. *Nanotechnology*, 19(14): 145301, 2008.
- [89] S. R. Heron, R. Wilson, S. a. Shaffer, D. R. Goodlett et J. M. Cooper. Surface acoustic wave nebulization of peptides as a microfluidic interface for mass spectrometry. *Analytical chemistry*, 82(10): 3985–9, 2010.
- [90] J. Ho, M. K. Tan, D. B. Go, L. Y. Yeo, J. R. Friend et H.-C. Chang. Paper-based microfluidic surface acoustic wave sample delivery and ionization source for rapid and sensitive ambient mass spectrometry. *Analytical chemistry*, 83(9): 3260–6, 2011.
- [91] M. Alvarez, L. Y. Yeo, J. R. Friend et M. Jamriska. Rapid production of protein-loaded biodegradable microparticles using surface acoustic waves. *Biomicrofluidics*, 3(1): 14102, 2009.
- [92] A. Qi, J. R. Friend, L. Y. Yeo, D. a. V. Morton, M. P. McIntosh et L. Spiccia. Miniature inhalation therapy platform using surface acoustic wave microfluidic atomization. *Lab on* a chip, 9(15): 2184–93, 2009.

- [93] A. Qi, L. Yeo, J. Friend et J. Ho. The extraction of liquid, protein molecules and yeast cells from paper through surface acoustic wave atomization. *Lab on a chip*, 10(4): 470–6, 2010.
- [94] N. Shimizu, J. Kondoh et Y. Matsui. Localized Heating Effects of Liquid Based on SAW Streaming. *IEEE International Ultrasonics*, 3: 2235–2238, 2004.
- [95] D. Beyssen, L. L. Brizoual, O. Elmazria, P. Alnot, I. Perry et D. Maillet. Droplet Heating System Based on SAW/Liquid Interaction. *IEEE Ultrasonics Symposium*, pages 945–948, 2006.
- [96] J. Kondoh, N. Shimizu, Y. Matsui, M. Sugimoto et S. Shiokawa. Development of temperature-control system for liquid droplet using surface Acoustic wave devices. *Sensors* and Actuators A : Physical, 149(2) : 292–297, 2009.
- [97] T. Roux-Marchand, D. Beyssen, F. Sarry, S. Grandemange et O. Elmazria. Microfluidic heater assisted by Rayleigh Surface Acoustic Wave on AlN/128 Y-X LiNbO3 multilayer structure. 2012 IEEE International Ultrasonics Symposium, pages 1706–1709, 2012.
- [98] K. Kulkarni, J. Friend, L. Yeo et P. Perlmutter. Surface acoustic waves as an energy source for drop scale synthetic chemistry. Lab on a chip, 9(6): 754–5, 2009.
- [99] T. Roux-marchand. Système microfluidique à onde élastique de surface : Vers la duplication d'ADN par PCR, 2013.
- [100] C. Strobl, Z. von Guttenberg et a. Wixforth. Nano- and pico-dispensing of fluids on planar substrates using SAW. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control*, **51**(11) : 1432–1436, 2004.
- [101] Z. Guttenberg, H. Muller, H. Habermüller, A. Geisbauer, J. Pipper, J. Felbel, M. Kielpinski, J. Scriba et A. Wixforth. Planar chip device for PCR and hybridization with surface acoustic wave pump. *Lab on a chip*, 5(3) : 308–17, 2005.
- [102] H. Li, J. R. Friend et L. Y. Yeo. A scaffold cell seeding method driven by surface acoustic waves. *Biomaterials*, 28(28): 4098–104, 2007.
- [103] M. Bok, H. Li, L. Y. Yeo et J. R. Friend. The dynamics of surface acoustic wave-driven scaffold cell seeding. *Biotechnology and bioengineering*, 103(2): 387–401, 2009.
- [104] M. K. Tan, J. R. Friend et L. Y. Yeo. Microparticle collection and concentration via a miniature surface acoustic wave device. *Lab on a chip*, 7(5): 618–25, 2007.
- [105] P. Brunet, M. Baudoin, O. B. Matar et F. Zoueshtiagh. Droplet displacements and oscillations induced by ultrasonic surface acoustic waves : A quantitative study. *Physical Review E*, 81(3) : 036315, 2010.

