



**HAL**  
open science

**instabilité interfaciale d'une couche de ferrofluide sous  
champ magnétique normal; étude de la transition  
hexagones - carrés**

Bérengère Abou

► **To cite this version:**

Bérengère Abou. instabilité interfaciale d'une couche de ferrofluide sous champ magnétique normal; étude de la transition hexagones - carrés. Dynamique des Fluides [physics.flu-dyn]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1998. Français. NNT: . tel-00002669

**HAL Id: tel-00002669**

**<https://theses.hal.science/tel-00002669>**

Submitted on 1 Apr 2003

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Instabilité interfaciale d'une couche de ferrofluide sous  
champ magnétique normal;  
Étude de la transition hexagones-carrés

Bérengère Abou

15 janvier 1999



# Table des matières

<b>Avant-propos</b>	<b>5</b>
<b>Introduction</b>	<b>7</b>
<b>I L'instabilité interfaciale de pics</b>	<b>11</b>
<b>1 Les ferrofluides</b>	<b>15</b>
1.1 Qu'est ce qu'un ferrofluide? . . . . .	15
1.2 Stabilité du colloïde magnétique . . . . .	16
1.3 Synthèse d'un ferrofluide surfacté . . . . .	19
1.4 Aimantation du ferrofluide . . . . .	21
1.5 Les ferrofluides : des applications en vrac ... . . . .	23
<b>2 L'instabilité interfaciale de pics</b>	<b>27</b>
2.1 Analyse statique de l'instabilité . . . . .	27
2.1.1 Mécanisme de l'instabilité . . . . .	27
2.1.2 Valeurs critiques de l'instabilité . . . . .	30
2.2 L'instabilité de pics depuis 1967. . . . .	33
2.3 Le dispositif expérimental . . . . .	37
2.4 Autres instabilités interfaciales . . . . .	38
<b>3 Analyse linéaire à deux dimensions</b>	<b>43</b>
3.1 Équations du système . . . . .	44
3.2 Linéarisation des équations . . . . .	46
3.3 Échelles caractéristiques du problème . . . . .	49
3.4 Analogie avec l'instabilité électrocapillaire . . . . .	51
<b>4 Les régimes asymptotiques</b>	<b>53</b>
4.1 Les différents régimes . . . . .	54
4.2 Couche épaisse . . . . .	55
4.3 Couche mince . . . . .	60
4.4 Quel régime pour notre expérience? . . . . .	63

<b>II</b>	<b>La transition hexagones-carrés</b>	<b>67</b>
<b>5</b>	<b>La transition hexagones-carrés</b>	<b>71</b>
5.1	Historique de la transition . . . . .	71
5.2	Le cadre théorique de la transition hexagones-carrés . . . . .	72
5.2.1	Minimisation de l'énergie : étude non linéaire statique . . . . .	72
5.2.2	Modèle de Swift-Hohenberg généralisé . . . . .	74
5.2.3	Comparaison des deux calculs . . . . .	77
<b>6</b>	<b>Présentation des réseaux et de leur défaut</b>	<b>79</b>
6.1	Analyse de Fourier des images . . . . .	81
6.1.1	Le réseau hexagonal . . . . .	81
6.1.2	Le défaut penta-hepta . . . . .	81
6.1.3	Le réseau carré; joints de grain . . . . .	83
6.2	Contrôle des défauts dans le réseau hexagonal . . . . .	89
6.2.1	Les conditions aux limites : cuve hexagonale . . . . .	89
6.2.2	La technique de recuit . . . . .	90
<b>7</b>	<b>Phénoménologie de la transition hexagones-carrés</b>	<b>99</b>
7.1	Description de la phénoménologie . . . . .	100
7.2	Rôle des défauts penta-hepta lors de la transition . . . . .	105
<b>8</b>	<b>Sélection du nombre d'onde</b>	<b>113</b>
8.1	Mesure des nombres d'onde; adimensionnement des paramètres . . . . .	114
8.2	Sélection brutale du nombre d'onde . . . . .	115
8.3	Sélection quasistatique du nombre d'onde . . . . .	117
8.3.1	Description du cycle d'hystérésis . . . . .	117
8.3.2	Sélection du nombre d'onde du réseau hexagonal à la descente . . . . .	119
8.4	Seuil de la transition hexagones-carrés . . . . .	121
8.5	Domaines de stabilité des deux symétries . . . . .	121
8.6	Création de nouveaux pics . . . . .	123
<b>9</b>	<b>La transition induite par compression</b>	<b>127</b>
9.1	Interprétation des résultats de sélection du nombre d'onde . . . . .	127
9.2	La transition induite par compression . . . . .	130
	<b>Conclusion</b>	<b>137</b>
<b>A</b>	<b>Calcul du champ critique</b>	<b>147</b>
<b>B</b>	<b>L'instabilité de Bénard-Marangoni</b>	<b>151</b>
<b>C</b>	<b>Paramètres physiques de quelques ferrofluides</b>	<b>155</b>

# Avant-propos

L'ensemble des travaux présentés ici ont été réalisés au Laboratoire de Physique et Mécanique des Milieux Hétérogènes (PMMH-UMR 7636) à l'École Supérieure de Physique et Chimie Industrielles de la ville de Paris (ESPCI).

Je remercie J.-E. Wesfreid de m'avoir proposé de travailler sur ce sujet. Je remercie J.-P. Brancher et R. Ribotta d'avoir accepté d'être rapporteurs. Enfin, je remercie J.-C. Bacri, D. Salin et A. Thess d'avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse.

Durant ma dernière année de thèse, j'ai eu la chance de discuter avec Stéphane Roux, qui travaillait encore au laboratoire à ce moment. De cette collaboration, est née toute la partie qui concerne la compression du réseau hexagonal à champ constant. J'ai appris comment, à partir d'une hypothèse de travail, on cherchait à mettre en place une expérience capable de valider cette hypothèse. Pour m'avoir fait profiter de cette approche, que je qualifierais de ludique et scientifique, je remercie vivement Stéphane.

Je remercie Françoise, Pierrette et Michel, pour leur bonne humeur quotidienne. J'adresse un clin d'œil à tous mes amis (Les Dalton ainsi que les sept nains ... là c'est sûr, ils se reconnaîtront) du laboratoire pour leur bonne humeur, leur amitié, nos discussions très stimulantes sur la physique...et autre.



# Introduction

Si l'on regarde autour de nous, on se rend compte que, dans la Nature, les motifs abondent. Comme par exemple, les rides sur le sable modelées par les vagues, la robe rayée blanc et noir du zèbre, les taches quasi-régulières de la girafe, la peau de l'ananas. De même, au laboratoire de Physique, de nombreuses instabilités hydrodynamiques, physico-chimiques ou mécaniques conduisent à la formation de motifs. De façon générale, le comportement de ces systèmes physiques est sous la dépendance d'un certain nombre de paramètres. La réponse du système à une variation de l'un des paramètres est en général régulière, mais il existe des valeurs particulières des paramètres — appelées valeurs critiques — pour lesquelles le système adopte soudain un comportement qualitativement différent du comportement antérieur. Un tel changement de comportement est appelé bifurcation et se traduit par une perte de symétrie du système. Les instabilités représentent un sous-ensemble de l'ensemble plus général des bifurcations. Citons deux exemples...

L'instabilité de Rayleigh-Bénard est l'instabilité thermoconvective d'une couche de fluide, placée entre deux plaques, et chauffée par le bas. Lorsque la différence de température entre les deux plaques est suffisamment faible, le transfert thermique dans la couche de fluide s'effectue par diffusion. Lorsque la différence de température atteint un seuil critique, le fluide se met en mouvement sous forme de rouleaux de convection. La diffusion thermique tend à homogénéiser la température et à réduire les gradients de densité responsables de la convection. La viscosité du fluide tend également à ralentir la convection. La diffusion thermique et la viscosité sont ici deux effets stabilisants. La situation devient instable lorsque les effets stabilisants ne peuvent plus équilibrer la gravitation (déstabilisant). Dans ce cas, on observe des mouvements cellulaires : le fluide chaud remonte vers la paroi froide, se refroidit devient plus dense, redescend vers la paroi chaude, se réchauffe, devient moins dense, remonte, etc... Cette description met en évidence un fait général : une instabilité résulte d'un renversement du rapport de force entre des phénomènes stabilisants et déstabilisants. Cette instabilité est à l'origine des mouvements ascensionnels au dessus de parois chaudes, des mouvements de convection atmosphérique ou océanique. L'augmentation de la température conduit à une déstabilisation des rouleaux de convection, qui peuvent se mettre en zig-zag, ou peuvent osciller de manière périodique. Tout ceci n'est vrai que lorsque les paramètres du fluide dépendent peu de la température (conditions Boussinesq). Dans le cas contraire, le réseau formé près du seuil est un réseau hexagonal. Quand la différence de température augmente, les hexagones deviennent instables et sont remplacés par des rouleaux.



Une variante de l'instabilité de Rayleigh-Bénard est l'instabilité de Bénard-Marangoni, qui survient lorsque la face supérieure du fluide est libre, et la couche fluide suffisamment mince. Au dessus d'une valeur critique de la température, un réseau de cellules de convection hexagonales se développe. Lorsque la température augmente encore, les cellules hexagonales deviennent instables et sont remplacées par des cellules carrées.