- [106] S. Alzuaga, J.-F. Manceau et F. Bastien. Motion of droplets on solid surface using acoustic radiation pressure. *Journal of Sound and Vibration*, 282(1-2): 151–162, 2005.
- [107] M. Baudoin, P. Brunet, O. Bou Matar et E. Herth. Low power sessile droplets actuation via modulated surface acoustic waves. Applied Physics Letters, 100(15): 154102, 2012.
- [108] T.-T. Wu et I.-H. Chang. Actuating and detecting of microdroplet using slanted finger interdigital transducers. *Journal of Applied Physics*, 98(2): 024903, 2005.
- [109] A. Renaudin, P. Tabourier, V. Zhang, J. Camart et C. Druon. SAW nanopump for handling droplets in view of biological applications. Sensors and Actuators B : Chemical, 113(1): 389–397, 2006.
- [110] J. Bennès, S. Ballandras, P. Vairac, J.-f. Manceau et F. Bastien. Detection and High-Precision Positioning of Liquid Droplets Using SAW Systems. *IEEE International Ultra*sonics, 54(10): 2146–2151, 2007.
- [111] A. Renaudin, J.-P. Sozanski, B. Verbeke, V. Zhang, P. Tabourier et C. Druon. Monitoring SAW-actuated microdroplets in view of biological applications. Sensors and Actuators B : Chemical, 138(1): 374–382, 2009.
- [112] A. Bussonnière, Y. Miron, M. Baudoin, O. Bou Matar, M. Grandbois, P. Charette et A. Renaudin. Cell detachment and label-free cell sorting using modulated surface acoustic waves (SAWs) in droplet-based microfluidics. *Lab on a chip*, 14(18) : 3556–63, 2014.
- [113] D. Royer et E. Dieulesaint. Ondes élastiques dans les solides Tome 1. Masson, 1996.
- [114] C. Zimmermann. Conception, Réalisation et Etude de Micro-capteur à ondes de Love pour Applications en Milieu Gazeux. Cas de la Détection de Composés Organophosphores. Thèse de doctorat, Université Bordeaux 1, 2002.
- [115] G. Lindner. Sensors and actuators based on surface acoustic waves propagating along solid liquid interfaces. Journal of Physics D: Applied Physics, 41(12): 123002, 2008.
- [116] D. Ballantine, S. Martin, A. Ricco, G. Frye, H. Wohltjen, R. White et E. Zellers. Acoustic Wave Sensors. *Elsevier*, 1997.
- [117] R. M. White et S. W. Wenzel. Fluid loading of a Lamb-wave sensor. Applied Physics Letters, 52(20): 1653, 1988.
- [118] R. P. Hodgson, M. Tan, L. Yeo et J. Friend. Transmitting high power rf acoustic radiation via fluid couplants into superstrates for microfluidics. *Applied Physics Letters*, 94(2): 024102, 2009.
- [119] W. Liang et G. Lindner. Investigations of droplet movement excited by Lamb waves on a non-piezoelectric substrate. *Journal of Applied Physics*, **114**(4): 044501, 2013.

- [120] D. Royer et E. Dieulesaint. Ondes élastiques dans les solides Tome 2. Masson, 1996.
- [121] C. Hartmann et B. Abbott. Overview of design challenges for single phase unidirectional SAW filters. *Proceedings IEEE Ultrasonics Symposium*, pages 79–89, 1989.
- [122] E. Pitts, J. Plona et W. G. Mayer. Theoretical similarities of Rayleigh and Lamb modes of vibration. Journal of Acoustical Society of America, 60(2): 374–377, 1976.
- [123] J. Vanneste et O. Bühler. Streaming by leaky surface acoustic waves. Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 467 : 1779–1800, 2011.
- [124] R. Stoneley. Elastic Waves at the Surface of Separation of Two Solids. Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 106(738): 416–428, 1924.
- [125] I. A. Viktorov. Rayleigh and Lamb waves : physical theory and applications, volume 147. Plenum press New York, 1967.
- [126] N. G. Brower, D. E. Himberger et G. Mayer. Restrictions on the Existence of Leaky Rayleigh Waves. *IEEE*, 263(4): 306–308, 1979.
- [127] K. Dransfeld et E. Salzmann. 4 Excitation, Detection, and Attenuation of High Frequency Elastic Surface Waves. In *Physical Acoustics*, volume 7, pages 219–272. Elsevier B.V., 1970.
- [128] J. D. N. Cheeke et P. Morisseau. Attenuation of Rayleigh Waves on a LiNbO3 Crystal in Contact with a Liquid He Bath. *Journal of Low Temperature Physics*, 46, 1982.
- [129] J. C. a. Sluijs et M. J. Sluijs. Damping of loaded Rayleigh waves on lightly loaded interfaces : Application to the Kapitza conductance. *Journal of Low Temperature Physics*, 44(3-4) : 223–245, 1981.
- [130] J. Campbell et W. Jones. Propagation of Surface Waves at the Boundary Between a Piezoelectric Crystal and a Fluid Medium. *IEEE Transactions on Sonics and Ultrasonics*, 17(2): 71–76, 1970.
- [131] Z. J. Jiao, X. Y. Huang et N.-T. Nguyen. Scattering and attenuation of surface acoustic waves in droplet actuation. *Journal of Physics A : Mathematical and Theoretical*, 41 : 355502, 2008.
- [132] M. de Billy et G. Quentin. Experimental study of the Scholte wave propagation on a plane surface partially immersed in a liquid. *Journal of Applied Physics*, 54(8): 4314, 1983.
- [133] R. Quintero et F. Simonetti. Rayleigh wave scattering from sessile droplets. *Physical Review E*, 88(4): 043011, 2013.

- [134] M. Gedge et M. Hill. Acoustofluidics 17 : Theory and applications of surface acoustic wave devices for particle manipulation. Lab on a Chip, 12 : 2998–3007, 2012.
- [135] A.-e.-n. N. Abd-alla et N. a. Askar. Calculation of Bulk Acoustic Wave Propagation Velocities in Trigonal Piezoelectric Smart Materials. Applied Mathematics & Information Sciences, 8(4): 1625–1632, 2014.
- [136] M. R. Schroeder. The Schroeder frequency revisited. The Journal of the Acoustical Society of America, 99(5): 3240–3241, 1996.
- [137] J. L. Flanagan. Acoustic Modes of a Hemispherical Room. The Journal of the Acoustical Society of America, 37(4): 616–618, 1965.
- [138] H. Kuttruff. Room Acoustics. Spon Press, fifth edition, 2009.
- [139] C. Eckart. Vortices and Streams Caused by Sound Waves. Physical Review, 73(1): 68–76, 1948.
- [140] F. Jacobsen. The diffuse sound field. Lyngby, 1979.
- [141] A. D. Pierce. Acoustics : an introduction to its physical principles and applications. McGraw-Hill New York, 1981.
- [142] F. Coulouvrat. On the equations of nonlinear acoustics. J. Acoustique, 5: 321–359, 1992.
- [143] M. F. Hamilton et C. L. Morfey. Nonlinear Acoustics. Acoustical Society of America, 2008.
- [144] S. I. Aanonsen, T. Barkve, J. Naze Tjotta et S. Tjotta. Distortionand harmonic generation in the near field of a finite amplitude sound beam. *Journal of Acoustical Society of America*, 75 : 749–768, 1984.
- [145] P. J. Westervelt. Parametric Acoustic Array. The Journal of the Acoustical Society of America, 35(4): 535–537, 1963.
- [146] R. T. Beyer. Nonlinear Acoustics. American Institut of Physics, 1974.
- [147] R. T. Beyer. Radiation pressure the history of a mislabeled tensor. The Journal of the Acoustical Society of America, 63(4): 1025, 1978.
- [148] B.-t. Chu et R. E. Apfel. Acoustic radiation pressure produced by a beam of sound. Journal of Acoustical Society of America, 72(6): 1673–1687, 1982.
- [149] M. Rénier, C. Barrière et D. Royer. Optical measurements of the self-demodulated displacement and its interpretation in terms of radiation pressure. The Journal of the Acoustical Society of America, 121(6): 3341–8, 2007.