Ces deux instabilités que nous venons de décrire sont des instabilités à seuil, gouvernées par un paramètre de contrôle, ici la température. Lorsque le paramètre de contrôle est inférieur à une valeur seuil, ou valeur critique, l'écoulement est stable; au delà du seuil, l'écoulement est instable et bifurque vers une autre configuration. La valeur critique correspond à un renversement du rapport de force entre facteurs stabilisants et facteurs déstabilisants. Une instabilité se traduit par une perte de symétrie du système, et cette caractérisation est très importante. Par exemple, dans l'expérience de Rayleigh-Bénard sous conditions Boussinesq, le régime diffusif peut être caractérisé par l'invariance par translation des champs de température et de vitesse, selon un axe quelconque du plan des plaques. La bifurcation est marquée par la rupture de la symétrie  $x \rightarrow x + \xi$ , où l'axe  $(Ox)$  est perpendiculaire aux rouleaux dans le plan des plaques, et par l'apparition d'une périodicité spatiale. Le régime convectif peut être caractérisé par un nombre d'onde non nul  $k_x$  selon  $(Ox)$  :

$$\text{Bifurcation primaire } k_x = 0 \rightarrow k_x \neq 0$$

Cette caractérisation d'une bifurcation par une rupture de symétrie peut être étendue aux instabilités secondaires. En effet, quand la différence de température augmente, les rouleaux deviennent instables. Selon les conditions expérimentales, ils peuvent perdre leur caractère rectiligne et se mettre en zig-zag, ou un second réseau de rouleaux perpendiculaire au premier peut se développer. Dans les deux cas, c'est l'invariance par translation  $z \rightarrow z + \xi$  suivant l'axe des rouleaux qui est brisée. Les rouleaux primaires peuvent aussi se mettre à osciller : c'est l'invariance par translation dans le temps  $t \rightarrow t + \tau$  qui est brisée, avec l'apparition d'une fréquence angulaire non nulle :

$$\text{Bifurcation secondaire } k_z = 0 \rightarrow k_z \neq 0 \text{ ou } \omega = 0 \rightarrow \omega \neq 0$$

L'instabilité de Kelvin-Helmoltz est l'instabilité de deux fluides séparés par une interface plane et s'écoulant à des vitesses différentes. Lorsque la différence de vitesses atteint une valeur critique, l'interface devient instable et conduit à la formation de vagues. La bifurcation qui marque l'apparition de ces vagues interfaciales correspond à la rupture de l'invariance par translation  $x \rightarrow x + \xi$ , et à l'apparition d'un nombre d'onde non nul. Cependant, l'onde se propage à une célérité non nulle et l'invariance par translation dans le temps est elle aussi brisée, simultanément à la brisure de l'invariance par translation. Dans l'instabilité de la couche limite, c'est l'invariance dans le temps qui est brisée pour la bifurcation primaire.

Comme nous venons de le voir, les instabilités peuvent conduire à des bifurcations successives menant à la formation de réseaux à symétries décroissantes. Ces instabilités constituent un domaine offrant une large variété de transition entre réseaux à symétries

différentes. Bien que les mécanismes physiques de ces instabilités soient différents, les réseaux correspondant ont la même symétrie et peuvent être traités avec le même formalisme. Tous ces changements de symétrie peuvent être décrits par le formalisme des bifurcations, dans le cadre d'équations d'amplitude du type Ginzburg-Landau. Ce formalisme est phénoménologique et ne tient pas compte de l'origine physique des phénomènes observés, seulement de leur domaine de stabilité.

Ici, nous nous intéressons à une instabilité hydrodynamique interfaciale, qui se développe lorsqu'une couche de ferrofluide est soumise à un champ magnétique vertical. Cette instabilité fournit la possibilité d'étudier la transition entre un réseau hexagonal et un réseau carré. L'intérêt de notre étude est qu'elle s'inscrit dans un cadre général. En effet, la transition hexagones-carrés est depuis peu observée en convection de Bénard-Marangoni, dans l'instabilité électro-capillaire et aussi dans l'instabilité de Faraday d'une couche de sable. Notre système a l'avantage d'être très simple à mettre en place expérimentalement.

Un ferrofluide est une solution colloïdale stable de particules ferromagnétiques. Jusqu'aux années 1960, il n'existait pas de liquides pouvant acquérir une aimantation comparable à celle des solides ferromagnétiques. Les liquides connus étaient soit dia- soit paramagnétiques avec une susceptibilité magnétique inférieure à  $10^{-3}$ . La situation a évolué à partir des années 1960 avec la production de ferrofluides aux propriétés superparamagnétiques. De rapides progrès ont été fait entre 1960 et 1980 dans la production de ces liquides. Des fluides magnétiques de perméabilité magnétique de l'ordre de 40, ou d'aimantation de saturation de l'ordre de centaines de kA/m, ont été synthétisés depuis. À l'échelle du Laboratoire de Physique et de Chimie, les ferrofluides offrent la possibilité de travailler sur des systèmes modèles ou de parfaire leur maîtrise afin d'optimiser leurs propriétés. Parallèlement, les applications des ferrofluides se sont multipliées et s'avèrent très prometteuses. On les utilise de nos jours dans de nombreux domaines — Technologie, Écologie, Médecine. Leur étude a permis l'émergence d'une spécialité appelée Ferrohydrodynamique...

Découverte par Cowley et Rosensweig en 1967, l'instabilité que nous étudions est la suivante : lorsqu'on met une couche de ferrofluide dans un champ magnétique uniforme et vertical, une instabilité interfaciale se développe pour une valeur du champ  $B \geq B_{crit}$ . La surface — initialement plane — se hérissé de pics disposés selon un motif hexagonal. Nous nous intéresserons particulièrement à ce qui se passe lorsqu'on augmente encore le champ magnétique. Pour  $B \geq B'_{crit} \geq B_{crit}$ , le réseau hexagonal se transforme progressivement en réseau carré. Alors que la première bifurcation a été étudiée en détail depuis 1967 — autant du point de vue théorique qu'expérimental, on ne trouve pas — ou très peu — de contribution expérimentale à la seconde bifurcation (transition hexagones-carrés). Par contre, il existe des contributions théoriques importantes :

1. la première, réalisée en 1970 par Gailitis, prédit la possible existence des carrés non observés expérimentalement. Ce système étant variationnel, Gailitis calcule son énergie et la minimise.
2. le formalisme des équations d'amplitude a été développé pour rendre compte de la possibilité de la transition hexagones-carrés. Cette analyse permet de faire des

prédictions qualitatives sur la transition. Jusqu'à présent, cette étude a manqué de rétroaction expérimentale.

La première partie de ce manuscrit traite de l'instabilité interfaciale de pics en général. Dans le chapitre 1, nous présentons ce qu'est un ferrofluide, ses propriétés et ses applications. Puis, dans le chapitre 2, nous traitons de l'instabilité découverte en 1967, de son mécanisme et des contributions théoriques ou expérimentales sur le sujet. Nous présentons en particulier les résultats de l'analyse linéaire d'une couche de ferrofluide infinie et non visqueuse, faite par Cowley et Rosensweig en 1967. Celle-ci leur permit d'obtenir les valeurs critiques de l'instabilité — champ magnétique et nombre d'onde du réseau formé. Nous décrivons ensuite le dispositif expérimental que nous avons utilisé pour étudier l'instabilité. Nous présentons dans les chapitres 3 et 4, l'analyse linéaire d'une couche de ferrofluide d'épaisseur et de viscosité quelconques. Dans un premier temps, nous présentons puis linéarisons les équations du problème. Ensuite, nous définissons les échelles caractéristiques, qui nous permettent d'adimensionner nos équations. La relation de dispersion générale que nous obtenons, est simplifiée pour quatre cas asymptotiques de la couche de fluide, correspondant le plus souvent aux cas expérimentaux. Pour chaque régime asymptotique, nous calculons les valeurs critiques de l'instabilité, sa vitesse de croissance et le nombre d'onde de taux de croissance des fluctuations linéaire maximal. Les domaines de validité des différents régimes sont explicités, ce qui nous a permis de situer notre expérience dans le cadre de la théorie linéaire.

Dans la deuxième partie, nous nous intéressons à la transition hexagones-carrés. Dans le chapitre 5, nous situons les contributions théoriques, expérimentales et numériques sur le sujet. Puis, dans le chapitre 6, nous étudions les réseaux hexagonal et carré et leur défaut, à l'aide d'une analyse de Fourier des niveaux de gris de leurs images. Nous expliquons aussi comment nous avons contrôlé le nombre de défauts dans la phase hexagonale. Tout ceci nous permettra d'étudier le rôle du défaut du réseau hexagonal lors de la transition. Dans le chapitre 7, nous décrivons la phénoménologie de la transition hexagones-carrés. Nous montrons comment le réseau hexagonal, par simple glissement des rangées de pics, se transforme en réseau carré. Nous analysons le rôle des défauts penta-hepta du réseau hexagonal lors de la transition. Dans le chapitre 8, nous présentons les résultats de sélection de nombre d'onde par variation quasistatique et brutale du champ magnétique. Les résultats obtenus par les deux processus sont très différents. Dans le chapitre 9, nous discutons et interprétons les résultats de sélection de nombre d'onde. Nous montrons ainsi que le réseau carré est un état métastable du système induit par compression du réseau hexagonal lorsqu'on augmente le champ, par le biais des conditions aux limites. Ceci est vérifié à l'aide d'une nouvelle expérience réalisée dans un entonnoir. Enfin, nous concluons et donnons les perspectives de ce travail.

**Première partie**

**L'instabilité interfaciale de pics**



Dans cette première partie, nous traitons de l'instabilité interfaciale de pics. Ce n'est que dans la deuxième partie, que nous aborderons l'étude de la transition hexagones-carrés. Dans le chapitre 1, nous rappelons ce que sont les ferrofluides ainsi que quelques unes de leurs propriétés et applications. Puis, nous présentons dans le chapitre 2, l'instabilité interfaciale de pics découverte en 1967, ainsi que les valeurs critiques de l'instabilité. Enfin, nous précisons le dispositif expérimental que nous avons utilisé. Dans le chapitre 3, nous présentons l'analyse linéaire d'une couche de ferrofluide d'épaisseur et viscosité quelconques. La relation de dispersion générale que nous obtenons, est étudiée pour différents cas asymptotiques de la couche de ferrofluide dans le chapitre 4. Nous précisons les domaines de validité des différents régimes asymptotiques, afin de situer notre expérience dans le cadre de la théorie linéaire.



# Chapitre 1

## Les ferrofluides

Ce premier chapitre traite des ferrofluides en général. Après une petite présentation de ces liquides magnétiques et de leur composition, nous développons les critères de stabilité de ces colloïdes sous l'action des différentes forces mises en jeu. Puis, nous décrivons brièvement leur procédé de synthèse. Ensuite, nous présentons une de leurs propriétés physiques : le superparamagnétisme. Enfin, nous énumérons quelques unes de leurs applications.

### 1.1 Qu'est ce qu'un ferrofluide?

Un ferrofluide est un **liquide** qui a de fortes propriétés **magnétiques**. Sous l'action d'un champ magnétique extérieur, ce liquide noir opaque, s'aimante comme un barreau de fer. Parallèlement, il se comporte comme un fluide, capable d'épouser les formes de son récipient ou de s'écouler [1]. Les liquides magnétiques ne se rencontrent pas à l'état naturel, il faut les synthétiser. La méthode utilisée est de réaliser une **suspension colloïdale stable, homogène et isotrope de particules ferromagnétiques monodomaines dans un liquide porteur**. Nous verrons un peu plus loin qu'un liquide magnétique ainsi synthétisé est **superparamagnétique** et non ferromagnétique.

L'intérêt pour la synthèse des ferrofluides s'est développé simultanément dans différentes équipes, au début des années 1960. Il ne faut pas confondre les ferrofluides avec d'autres fluides magnétiques mis au point dans les années 1940, et constitués de particules ferromagnétiques de diamètre supérieur au micron en suspension dans de l'huile. Ces suspensions, utilisées dans certains dispositifs automobiles — embrayages, freins et amortisseurs — devenaient solides sous l'action d'un champ magnétique.

Les ferrofluides en diffèrent radicalement à un double point de vue :

- la taille des particules;
- leur structure.

En 1963, Stephen Papell de la NASA synthétisa l'un des premiers ferrofluides [2]. Le fluide de Papell était constitué de particules finement divisées de ferrite, de taille de l'ordre



de 100 Å, en suspension dans du kérosène. Afin d'éviter l'agglomération des particules, Papell avait introduit dans la solution, de l'acide oléique, qui servait d'agent dispersant. L'originalité du fluide de Papell résidait dans la taille des particules et dans leur structure, puisque chaque particule était enrobée d'une couche de matériau élastique (acide oléique), prévenant l'agglomération des grains.

Au cours des années 1960, R. E. Rosensweig — en collaboration avec les chercheurs d' *Avco-Corporation* — améliore le fluide de Papell et synthétise un ferrofluide plus magnétique. C'était le seul ferrofluide pratiquement utilisé dans ces années-là. Il avait la constitution suivante :

- particules ferromagnétiques : ferrite de Manganèse et de Zinc ( $Mn_{0.5}Zn_{0.5} - Fe_2O_3$ );
- fluide porteur : kérosène ou heptane normal;
- agent dispersant : acide oléique.

En collaboration avec R. Kaiser, R. E. Rosensweig examine une grande variété de particules magnétiques, d'agents dispersants et de fluides porteurs. Ils analysent parallèlement les principes physiques qui régissent les propriétés des fluides magnétiques [3]. En 1968, R.E. Rosensweig devient le cofondateur, avec R. Moskowitz, de la *Ferrofluidics Corporation*. C'est aujourd'hui la principale entreprise qui commercialise les fluides magnétiques et certains produits dérivés (voir les applications des ferrofluides).

Les ferrofluides, commercialisés par la *Ferrofluidics Corporation*, restent assez chers et leur prix varie de 8 francs par ml pour notre ferrofluide à 80 francs par ml pour un ferrofluide qui possède une forte susceptibilité magnétique initiale  $\chi_i = 4, 2$ .

## 1.2 Stabilité du colloïde magnétique

Le problème essentiel pour fabriquer un ferrofluide est celui de la stabilité de la solution. En effet, lorsqu'on introduit des particules dans un liquide, la solution obtenue n'est généralement pas homogène : sédimentation sous l'effet de la pesanteur, forces de Van der Waals entre les particules. De plus, lorsque ces particules sont magnétiques et qu'elles sont soumises à un champ magnétique, le problème se complique. Les particules, qui constituent des moments magnétiques élémentaires, peuvent s'attirer mutuellement, ou encore, soumise à un gradient de champ, ces particules ne sont plus distribuées de façon homogène dans le liquide porteur. Obtenir un liquide magnétique homogène et stable nécessite de prendre certaines précautions.

Il faut tenir compte des différentes énergies mises en jeu, lorsqu'on introduit des grains magnétiques dans un liquide porteur sous champ magnétique [3]. Pour cela, on considère le système représenté sur la Figure 1.1 et dont les paramètres typiques sont résumés dans le Tableau 1.1.  $\Delta\rho = \rho_{particule} - \rho_{liquide}$  est la différence de densité entre les particules et le liquide porteur,  $L$  la hauteur du récipient,  $M$  le module de l'aimantation du ferrofluide,  $H$  le module de l'induction magnétique à laquelle est soumis le système,  $T$  la température du système,  $k$  la constante de Boltzmann et  $g$  l'accélération de la pesanteur. On note  $V$  le

$\Delta\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )	$M$ (A/m)	$H$ (A/m)
$4,3 \cdot 10^3$	$4,46 \cdot 10^5$	$8 \cdot 10^4$
$L$ (m)	$T$ (K)	$k$ (N m K <sup>-1</sup> )
0,05	298	$1,38 \cdot 10^{-23}$

TAB. 1.1: Paramètres d'un système typique.

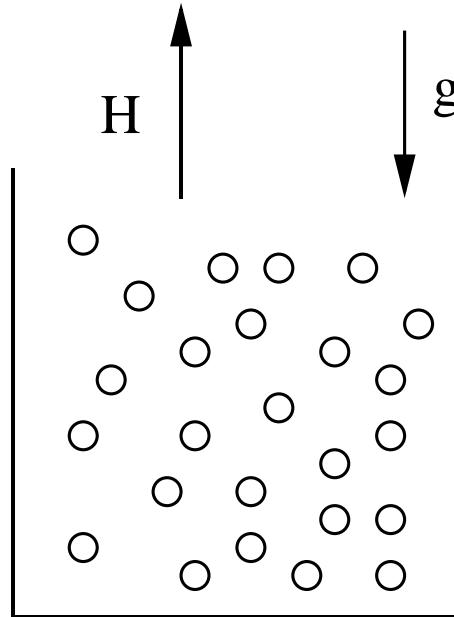


FIG. 1.1: Colloïde magnétique sous champ normal.

volume d'une particule relié à son diamètre  $D$  par la relation  $V = \pi D^3/6$ ,  $\mu_0$  la perméabilité magnétique du vide.

Les énergies mises en jeu sont les suivantes :

- énergie d'agitation thermique :  $kT$
- énergie gravitationnelle :  $\Delta\rho VgL$
- énergie champ magnétique-dipôle magnétique :  $\mu_0 MHV$
- énergie de contact entre dipôles magnétiques :  $\mu_0 M^2V/12$
- énergie de Van der Waals entre les particules.

## pesanteur

En premier lieu, il faut empêcher le phénomène de sédimentation sous l'effet de la pesanteur; pour qu'une particule reste en suspension indéfiniment, l'énergie thermique par particule  $kT$  doit être supérieure ou égale à l'énergie potentielle  $\Delta\rho V g L$  nécessaire pour élever la particule à la hauteur  $L$  du récipient contenant le fluide :

$$kT \gg \Delta\rho V g L$$

ce qui conduit à un diamètre  $D$  de particules de l'ordre de  $D < 10$  nm. Avec une taille de cet ordre de grandeur, chaque particule constitue ainsi un monodomaine magnétique aimanté à saturation.

## gradient de champ magnétique extérieur

Les particules sont attirées vers les zones de champ magnétique de haute intensité. Afin de minimiser le phénomène de ségrégation, on doit avoir:

$$kT \gg \mu_0 M H V$$

ce qui conduit à un diamètre de particules  $D < 8,1$  nm.

## Forces attractives

Dans un deuxième temps, les particules du ferrofluide peuvent s'attirer mutuellement et sous l'effet de deux forces :

- la force magnétique ou interaction dipôle-dipôle, due à l'aimantation spontanée des particules;
- la force de Van der Waals, due à l'attraction qui apparaît entre deux dipôles électriques, eux-mêmes créés par les fluctuations de la structure électronique.

Afin d'éviter l'agglomération des particules sous l'effet de la force magnétique, l'énergie maximum nécessaire pour séparer les particules — correspondant au cas où les particules sont en contact — doit être supérieure à l'énergie d'agitation thermique :

$$kT \gg \mu_0 M^2 V$$

ce qui conduit à un diamètre des particules  $D < 7,8$  nm.

On constate que cette énergie magnétique maximum nécessaire à la séparation des particules a une valeur finie. L'énergie magnétique varie comme  $1/(l+2)^3$  où  $l = 2s/D$ ,  $s$  étant la distance de séparation surface-surface,  $D$  le diamètre des particules.

Ceci n'est pas le cas pour la force de Van der Waals où l'énergie maximum nécessaire pour

séparer deux particules ( $l = 0$ ) est infinie (modèle de Hamaker). Afin d'éviter une agglomération qui serait alors irréversible, il faut maintenir une distance minimale d'approche non nulle entre les particules.

Pour cela, on dispose de deux méthodes : une méthode de répulsion mécanique et une méthode de répulsion électrostatique.

L'énergie de Van der Waals est en  $1/l$ , à courte distance, et en  $1/l^6$ , à longue distance. A longue distance, on vérifie bien que l'énergie d'agitation thermique compense l'énergie de Van der Waals, pour des particules de taille de l'ordre de 10 nm.

### Répulsion mécanique

On introduit un surfactant dans la solution (Figure 1.2). La molécule de surfactant possède un groupement chimique polaire, la tête, qui adhère à la surface de la particule, et une queue, d'au moins 10 à 20 Å de long, qui présente une affinité avec le fluide porteur. Les agents tensio-actifs se fixent sur la particule magnétique par leur partie hydrophile et présentent vers le solvant leur extrémité hydrophobe, ce qui explique que la majorité des ferrofluides soit à base de solvant non polaire. L'obtention de ferrofluides à base de solvant polaire comme l'eau nécessite l'adjonction d'un deuxième agent tensio-actif de façon à réaliser un ensemble (particule magnétique - surfactant 1 - surfactant 2) présentant une couche extérieure hydrophile [4].