- [150] P. Biquard. Les ondes ultrasonores. Revue d'acoustique, 1, 1932.
- [151] L. Rayleigh. On the pressure of vibrations. *Philosophical Magazine Series*, 6: 338–346, 1902.
- [152] L. Brillouin. Les tensions de radiations : leur interprétation en mécanique classique et en relativité. Le journal de Physique, 6(11) : 337–353, 1925.
- [153] K. Beissner. Two concepts of acoustic radiation pressure. Journal of Acoustical Society of America, 79(5): 1610–1611, 1986.
- [154] B. M. E. Mcintyre. On the 'wave momentum' myth. Journal of Fluid Mechanics, 106 : 331–347, 1981.
- [155] D. Baresch. Piégeage et manipulation d'un objet par pression de radiation d'une onde progressive. Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie, 2014.
- [156] F. Borgnis. Acoustic Radiation Pressure of Plane-Compressional Waves at Oblique Incidence. Journal of Acoustical Society of America, 24(5): 468–469, 1952.
- [157] E. M. Herrey. Experimental Studies on Acoustic Radiation Pressure. Journal of Acoustical Society of America, 27(5): 891–896, 1955.
- [158] M. Faraday. On a Peculiar Class of Acoustical Figures; and on certain Forms assumed by groups of particles upon vibrating elastic Surfaces. *Philosophical Transactions Royal Society London*, **121**(1831) : 299–340, 1831.
- [159] L. Rayleigh. On the Circulation of Air observed in Kundt's Tubes, and on some Allied Acoustical Problems. *Philosophical Transactions Royal Society London*, **175**: 1–21, 1883.
- [160] H. Medwin et R. Isadore. Surface and Volume Sources of Vorticity in Acoustic Fields. The Journal of the Acoustical Society of America, 25(3): 538–540, 1953.
- [161] H. Schlichting. Boundary-Layer Theory. McGraw-Hill, 1968.
- [162] P. B. Muller, M. Rossi, A. G. Marín, R. Barnkob, P. Augustsson, T. Laurell, C. J. Kähler et H. Bruus. Ultrasound-induced acoustophoretic motion of microparticles in three dimensions. *Physical Review E*, 88(2) : 023006, 2013.
- [163] O. Manor, L. Y. Yeo et J. R. Friend. The appearance of boundary layers and drift flows due to high-frequency surface waves. *Journal of Fluid Mechanics*, 707 : 482–495, 2012.
- [164] M. Wiklund, R. Green et M. Ohlin. Acoustofluidics 14 : Applications of acoustic streaming in microfluidic devices. *Lab on a chip*, **12**(14) : 2438–51, 2012.
- [165] W. L. Nyborg. Acoustic Streaming due to Attenuated Plane Waves. The Journal of the Acoustical Society of America, 25(1): 68–75, 1953.
- [166] S. J. Lighthill. Acoustic Streaming. Journal of Sound and Vibration, 61(April): 391–418, 1978.
- [167] T. Moriizumi, T. Nakamoto et T. Kikuchi. Selection of piezoelectric materials used for interdigital transducer in water. *Trans. IEICE*, 65, 1982.
- [168] S. K. R. S. Sankaranarayanan, S. Cular, V. R. Bhethanabotla et B. Joseph. Flow induced by acoustic streaming on surface-acoustic-wave devices and its application in biofouling removal : A computational study and comparisons to experiment. *Physical Review E*, 77 (6) : 1–19, 2008.
- [169] M. Alghane, B. X. Chen, Y. Q. Fu, Y. Li, M. P. Y. Desmulliez, M. I. Mohammed et a. J. Walton. Nonlinear hydrodynamic effects induced by Rayleigh surface acoustic wave in sessile droplets. *Physical Review E*, 86(5): 056304, 2012.
- [170] M. Schindler, P. Talkner et P. Hanggi. Computing stationary free-surface shapes in microfluidics. *Physics of Fluids*, 18, 2006.
- [171] G. G. Stokes. On the theory of oscillatory waves. Transactions of the Cambridge Philosophical Society, 8: 441–455, 1847.
- [172] P. J. Westervelt. The Mean Pressure and Velocity in a Plane Acoustic Wave in a Gas. Journal of Acoustical Society of America, 23(3): 319–327, 1950.
- [173] J. T. Stuart. Double boundary layers in oscillatory viscous flow. Journal of Fluid Mechanics, 24(4): 673–687, 1966.
- [174] A. Marchand, J. H. Weijs, J. H. Snoeijer et B. Andreotti. Why is surface tension a force parallel to the interface? *American Journal of Physics*, **79**(10) : 999–1008, 2011.
- [175] S. H. Lamb. Hydrodynamics. Cambridge University Press, sixth edition, 1932.
- [176] L. Rayleigh. On the capillary phenomena of jets. Proceedings of the Royal Society of London, 29: 71–97, 1879.
- [177] T. Young. An Essay on the Cohesion of Fluids. Philosophical Transactions Royal Society London, 95: 65–87, 1805.
- [178] C. G. L. Furmidge. The Sliding of Liquid Drops on Solide Surfaces and a Theory Spray Retention. *Journal of colloid science*, 17: 309–324, 1962.
- [179] E. B. Dussan V. et R. T.-P. Chow. On the ability of drops or bubbles to stick to nonhorizontal surfaces of solids. *Journal of Fluid Mechanics*, 137 : 1–29, 1983.
- [180] A. Ulman. Formation and Structure of Self-Assembled Monolayers. Chemical Reviews, 96: 1533–1554, 1996.

- [181] C. Huh et L. Scriven. Hydrodynamic model of steady movement of a solid/liquid/fluid contact line. Journal of Colloid and Interface Science, 35(1): 85–101, 1971.
- [182] P. G. de Gennes. Wetting : Statics and Dynamics. Review of Modern Physics, 57 : 827–863, 1985.
- [183] J. H. Snoeijer et B. Andreotti. Moving Contact Lines : Scales, Regimes, and Dynamical Transitions. Annual Review of Fluid Mechanics, 45(1) : 269–292, 2013.
- [184] J. Blamey, L. Y. Yeo et J. R. Friend. Microscale capillary wave turbulence excited by high frequency vibration. Langmuir : the ACS journal of surfaces and colloids, 29(11) : 3835–45, 2013.
- [185] M. K. Tan, J. R. Friend, O. K. Matar et L. Y. Yeo. Capillary wave motion excited by high frequency surface acoustic waves. *Physics of Fluids*, 22(11) : 112112, 2010.
- [186] K. Miyamoto, S. Nagatomo, Y. Matsui et S. Shiokawa. Nonlinear Vibration of Liquid Droplet by Surface Acoustic Wave Excitation. Japanese Journal of Applied Physics, 41 (Part 1, No. 5B) : 3465–3468, 2002.
- [187] E. Trinh et T. G. Wang. Large-amplitude free and driven drop-shape oscillations : experimental observations. *Journal of Fluid Mechanics*, **122** : 315–338, 1982.
- [188] C. L. Shen, W. J. Xie et B. Wei. Parametrically excited sectorial oscillation of liquid drops floating in ultrasound. *Physical Review E*, 81(4): 046305, 2010.
- [189] M. Perez, L. Salvo, M. Suéry, Y. Bréchet et M. Papoular. Contactless viscosity measurement by oscillations of gas-levitated drops. *Physical Review E*, 61(3) : 2669–2675, 2000.
- [190] E. H. Trinh, R. G. Holt et D. B. Thiessen. The dynamics of ultrasonically levitated drops in an electric field. *Physics of Fluids*, 8(1): 43, 1996.
- [191] H. Azuma et S. Yoshihara. Three-dimensional large-amplitude drop oscillations : experiments and theoretical analysis. *Journal of Fluid Mechanics*, **393** : 309–332, 1999.
- [192] R. Tsamopoulos et R. A. Brown. Nonlinear oscillations of inviscid drops and bubbles. Journal of Fluid Mechanics, 127 : 519–537, 1983.
- [193] E. Becker, W. J. Hiller et T. a. Kowalewski. Experimental and theoretical investigation of large-amplitude oscillations of liquid droplets. *Journal of Fluid Mechanics*, 231 : 189–210, 1991.
- [194] W. Möhring et A. Knipfer. A model for nonlinear axisymmetric droplet vibrations. *Physica D*, 64 : 404–419, 1993.