Le surfactant constitue un matelas élastique (film moléculaire) autour des grains et empêche une trop grande approche entre ceux-ci, par encombrement stérique. C'est cette méthode qui est utilisée pour la fabrication des **ferrofluides surfactés** par la *Ferrofluidics Corporation*.

### Répulsion électrostatique

Une deuxième méthode de stabilisation consiste à introduire une charge de surface de même signe sur les grains magnétiques ce qui conduit à la fabrication de **ferrofluides dit ioniques**. La neutralité de la solution est assurée par l'introduction de groupements ioniques adéquats. Cette méthode a été découverte par René Massart en 1979 et est décrite dans [5, 6, 7]. Ces ferrofluides ioniques ont un solvant privilégié : l'eau. Ils sont fabriqués par une méthode de précipitation et ne nécessitent pas l'utilisation de surfactant. Ils sont moins stables que les ferrofluides surfactés à base de solvant organique, notamment à cause de l'évaporation plus rapide de leur solvant.

## 1.3 Synthèse d'un ferrofluide surfacté

Nous décrivons brièvement les deux méthodes utilisées pour la synthèse des ferrofluides surfactés. Des détails sur la synthèse des ferrofluides ioniques pourront être trouvés dans [5, 6, 7]. Les deux méthodes pour préparer les particules du colloïde magnétique d'un ferrofluide surfacté consistent : soit à réduire la taille de particules grossières, soit à faire

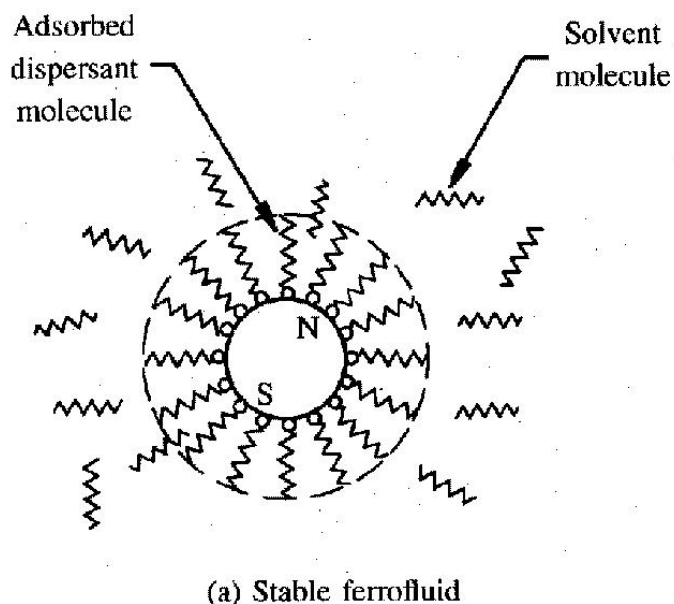
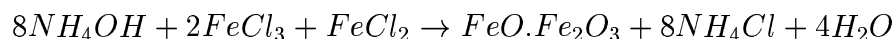


FIG. 1.2: Particule magnétique de taille 100 Å, enrobée d'une monocouche de 20 Å de surfactant [3].

précipiter des particules d'hydroxydes ferreux ou ferriques, de la taille voulue dans une solution. Dans les deux cas, l'emploi d'agent surfactant est indispensable afin d'assurer la dispersion des particules magnétiques et prévenir leur agglomération.

La méthode de broyage est la plus facile à mettre en oeuvre et fut découverte par S. Pappell en 1965. La poudre de ferrite (10 microns) est mélangée à un solvant — kérosène — en présence de surfactant — acide oléique. Le tout est broyé durant environ 500 à 1000 heures, dans un agitateur rempli de boules d'acier. En choisissant une bonne proportion des différents éléments, on obtient à la fin du procédé, un ferrofluide colloïdal contenant des particules de taille 10 nm et recouvertes d'une monocouche d'agent dispersant [2, 8].

Une autre méthode de préparation des ferrofluides surfactés est basée sur une réaction chimique de précipitation. Il existe de nombreuses méthodes de préparation de ferrofluides par précipitation. Nous décrivons ici un procédé élaboré en 1974 par Khalafalla et Reimers au Bureau des Mines U. S. [9]. Dans un premier temps, la magnétite colloïdale est fraîchement précipitée en solution aqueuse selon la réaction chimique suivante :



Dans un deuxième temps, une étape de peptisation permet de transférer les particules obtenues de la phase aqueuse vers une phase organique, qui contient un agent dispersant. Puis, les particules qui nous intéressent — particules magnétiques enrobées de surfactant — sont séparées du reste et le liquide porteur est ajouté à ces particules jusqu'à obtention de la concentration voulue.

Le broyage est la méthode la plus pratique mais pour une production à grande échelle, on préfère la précipitation. Les méthodes chimiques sont en effet plus rapides que les méthodes mécaniques — quelques heures comparé à quelques mois pour la méthode de broyage. Elles peuvent être très bon marché mais elles restent limitées à certains composés et donc certains ferrofluides.

Comme nous l'avons vu, on peut synthétiser des ferrofluides dans différents types de liquides : huiles, solvants organiques, et plus difficilement de l'eau. Voici un exemple de ferrofluide typique synthétisé (Tableau 1.2):

particules ferromagnétiques	$FeO - Fe_2O_3$
liquide porteur	$CH_3 - (CH_2)_{14} - CH_3$
agent dispersant	$CH_3 - (CH_2)_7 - CH = CH - (CH_2)_7 - CO_2H$

TAB. 1.2: Ferrofluide typique.

## 1.4 Aimantation du ferrofluide

### Superparamagnétisme

Les ferrofluides ont un comportement superparamagnétique. En l'absence de champ, les grains qui, étant donné leur taille, constituent des dipôles magnétiques élémentaires, sont orientés de façon isotrope et l'aimantation totale du ferrofluide est nulle. Lorsqu'on applique un champ magnétique au ferrofluide, les dipôles ont tendance à s'orienter selon le champ, afin de minimiser leur énergie. L'aimantation du liquide est alors non nulle et atteint une valeur de saturation lorsque tous les dipôles sont orientés selon le champ. Le ferrofluide a donc un comportement paramagnétique. La réponse des particules à un champ magnétique imposé est équivalente au phénomène de paramagnétisme observé lors de la polarisation de molécules possédant un moment dipolaire. Pour un ferrofluide, on parle de superparamagnétisme et non de paramagnétisme car sa susceptibilité magnétique  $\chi$  est de l'ordre de l'unité alors que dans un matériau paramagnétique standard,  $\chi$  est compris entre  $10^{-5}$  et  $10^{-3}$ .

Dans le cas où les interactions entre moments magnétiques élémentaires peuvent être négligées, la loi d'aimantation peut être modélisée par la loi de Langevin [3, 10]:

$$M/M_{sat} = \coth \alpha - 1/\alpha \equiv L(\alpha)$$

où  $\alpha = mH/kT$  (proportionnel à  $D^3$ ),  $m$  étant l'aimantation par particule,  $M_{sat}$  l'aimantation de saturation,  $L$  la fonction de Langevin. Sur la Figure 1.3, sont représentées les courbes de magnétisation issues de la loi de Langevin, pour différentes tailles de particules. La susceptibilité initiale est d'autant plus petite que la taille des particules est petite et croît rapidement avec cette dernière [3].

Quand la perméabilité magnétique initiale du ferrofluide est importante, il n'est plus possible de négliger les interactions entre dipôles magnétiques. Les courbes de magnétisation expérimentales ne donnent pas un bon accord avec la loi de Langevin. Il faut tenir compte de deux facteurs supplémentaires pour rendre compte de la courbe de magnétisation expérimentale :

- la distribution de la taille des particules;
- le fait que ces particules sont enrobées de surfactant, ce qui implique qu'il y a un diamètre de la particule magnétique et un diamètre de la particule globale.

Ce problème a été abordé dans [11] et nous n'en donnerons pas de détails ici.