- [195] R. Natarajan et R. a. Brown. Quadratic resonance in the three-dimensional oscillations of inviscid drops with surface tension. *Physics of Fluids*, **29**(9) : 2788, 1986.
- [196] R. Natarajan et R. a. Brown. Third-order resonance effects and the nonlinear stability of drop oscillations. *Journal of Fluid Mechanics*, 183: 95–121, 1987.
- [197] Prosperetti. Free oscillations of drops and bubbles : the initial-value problem. Journal of Fluid Mechanics, 100(2) : 333–347, 1980.
- [198] G. K. Batchelor. An Introduction to Fluid Dynamics. Cambridge University Press, 1967.
- [199] W. Smith. Modulation equations for strongly nonlinear oscillations of an incompressible viscous drop. *Journal of Fluid Mechanics*, 654 : 141–159, 2010.
- [200] J. Q. Feng et K. V. Beard. Resonances of a conducting drop in an alternating electric field. *Journal of Fluid Mechanics*, **222** : 417–435, 1991.
- [201] M. O. Chernova et I. A. Lukovsky. Nonlinear Modal Equations for a Levitating Drop. Journal of Mathematical Sciences, 191(3): 390–406, 2013.
- [202] R. Salmon. Hamiltonian Fluid Mechanics. Annual Review of Fluid Mechanics, 20: 225–56, 1988.
- [203] R. L. Seliger et G. B. Whitham. Variational Principles in Continuum Mechanics. Proceedings of the Royal Society A, 305(1480): 1–25, 1968.
- [204] L. Antanovskii. Microscale theory of surface tension. Physical Review E, 54(6): 6285– 6290, 1996.
- [205] J. C. Luke. A variational principle for a fluid with a free surface. Journal of Fluid Mechanics, 27(2): 395–397, 1967.
- [206] T. S. Lundgren et N. N. Mansour. Oscillations of drops in zero gravity with weak viscous effects. Journal of Fluid Mechanics, 194 : 479–510, 1988.
- [207] E. Becker, W. J. Hiller et T. a. Kowalewski. Nonlinear dynamics of viscous droplets. Journal of Fluid Mechanics, 258 : 191–216, 1994.
- [208] A. H. Nayfeh et D. T. Book. Nonlinear Oscillations. Wiley Classics Library, 1979.
- [209] L. D. Landau et E. M. Lifshitz. Mechanics. Pergamon Press pic, third edition, 1976.
- [210] K. Kumar et L. S. Tuckerman. Parametric instability of the interface between two fluids. Journal of Fluid Mechanics, 279 : 49–68, 1994.
- [211] M. Strani et F. Sabetta. Free vibrations of a drop in partial contact with a solid support. Journal of Fluid Mechanics, 141: 233–247, 1984.

- [212] M. Strani et F. Sabetta. Viscous oscillations of a supported drop in an immiscible fluid. Journal of Fluid Mechanics, 189: 397–421, 1988.
- [213] T. Qian, X.-P. Wang et P. Sheng. A variational approach to moving contact line hydrodynamics. *Journal of Fluid Mechanics*, 564 : 333, 2006.
- [214] D. J. Collins, O. Manor, A. Winkler, H. Schmidt, J. R. Friend et L. Y. Yeo. Atomization off thin water films generated by high-frequency substrate wave vibrations. *Physical Review* E, 86(5): 056312, 2012.
- [215] W. T. Shi, R. E. Apfel et R. G. Holt. Instability of a deformed liquid drop in an acoustic field. *Physics of Fluids*, 7(11) : 2601, 1995.
- [216] F. Savart. Mémoire sur la constitution des veines liquides lancées par des orifices circulaires en mince paroi. Annales de Chimie et de Physique, 53 : 337–386, 1833.
- [217] J. Plateau. Recherches expérimentales et théorique sur les figures d'équilibre d'une masse liquide sans pesanteur. Mémoire de l'académie royale des sciences, des lettres et des beaux-arts de Belgique, 23 : 1–151, 1849.
- [218] H. Chraibi, D. Lasseux, R. Wunenburger, E. Arquis et J.-P. Delville. Optohydrodynamics of soft fluid interfaces : Optical and viscous nonlinear effects. *The European Physical Journal E*, **32** : 43–52, 2010.
- [219] A. Harding. Life science technologies : Sorting Cells for Medicine. Science, 332(6030) : 736–738, 2011.
- [220] D. Mattanovich et N. Borth. Applications of cell sorting in biotechnology. *Microbial cell factories*, 5: 12, 2006.
- [221] D. Ghesquier. La centrifugation et la cellule : La déconstruction du protoplasme entre 1880 et 1910 / Centrifugation and the cell : The deconstruction of protoplasm between 1880 and 1910. Revue d'histoire des sciences, 55(3) : 323–377, 2002.
- [222] A. Moldavan. Photo-Electric Technique for the Counting of Microscopical Cells. Science, 80(2069): 188–189, 1934.
- [223] W. a. Bonner. Fluorescence Activated Cell Sorting. Review of Scientific Instruments, 43 (3): 404, 1972.
- [224] S. Miltenyi, W. Müller, W. Weichel et a. Radbruch. High gradient magnetic cell separation with MACS. *Cytometry*, 11(2): 231–8, 1990.
- [225] A. Singh, S. Suri, T. Lee, J. M. Chilton, M. T. Cooke, W. Chen, J. Fu, S. L. Stice, H. Lu, T. C. McDevitt et A. J. García. Adhesion strength-based, label-free isolation of human pluripotent stem cells. *Nature methods*, **10**(5) : 438–44, 2013.

- [226] J. Autebert, B. Coudert, F.-C. Bidard, J.-Y. Pierga, S. Descroix, L. Malaquin et J.-L. Viovy. Microfluidic : an innovative tool for efficient cell sorting. *Methods (San Diego, Calif.)*, 57(3) : 297–307, 2012.
- [227] D. R. Gossett, W. M. Weaver, A. J. Mach, S. C. Hur, H. T. K. Tse, W. Lee, H. Amini et D. Di Carlo. Label-free cell separation and sorting in microfluidic systems. *Analytical* and bioanalytical chemistry, **397**(8): 3249–67, 2010.
- [228] M. Yamada et M. Seki. Hydrodynamic filtration for on-chip particle concentration and classification utilizing microfluidics. *Lab on a chip*, 5(11): 1233–9, 2005.
- [229] L. R. Huang, E. C. Cox, R. H. Austin et J. C. Sturm. Continuous particle separation through deterministic lateral displacement. *Science*, **304**(5673) : 987–90, 2004.
- [230] F. F. Becker, X. B. Wang, Y. Huang, R. Pethig, J. Vykoukal et P. R. Gascoyne. Separation of human breast cancer cells from blood by differential dielectric affinity. *Proceedings of* the National Academy of Sciences of the United States of America, 92(3): 860–4, 1995.
- [231] M. D. Vahey et J. Voldman. An equilibrium method for continuous-flow cell sorting using dielectrophoresis. Analytical chemistry, 80(9): 3135–43, 2008.
- [232] K. D. MM. P. MacDonald, G. C. Spalding. Microfluidic sorting in an optical lattice. *Nature Biotechnology*, 426(1): 421–424, 2003.
- [233] A. Jonás et P. Zemánek. Light at work : the use of optical forces for particle manipulation, sorting, and analysis. *Electrophoresis*, 29(24) : 4813–51, 2008.
- [234] R. Carlson, C. Gabel, S. Chan, R. Austin, J. Brody et J. Winkelman. Self-Sorting of White Blood Cells in a Lattice. *Physical Review Letters*, **79**(11) : 2149–2152, 1997.
- [235] G. Wang, W. Mao, R. Byler, K. Patel, C. Henegar, A. Alexeev et T. Sulchek. Stiffness Dependent Separation of Cells in a Microfluidic Device. *PLoS ONE*, 8(10): e75901, 2013.
- [236] T. Laurell, F. Petersson et A. Nilsson. Chip integrated strategies for acoustic separation and manipulation of cells and particles. *Chemical Society reviews*, 36(3): 492–506, 2007.
- [237] A. Sin, S. K. Murthy, A. Revzin, R. G. Tompkins et M. Toner. Enrichment using antibodycoated microfluidic chambers in shear flow : model mixtures of human lymphocytes. *Bio*technology and bioengineering, 91(7) : 816–26, 2005.
- [238] K. W. Kwon, S. S. Choi, S. H. Lee, B. Kim, S. N. Lee, M. C. Park, P. Kim, S. Y. Hwang et K. Y. Suh. Label-free, microfluidic separation and enrichment of human breast cancer cells by adhesion difference. *Lab on a chip*, 7(11) : 1461–8, 2007.
- [239] T. F. Didar et M. Tabrizian. Adhesion based detection, sorting and enrichment of cells in microfluidic Lab-on-Chip devices. *Lab on a chip*, **10**(22) : 3043–53, 2010.