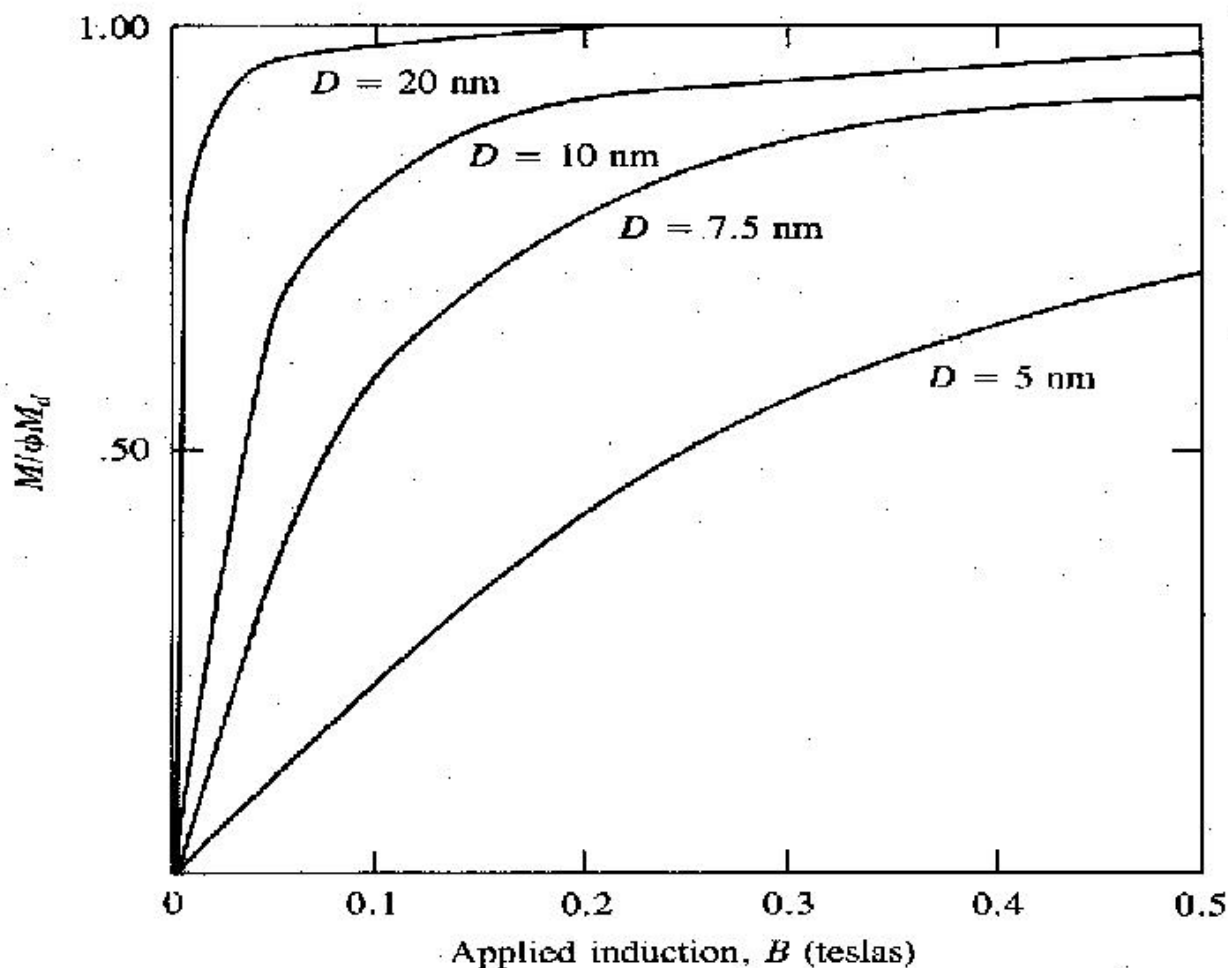


FIG. 1.3: Courbes d'aimantation calculées pour différents ferrofluides à partir de la loi de Langevin;  $D$  est la taille des particules et  $\phi M_d = M_{sat}$  est l'aimantation de saturation [3].

## 1.5 Les ferrofluides : des applications en vrac ...

Il existe de nos jours de nombreuses applications des ferrofluides. Nous allons en présenter ici quelques unes.

### Dans l'industrie

#### Joint tournant

Les premières applications commerciales des ferrofluides furent étudiées par la *Ferrofluidics Corporation*. La première d'entre toutes a été la mise au point de joints annulaires entre un arbre tournant et la structure qui le supporte. Le joint n'est constitué que de quelques gouttes de ferrofluide, maintenu par un aimant permanent formant un collier autour de l'arbre. Ces joints liquides minimisent les frottements et ne génèrent aucune poussière. Le ferrofluide est de préférence surfacté dans de l'huile, afin d'assurer aussi un rôle de lubrifiant. Ces joints assurent une très bonne étanchéité entre 2 milieux (aucune fuite).

Dans certains cas, il est nécessaire d'utiliser des joints à plusieurs étages qui résistent à des différences de pression élevées. Un joint rotatif à 160 étages peut supporter une différence de pression de 66 atmosphères, alors qu'un joint simple n'encaisse qu'une différence de pression de 0,2 atmosphères.

Ces joints se rencontrent dans les fours utilisés pour la croissance de cristaux de Silicium pour assurer l'étanchéité entre l'atmosphère et le vide du four. On les utilise aussi pour la protection des disques durs, dans les laser à gaz, les moteurs. L'étude des instabilités trouve ici toute son utilité afin de bien maîtriser l'utilisation de ces joints.

#### Haut-parleur

Une variante du joint de pression est utilisée dans la conception des haut-parleurs. L'élément fonctionnel le plus important dans la plupart des haut-parleurs est une bobine mobile cylindrique ajustée sur un aimant permanent cylindrique. Ces deux éléments sont séparés par un petit entrefer permettant à la bobine de se mouvoir. La chaleur dégagée dans la bobine mobile est dissipée plus facilement quand l'air remplissant cet espace est remplacé par un liquide, meilleur conducteur de la chaleur. Un liquide ordinaire est inutilisable car il s'écoulerait hors de l'espace, alors qu'un ferrofluide est retenu par le champ magnétique déjà présent. Ceci permet de lisser la réponse en fréquence du haut-parleur et aussi de tripler sa puissance maximum admissible.

#### Méthode de séparation par flottation

La lévitation magnétique dans un ferrofluide est utilisée pour séparer des matériaux de densités différentes. Le principe de cette méthode est le suivant : si l'on place une sphère non magnétique, dans un récipient contenant du ferrofluide moins dense que la sphère, cette



dernière coule au fond. Si l'on place le récipient entre les mêmes pôles de deux aimants identiques, la sphère s'élève du fond du récipient et se déplace vers le centre du fluide. Ce comportement s'explique de la manière suivante. L'énergie magnétique est minimale au centre du fluide. D'après la loi de Bernouilli généralisée (1.1), la pression est non uniforme dans le ferrofluide et minimale au centre, ce qui maintient la sphère en équilibre stable (Figure 1.4).

$$p + \rho U^2 / 2 + \rho gh - \mu_0 \int_0^H M dH = \text{constante} \quad (1.1)$$

où  $p$  est la pression au sein du fluide,  $U$  la vitesse,  $H$  l'induction magnétique,  $M$  l'aimantation,  $h$  l'altitude,  $\rho$  la densité du fluide et  $\mu_0$  la perméabilité magnétique du vide. Les

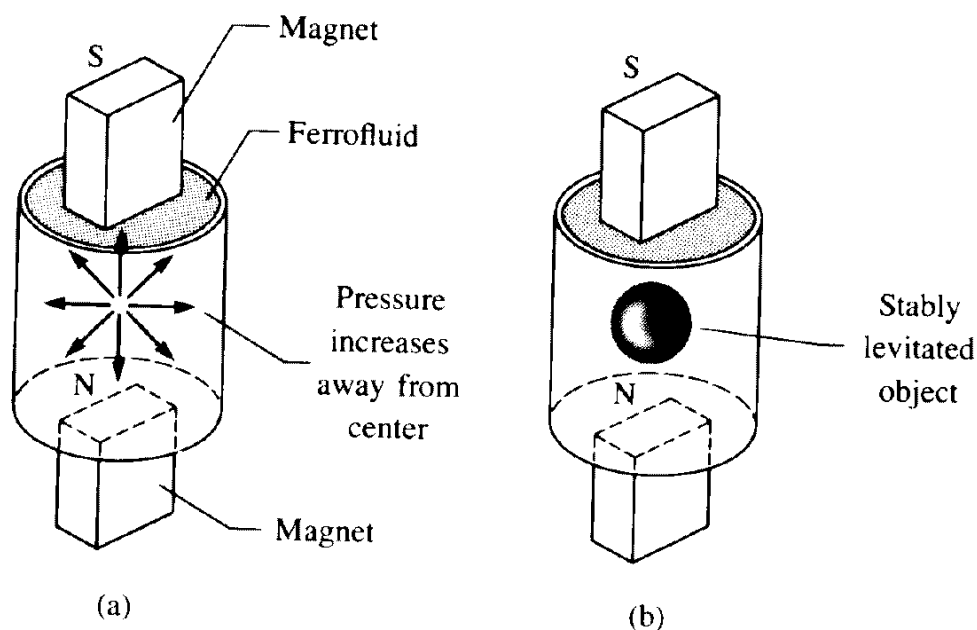


FIG. 1.4: Lévitiation d'un objet non magnétique dans un ferrofluide [3].

méthodes habituelles de séparation par flottation se révèlent inadaptées pour faire flotter des substances de densité supérieure à cinq. Par contre, les forces de lévitation magnétique que l'on peut créer sont suffisamment importantes pour faire flotter des matériaux de n'importe quelle densité. La seule limitation est que le matériau ne doit pas être magnétique. Aux États-Unis, une usine pilote de ferrofluide a été installée pour séparer des déchets métalliques industriels, dont des débris non ferreux provenant d'automobiles. Au Japon, la société *Hitachi* trie des composants d'appareils électriques domestiques en Aluminium, en Zinc et en Cuivre. Cette méthode est utilisée pour trier les diamants dans le sable de

plage par flottation sélective.

### **Les peintures magnétiques**

Les peintures magnétiques sont des suspensions colloïdales de pigments et particules ferromagnétiques, stabilisées par surfactant dans un liquide porteur. Les liquides obtenus doivent avoir une faible pression de vapeur saturante pour réaliser de bonnes peintures. Ces peintures sont plus résistantes à la corrosion [12].

## **En médecine**

### **L'hyperthermie magnétique**

L'hyperthermie consiste à chauffer des organes ou tissus entre 41 et 46 degrés Celsius, notamment pour le traitement du cancer. Ce procédé bloque la prolifération des cellules cancéreuses et améliore l'efficacité de la chimiothérapie. De plus, il cause des dommages réversibles aux cellules et tissus. Néanmoins, cette méthode a le désavantage de provoquer un réchauffement hétérogène des tissus et parfois un phénomène de "hot spot", difficile à prévoir.

Dans les années 1950, quelques groupes américains essaient de mettre en place une méthode d'hyperthermie magnétique. En effet, on a constaté que des cellules cancéreuses fixaient des particules d'oxyde de fer. Ces particules magnétiques, placées au niveau des organes ou tissus, et excitées par un champ magnétique alternatif extérieur pourraient assurer leur échauffement. Chan et al. en 1993 d'une part, puis Jordan et al. en 1996 d'autre part, présentent des études *in vitro* sur des cultures de cellules cancéreuses [13, 14]. Leurs travaux montrent que l'excitation de nanoparticules par champ alternatif conduit à une température très homogène dans la culture. En 1997, des expériences réalisées sur des souris se révèlent être très convaincantes. Dès lors, il existe une réelle volonté de progresser dans cette voie afin de pouvoir expérimenter la méthode sur des êtres humains.