- [240] W. Kühne. Uber das Trypsin (Enzym des Pankreas). Verhandlungen des naturhistorischmedicinischen Vereins zu Heidelberg, new series, 1(3): 194–198, 1877.
- [241] L. Weiss. The measurement of cell adhesion. Experimental Cell Research, 8(0): 141 153, 1961. Cell Movement and Cell Contact.
- [242] S. Usami, H. H. Chen, Y. Zhao, S. Chien et R. Skalak. Design and construction of a linear shear stress flow chamber. Annals of biomedical engineering, 21(1): 77–83, 1993.
- [243] E. W. K. Young et D. J. Beebe. Fundamentals of microfluidic cell culture in controlled microenvironments. *Chemical Society reviews*, **39**(3) : 1036–48, 2010.
- [244] A. Lenshof et T. Laurell. Continuous separation of cells and particles in microfluidic systems. *Chemical Society reviews*, **39**(3): 1203–17, 2010.
- [245] Y. Gao, W. Li et D. Pappas. Recent advances in microfluidic cell separations. *The Analyst*, 138(17): 4714–21, 2013.
- [246] J. Berthier. Microdrops and Digital Microfluidics. William Andrews Publications, first edition, 2013.
- [247] S. Safran, N. Gov, A. Nicolas, U. Schwarz et T. Tlusty. Physics of cell elasticity, shape and adhesion. *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, **352**(1) : 171–201, 2005.
- [248] J. T. Parsons, A. R. Horwitz et M. A. Schwartz. Cell adhesion : integrating cytoskeletal dynamics and cellular tension. *Nature reviews Molecular cell biology*, **11**(9) : 633–643, 2010.
- [249] W. C. Nelson et C.-J. Kim. Droplet Actuation by Electrowetting-on-Dielectric (EWOD) : A Review. Journal of Adhesion Science and Technology, 26(26) : 1–25, 2012.
- [250] M. G. Pollack, R. B. Fair et N. Carolina. Electrowetting-based actuation of liquid droplets for microfluidic applications. *Applied Physics Letters*, 77(11): 1725–1726, 2000.
- [251] S.-K. Fan, P.-W. Huang, T.-T. Wang et Y.-H. Peng. Cross-scale electric manipulations of cells and droplets by frequency-modulated dielectrophoresis and electrowetting. *Lab on a chip*, 8(8) : 1325–31, 2008.
- [252] G. J. Shah, J. L. Veale, Y. Korin, E. F. Reed, H. A. Gritsch et C.-J. C. Kim. Specific binding and magnetic concentration of CD8+ T-lymphocytes on electrowetting-on-dielectric platform. *Biomicrofluidics*, 4(4) : 44106, 2010.
- [253] Z. Gagnon, J. Gordon, S. Sengupta et H.-C. Chang. Bovine red blood cell starvation age discrimination through a glutaraldehyde-amplified dielectrophoretic approach with buffer selection and membrane cross-linking. *Electrophoresis*, 29(11) : 2272–9, 2008.

- [254] S. Sengupta, J. E. Gordon, H.-c. Chang et N. Dame. Microfluidic Diagnostic Systems for the Rapid Detection and Quantification of Pathogens. *Springer US*, 2009.
- [255] A. Bussonnière, A. Renaudin, Y. Miron, M. Grandbois, M. Baudoin et P. Charette. Removal of living cells from biosensing surfaces in droplet-based microfluidics using surface acoustic waves. *Proceedings of Meetings on Acoustics*, 19(1):045018, 2013.
- [256] C. P. Palmer, M. E. Mycielska, H. Burcu, K. Osman, T. Collins, R. Beckerman, R. Perrett, H. Johnson, E. Aydar et M. B. a. Djamgoz. Single cell adhesion measuring apparatus (SCAMA) : application to cancer cell lines of different metastatic potential and voltagegated Na+ channel expression. *European biophysics journal : EBJ*, **37**(4) : 359–68, 2008.
- [257] B. D. Plouffe, M. Radisic et S. K. Murthy. Microfluidic depletion of endothelial cells, smooth muscle cells, and fibroblasts from heterogeneous suspensions. Lab on a chip, 8 (3): 462–72, 2008.
- [258] R. Rodaite-Riseviciene, B. Snopok et V. Snitka. In situ confocal Raman spectroscopy of single living Chinese hamster ovary cells grown on different substrates. The 7th IEEE International Conference on Nano/Molecular Medicine and Engineering, pages 7–10, 2013.
- [259] S. Seeger, K. Bierbaum, R. Dahint, C. Feng, M. Mantar et M. Grunze. Preparation and Characterization of Antibody Films on Lithium Niobate Surfaces. Springer US, 1992.
- [260] J. Bennès, S. Ballandras et F. Chérioux. Easy and versatile functionalization of lithium niobate wafers by hydrophobic trichlorosilanes. *Applied Surface Science*, 255(5): 1796– 1800, 2008.
- [261] H. Li, J. Friend, L. Yeo, A. Dasvarma et K. Traianedes. Effect of surface acoustic waves on the viability, proliferation and differentiation of primary osteoblast-like cells. *Biomi*crofluidics, 3(3): 34102, 2009.
- [262] A. R. Rezk, O. Manor, J. R. Friend et L. Y. Yeo. Unique fingering instabilities and soliton-like wave propagation in thin acoustowetting films. *Nature communications*, 3: 1167, 2012.
- [263] L. Rayleigh. On the Circulation of Air observed in Kundt's Tubes, and on some Allied Acousyical Problems. *Philosophical Transactions Royal Society London*, **175**: 1–21, 1884.
- [264] H. Tavana, C.-H. Kuo, Q. Y. Lee, B. Mosadegh, D. Huh, P. J. Christensen, J. B. Grotberg et S. Takayama. Dynamics of liquid plugs of buffer and surfactant solutions in a microengineered pulmonary airway model. *Langmuir : the ACS journal of surfaces and colloids*, 26(5): 3744–52, 2010.