### **Agents actifs encapsulés**

Il est possible d'encapsuler des protéines ou médicaments sans perte de leur activité biologique, grâce à des particules magnétiques. Le tout est acheminé via les vaisseaux sanguins vers la zone à traiter grâce à un aimant. Les agents actifs sont ensuite libérés par chauffage. Par exemple, on peut introduire des complexes ferreux dans un fluide magnétique pour traiter la déficience en fer [15].

## **Conclusion**

Les liquides magnétiques font l'objet de convoitise depuis très longtemps. Ce n'est cependant que depuis une trentaine d'années que des progrès décisifs ont été accomplis au

niveau de leur synthèse, qui ont permis d'obtenir des colloïdes concentrés et stables. Aujourd'hui, les applications de ces ferrofluides, dans de nombreux domaines, se multiplient et semblent très prometteuses. Avec les ferrofluides, nous disposons en quelque sorte d'un nouveau matériau alliant à la fois des propriétés fluides et magnétiques. Ce matériau offre la possibilité d'investir un champ encore inexploité, laissant place à l'imagination. Du point de vue de la recherche fondamentale, les ferrofluides offrent aussi de nombreuses possibilités d'études. L'instabilité de pics, l'instabilité du labyrinthe conduisent à la formation de motifs dont l'étude s'inscrit dans un cadre plus général que celui concernant uniquement les ferrofluides. Nous nous sommes intéressés à l'instabilité de pics découverte en 1967 et que nous présentons dans le prochain chapitre.

# Chapitre 2

## L'instabilité interfaciale de pics

Une grande partie de ce chapitre est consacrée à la présentation de résultats déjà acquis sur l'instabilité interfaciale de pics. Lorsqu'on applique un champ magnétique uniforme et normal à la surface libre horizontale d'un ferrofluide, une instabilité interfaciale se développe au dessus d'une valeur critique du champ magnétique  $B_{crit}$ . Cette instabilité conduit à la formation d'un réseau hexagonal de pics et a été observée pour la première fois par Cowley et Rosensweig en 1967 [16]. Nous commençons par décrire le mécanisme physique de cette instabilité interfaciale. Puis, nous présentons l'analyse statique des forces s'exerçant sur la surface du ferrofluide, qui permet de calculer les valeurs critiques de l'instabilité — aimantation critique  $M_{crit}$  et nombre d'onde critique du réseau formé  $k_{crit}$ . Ensuite, nous faisons très brièvement le point sur les contributions expérimentales et théoriques concernant l'instabilité de pics, principalement celle de Cowley et Rosensweig en 1967.

Nous décrivons le dispositif expérimental que nous avons utilisé pour étudier l'instabilité. Enfin, nous comparons l'instabilité de pics à d'autres instabilités hydrodynamiques interfaciales.

### 2.1 Analyse statique de l'instabilité

#### 2.1.1 Mécanisme de l'instabilité

Faisons le bilan des forces s'exerçant sur la surface libre du ferrofluide sous champ magnétique normal :

- force de gravité;
- force de tension interfaciale;
- force magnétique.

Les deux premières sont des forces stabilisantes de l'interface alors que la dernière a un effet déstabilisant.

Le mécanisme de l'instabilité est le suivant : la surface plane du ferrofluide présente des

petites perturbations aléatoires. En présence du champ magnétique, ces petites perturbations s'amplifient car elles concentrent les lignes de champ magnétique et ainsi, la contrainte magnétique à laquelle elles sont soumises. Il y a un phénomène d'auto-amplification des perturbations de l'interface. L'instabilité se développe quand la force magnétique dépasse les forces stabilisantes de tension superficielle et de gravité. On observe la formation d'un réseau de pics bi-dimensionnel le plus compact : le réseau hexagonal (Figures 2.1 et 2.2). Nous tenons à signaler l'expérience réalisée par Arribart et Gouyet au Laboratoire PMC à l'École Polytechnique, qui peut fournir une comparaison qualitative de notre système avec une assemblée d'aimants verticaux. Des aimants, de moment magnétique vertical, sont assujettis à se déplacer dans le même plan. L'interaction entre les aimants est de type dipôle-dipôle répulsive. Ces aimants sont montés sur des mobiles à coussin d'air. Au temps  $t = 0$ , ils sont introduits sur une table à coussin d'air horizontale de dimensions finies, et lancés de façon aléatoire. Au bout de quelques temps, l'assemblée d'aimants atteint un état d'équilibre stable : ils sont disposés sur un réseau hexagonal.



FIG. 2.1: Le réseau hexagonal de pics; vue de dessus. La distance entre pics est de l'ordre du centimètre, ainsi que la hauteur des pics.

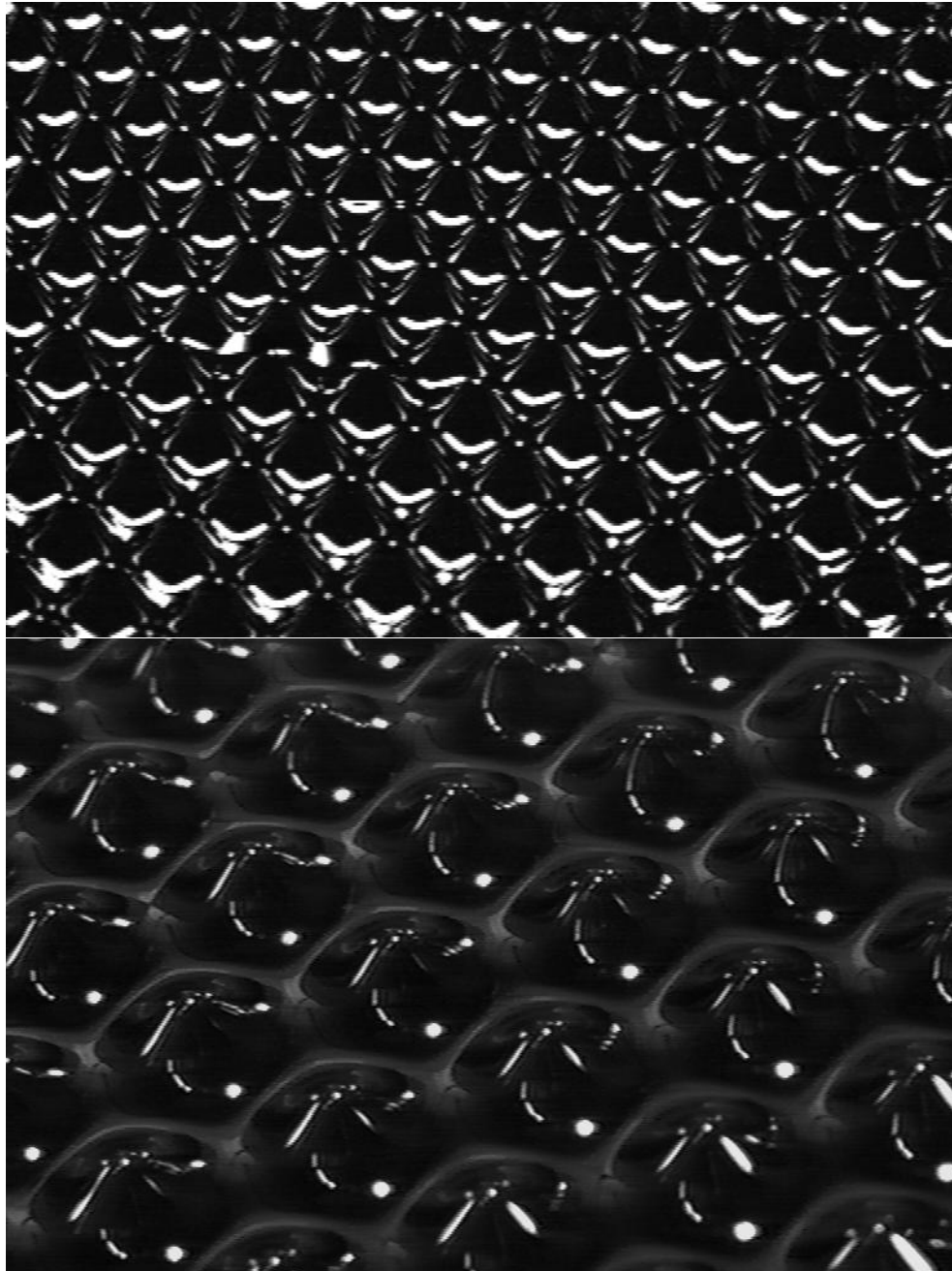


FIG. 2.2: Le réseau hexagonal de pics; vue de côté.

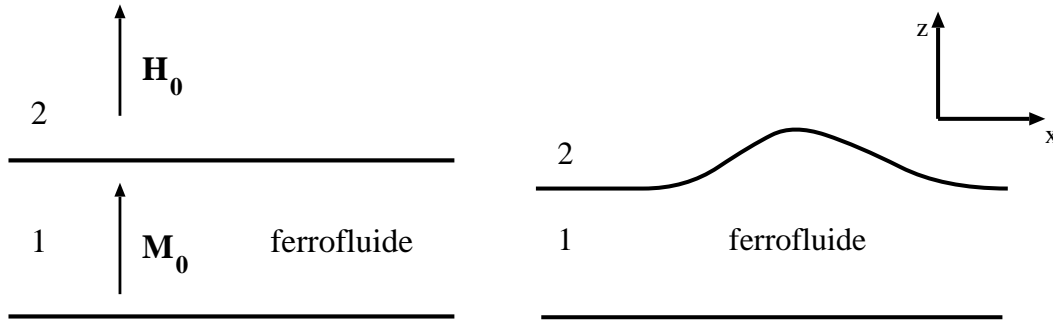


FIG. 2.3: Couche de ferrofluide soumise à un champ magnétique extérieur; déformation de l'interface.

### 2.1.2 Valeurs critiques de l'instabilité

Avant l'apparition de l'instabilité, il n'y a aucun mouvement de l'interface. Strictement au seuil, la vitesse de croissance de l'instabilité est nulle. La limite d'apparition de l'instabilité (valeurs critiques) peut donc être trouvée par une analyse purement statique. On considère une couche de ferrofluide (milieu 1) soumise à un champ magnétique extérieur vertical et placée dans un fluide non magnétique (milieu 2). On note  $\mathbf{H}_0$ , l'induction magnétique extérieure associée et  $\mathbf{M}_0$ , l'aimantation du ferrofluide en présence de champ magnétique. On note  $\Delta\rho$ , la différence de densité entre le ferrofluide et le fluide non magnétique,  $g$  l'accélération de la pesanteur,  $\mu$  la perméabilité magnétique du ferrofluide. Supposons une faible déformation à la surface du ferrofluide de la forme  $\xi = \epsilon \cos(kx)$ , de nombre d'onde  $k$  et longueur d'onde  $\lambda = 2\pi/k$ , et évaluons les forces exercées sur la crête de cette déformation [17].

#### Effets stabilisants

La surface libre du ferrofluide est stabilisée sous l'effet de la pesanteur, d'une part, et de la tension interfaciale d'autre part.

La pression hydrostatique exercée sur la perturbation conduit au terme  $-\Delta\rho g\xi$  qui tend à la faire disparaître.

La tension interfaciale introduit un terme de pression de Laplace  $\gamma/R$ . Au premier ordre, cette contribution devient  $\gamma\partial\xi^2/\partial x^2 = -\gamma k^2\xi$ , où  $R$  est le rayon de courbure de la déformation et est relié à  $\xi$  par la relation  $R \simeq -(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2})\xi$ .

#### Effet déstabilisant

Essayons d'évaluer la contribution magnétique sur l'interface. Le tenseur des contraintes  $\sigma_{ij}$  dans un milieu aimanté, linéaire, isotherme et incompressible s'écrit :

$$\sigma_{ij} = -p^* \delta_{ij} + \mu H_i H_j - \frac{\mu}{2} H^2 \delta_{ij}$$

où  $p^* = p - \Delta\rho gz$ .

Des équations de Maxwell, on tire l'équation de Laplace pour l'induction magnétique (ferrofluide non conducteur) :

$$\mathbf{H} = -\nabla\Phi$$

Le champ déformé a la même géométrie que celle de l'interface et s'écrit dans les différents milieux :

$$\begin{cases} \Phi_1 = -H_1 z + \phi_1 e^{(ikx-i\omega t)} e^{kz} \\ \Phi_2 = -H_2 z + \phi_2 e^{(ikx-i\omega t)} e^{-kz} \end{cases}$$

Au premier ordre, les vecteurs normaux et tangents à l'interface sont respectivement  $\mathbf{n} = (-ik\xi, 1)$  et  $\mathbf{t} = (1, ik\xi)$ :

Ce qui conduit à :

$$\begin{cases} H_n = H_z \\ H_t = H_x + ik\xi \end{cases}$$

On exprime la continuité de  $H_t$  et  $B_n$  et on obtient :

$$\begin{cases} \phi_1 = \frac{-\mu_0 M_0 \xi}{\mu + \mu_0} \\ \phi_2 = \frac{\mu M_0 \xi}{\mu + \mu_0} \end{cases}$$

Ceci nous indique que les lignes de champ se concentrent sur les crêtes de l'interface.

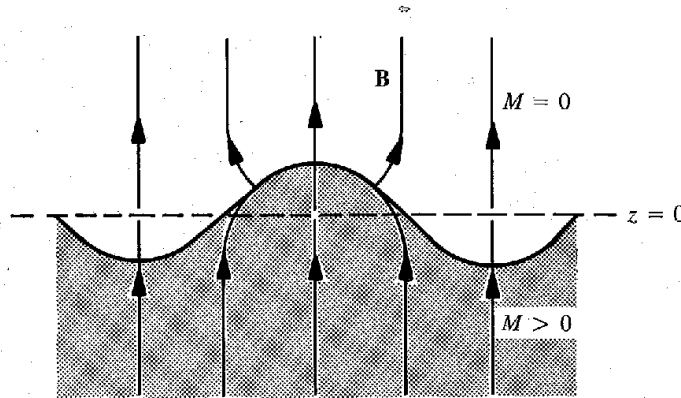


FIG. 2.4: Les lignes de champ se concentrent sur les crêtes de l'interface [3].



La différence de pression magnétostatique de part et d'autre de l'interface s'écrit :

$$\sigma_{nn}^2 - \sigma_{nn}^1 = [\mu/2(H_n^2 - H_t^2)]_1^2$$

$\sigma_{nn}$  désigne la contribution normale à l'interface du tenseur des contraintes  $\sigma_{ij}$ . On note  $[X]_1^2$ , la différence  $X^2 - X^1$ , où  $X^i$  représente la valeur de  $X$  dans le milieu  $i$ . Au premier ordre, on obtient alors la différence de pression magnétostatique (terme stabilisant) :

$$\frac{\mu\mu_0 M_0^2 k \xi}{\mu + \mu_0}$$

Cette contribution est proportionnelle à  $\xi$ . Ceci nous indique que **le fluide est aspiré par l'accroissement du champ aux crêtes**.

La force totale exercée sur la crête et dirigée vers le haut est proportionnelle à :

$$F(k) = -\Delta\rho g - \gamma k^2 + \frac{\mu\mu_0 M_0^2 k}{\mu + \mu_0}$$

Si  $F(k) < 0$ , la perturbation est atténuée et l'instabilité ne se développe pas.

Si  $F(k) > 0$ , la perturbation est amplifiée sous l'effet de la force magnétique, l'instabilité se développe.

$F(k) = 0$  correspond à la courbe de stabilité marginale qui délimite les régions stables et instables relativement à une perturbation de nombre d'onde donné.

L'instabilité de pics dans les ferrofluides peut être vue comme le résultat de l'amplification magnétique des ondes gravito-capillaires. Les valeurs critiques correspondent ici à l'aimantation minimum du ferrofluide pour que se développe l'instabilité, et au nombre d'onde correspondant. On les obtient avec les deux relations suivantes (conditions d'équilibre stable) :

$$\begin{aligned} F(k) &= 0 \\ \frac{\partial F}{\partial k}(k) &= 0 \end{aligned}$$

ce qui conduit à :

$$\begin{aligned} M_{crit}^2 &= \frac{2(\mu + \mu_0)}{\mu\mu_0} (\Delta\rho g \gamma)^{1/2} \\ k_{crit} &= (\Delta\rho g / \gamma)^{1/2} = k_c = 1/l_c \end{aligned}$$

où  $k_c$  et  $l_c$  sont respectivement le nombre d'onde capillaire et la longueur capillaire. Nous verrons plus loin, qu'on retrouve le nombre d'onde capillaire dans d'autres instabilités interfaciales hydrodynamiques.

## 2.2 L'instabilité de pics depuis 1967.

En 1967, Cowley et Rosensweig mettent en évidence l'instabilité interfaciale se développant à la surface libre d'un ferrofluide sous champ magnétique normal [16]. Parallèlement, une analyse dynamique de stabilité linéaire de l'interface entre le vide et un milieu semi-infini de ferrofluide leur permet de déterminer les valeurs critiques de l'instabilité. Ils considèrent pour cela une couche de ferrofluide infinie et non-visqueuse soumise à l'induction magnétique normale  $\mathbf{H}_0$ .

Cowley et Rosensweig modélisent le problème à l'aide de l'équation de Navier et Stokes, l'équation de continuité (fluide incompressible) et les équations de Maxwell. Puis, ils appliquent les conditions aux limites du champ magnétique à la traversée ferrofluide-vide, les conditions aux limites sur la vitesse à l'interface et aussi l'équilibre des forces à l'interface. Ils linéarisent les équations en développant les solutions en ondes planes de la forme  $A = \Re e[\hat{A}(z) \exp(st - ikx)]$ . La relation de dispersion obtenue s'écrit :

$$\rho s^2 = -\rho g k - \gamma k^3 + \frac{\mu_0(\mu_0/\mu - 1)^2}{\mu_0/\mu + 1} H_0^2 k^2 \quad (2.1)$$

où  $s$  est le taux de croissance des perturbations,  $\rho$  la densité du ferrofluide,  $k$  (le module de  $\mathbf{k}$ ) est le nombre d'onde horizontal,  $\mu$  est la perméabilité magnétique du ferrofluide,  $\gamma$  est la tension de surface du ferrofluide,  $H_0$  le module de l'induction magnétique appliquée normalement et  $g$  le champ de pesanteur. Sur la Figure 2.5, nous avons représenté les courbes  $s^2(k)$  pour différentes valeurs de l'induction magnétique  $H_0$ .

Lorsque  $H_0 = 0$ , on retrouve la relation de dispersion des ondes de surface gravito-capillaires en fluide profond [18].  $s^2$  est négatif, ce qui équivaut à un taux de croissance de l'instabilité imaginaire pur : les perturbations à l'interface sont amorties. Lorsqu'on fait croître le champ magnétique,  $s^2$  croît et devient positif pour  $H \geq H_{crit}$  : il y a alors amplification des perturbations à l'interface dans le temps comme  $e^{st}$ . La courbe  $s(k, H_0) = 0$  nous donne la courbe de stabilité marginale qui délimite les régions stables et instables relativement à une perturbation de nombre d'onde donné. Les valeurs critiques de l'instabilité sont données par l'extrémum de la courbe de stabilité marginale au seuil :

$$\begin{cases} s = 0 \\ \partial_k s = 0 \end{cases} \quad (2.2)$$

et on retrouve les résultats du paragraphe précédent pour les valeurs critiques :

$$\begin{cases} H_{crit} = \left( \frac{2}{\mu_0} \frac{(\mu_0/\mu + 1)}{(\mu_0/\mu - 1)^2} \right)^{1/2} (\rho g \gamma)^{1/4} \\ k_{crit} = (\rho g / \gamma)^{1/2} = k_c = 1/l_c \end{cases} \quad (2.3)$$

Si le vide est remplacé par un fluide non-magnétique, il suffit de remplacer  $\rho$  par  $\Delta\rho$  dans les équations (2.3).