- [265] A. J. García, P. Ducheyne et D. Boettiger. Quantification of cell adhesion using a spinning disc device and application to surface-reactive materials. *Biomaterials*, 18(16) : 1091–8, 1997.
- [266] J. Womersley. Method for the Calculation of Velocity, Rate of Flow and Viscous Drag in Arteries when the Pressure Grandient is known. *Journal of Physiology*, **127**(2): 553–563, 1955.
- [267] G. Helmlinger, R. V. Geiger, S. Schreck et R. M. Nerem. Effects of pulsatile flow on cultured vascular endothelial cell morphology. *Journal of biomechanical engineering*, 113 (2): 123–31, 1991.

## Résumé

Les laboratoires sur puce visent à intégrer sur un substrat miniaturisé une ou plusieurs fonctions de laboratoire. Cette miniaturisation d'opérations élémentaires présente des avantages indéniables en termes de portabilité, de vitesse et de rendement des analyses chimiques ou biologiques. Il est ainsi nécessaire de pouvoir contrôler avec précision des petites quantités de liquide sous forme de gouttes. Les actionneurs à ondes acoustiques de surfaces permettent de réaliser la plupart des opérations requises en exploitant les interactions non linéaires entre une onde acoustique et un liquide. Toutefois la physique sous-jacente à ces microsystèmes n'est encore que partiellement comprise, limitant le développement de telles plateformes d'analyse. Nous nous proposons, dans ce travail, d'étudier de manière théorique et expérimentale l'oscillation et le déplacement d'une goutte soumise à des ondes acoustiques de surface. La réaction d'une goutte à une telle excitation ainsi que les transferts non linéaires d'énergie sont abordés dans une première partie. La deuxième partie est consacrée à la modélisation faiblement non linéaire de l'oscillation d'une goutte afin de prédire les résonances paramétriques d'une goutte soumise à une excitation périodique. Dans une troisième partie, la comparaison de la dynamique de gouttes pendantes et de gouttes posées sur des plans horizontaux et inclinés met en exergue l'influence de la gravité sur la dynamique de la goutte, et permet d'observer de nouvelles dynamiques complexes. Enfin dans la dernière partie, les dynamiques décrites dans les précédents chapitres sont utilisées pour trier des cellules en fonction de leur pouvoir d'adhésion.

## Abstract

A lab-on-a-chip aims at integrating on a miniaturized substrate one or several laboratory functions. This miniaturization of elementary functions has major advantages to design portable systems, to control precisely the experimental conditions or to reduce the environmental impact of industrial activities. In most of these microsystems, it is necessary to actuate a small amount of chemical or biological fluid under the form of droplets. In particular, it is often necessary to move, divide atomize or mix these small quantities of fluids. Surface Acoustic Wave actuators allow to perform all these elementary operations. They rely on the nonlinear interaction of a surface wave and a liquid. However a precise understanding of the underlying physics is still missing, hence restraining a widespread use of these microsystems. We present, in this thesis, a theorical and experimental study of the oscillation and the displacement of a droplet under a surface acoustic wave excitation. In the first part, we describe the droplet dynamics and nonlinear energy transfers that occur during actuation. The second part of the manuscript is dedicated to the development of a weakly nonlinear model to study parametric response of a droplet to periodic excitation. In a third part, the influence of the gravity is shown through the comparison of pendant and sessile droplet dynamics. A competition between acoustic forces and gravity appears when tilting the experimental device and allow us to observe new droplet dynamics. In the last part of the manuscript, the free surface drop deformations generated by surface acoustic waves, are used to viably sort cells based on their adhesion properties.