Les valeurs critiques expérimentales, obtenues pour une interface ferrofluide-air et ferrofluide-eau, sont en bon accord avec les valeurs théoriques. Cowley et Rosensweig ont testé la validité de  $M_{crit}$  et  $k_{crit}$  en fonction de  $\Delta\rho$ .

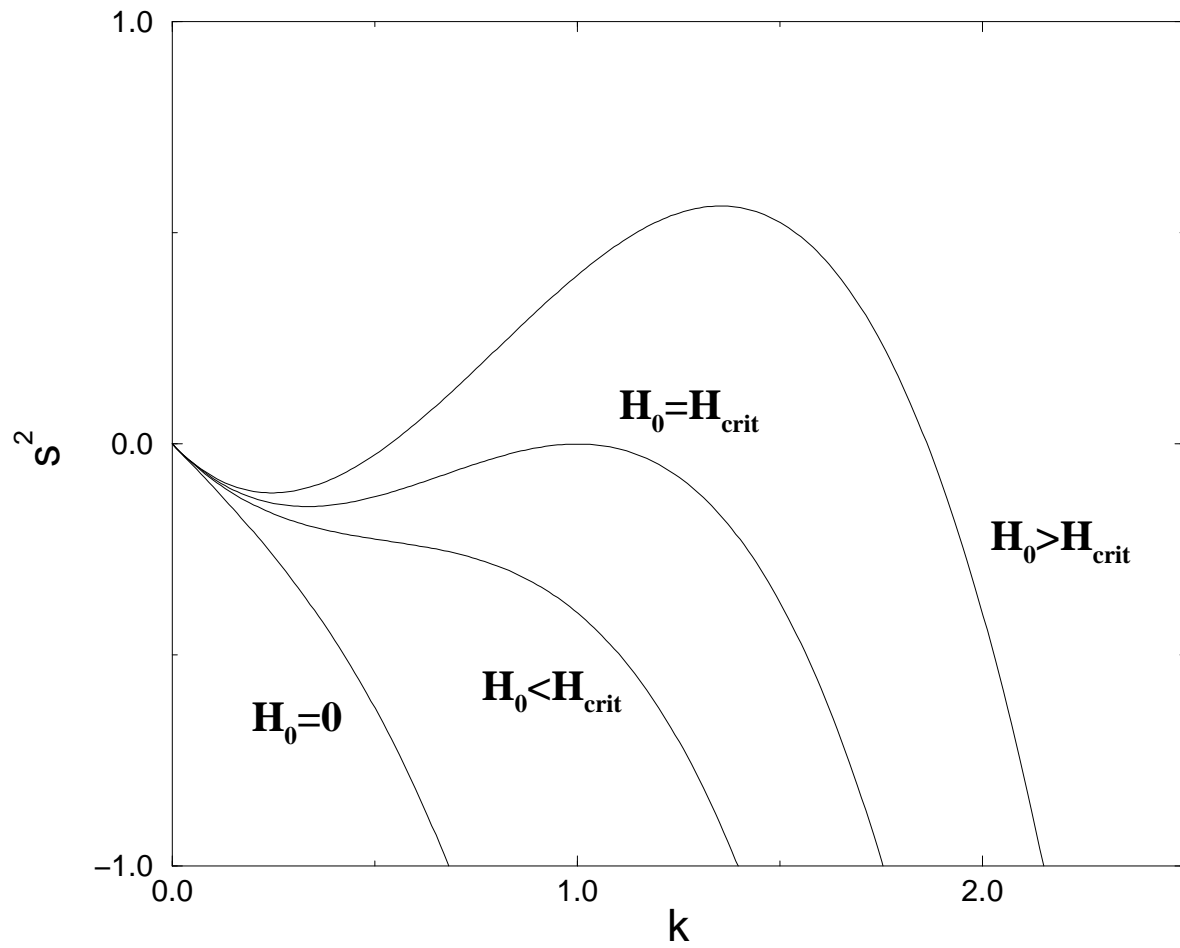


FIG. 2.5: Courbes de stabilité marginale pour différentes valeurs du paramètre de contrôle  $H_0$ ; cas d'une couche épaisse-inertielle.

Dans un réseau hexagonal, la longueur d'onde  $\lambda$  est reliée à la distance interpic  $d$  par la relation  $\lambda = \sqrt{3}/2 d$ . Ainsi, la distance interpic critique  $d_{crit}$  est reliée à la longueur capillaire par la relation  $d_{crit} = (4\pi/\sqrt{3})l_c$ . Pour un ferrofluide typique, la longueur capillaire est de l'ordre du millimètre. Ainsi, la distance interpic critique, une fois l'instabilité formée, est de l'ordre du centimètre. Le champ magnétique critique est de l'ordre de la centaine de Gauss. Dans la partie suivante, nous présentons une étude de stabilité linéaire générale d'une couche de ferrofluide d'épaisseur et de viscosité quelconques. Nous verrons que ces grandeurs critiques dépendent faiblement de l'épaisseur de la couche de ferrofluide et pas du tout de la viscosité.

Cowley et Rosensweig ont décrit les caractéristiques géométriques de l'instabilité, mais leur calcul ne donne aucune prédiction sur la symétrie du réseau de pics ou sur leur mode de croissance à partir de l'interface plane. En effet, l'analyse linéaire ne permet pas de déterminer la géométrie du réseau de pics formé. Pour aller plus loin dans les prédictions, il faut entreprendre une étude non-linéaire de la surface. Dès 1968, Zaitsev et Shliomis font une analyse non-linéaire unidimensionnelle [19]. Ils arrivent à la conclusion que l'ordre de la transition dépend de la nature plus ou moins magnétique du ferrofluide. Le problème a aussi été étudié théoriquement par une méthode énergétique par Kuznetsov et Spektor [20], Gailitis [21], Brancher [22]. Gailitis prédit que la transition vers le réseau hexagonal est toujours du premier ordre. Il prédit en outre l'existence d'une transition supplémentaire pour des valeurs du champ élevées. Cette seconde transition conduit à la formation d'un réseau carré. Nous présenterons dans le chapitre 5 l'analyse non linéaire faite par Gailitis [21]. En 1980, Twombly et Thomas confirment les résultats de Gailitis par une approche très mathématique et mettent fin au débat sur l'ordre de la transition vers le réseau hexagonal [23].

En 1985, Allais *et al.* observent expérimentalement et de façon systématique la transition hexagones-carrés [24]. En 1987, Boudouvis *et al.* montrent expérimentalement et numériquement que la transition vers le réseau hexagonal est du premier ordre et hystérique [25]. Les pics apparaissent avec une hauteur non nulle au dessus de  $B_{crit}$ . Lorsque le champ décroît, les pics de ferrofluide persistent pour une valeur de champ inférieure à  $B_{crit}$  et disparaissent soudainement. Sur la Figure 2.6, sont représentées leurs mesures expérimentales de la hauteur des pics en fonction du champ magnétique. Ce résultat avait déjà été observé par Bacri *et al.* à l'interface unidimensionnelle entre un ferrofluide très concentré et un ferrofluide moins concentré. La forte valeur de la perméabilité relative du ferrofluide ( $\mu = 40$ ) leur a permis d'observer un grand hystérésis à la transition [26].

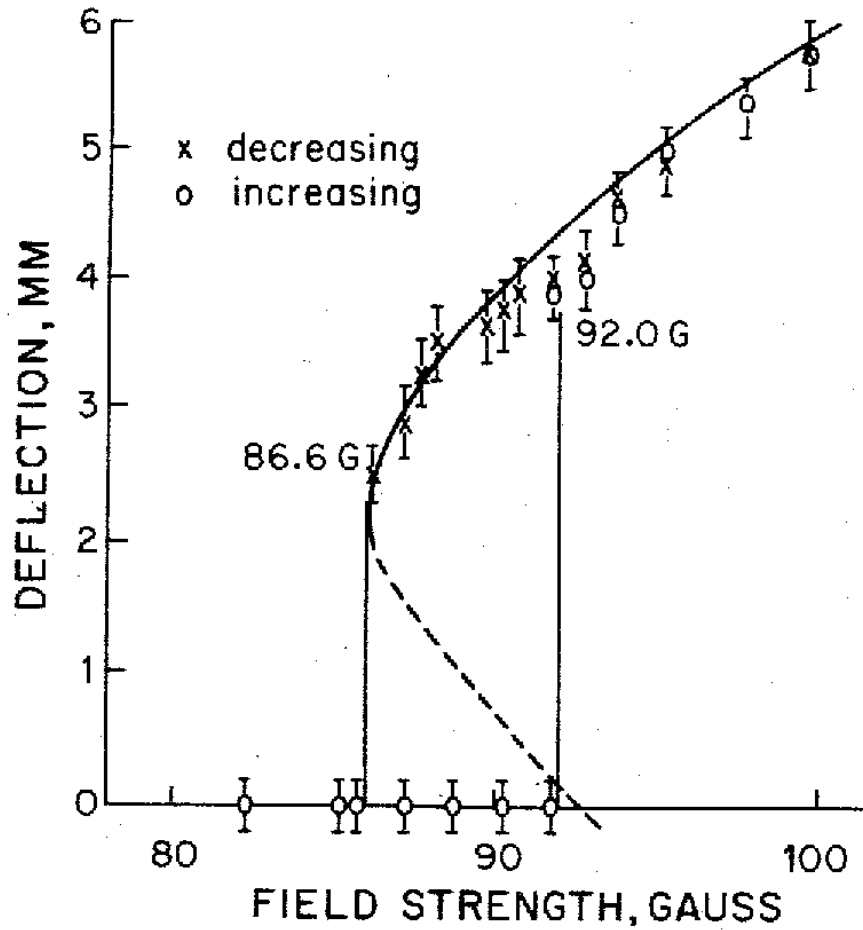


FIG. 2.6: Mesures d'hystérésis de la hauteur des pics en faisant croître puis décroître le champ magnétique [25].

## 2.3 Le dispositif expérimental

Le dispositif que nous avons utilisé est le suivant (Figure 2.7) : la cuve de ferrofluide est

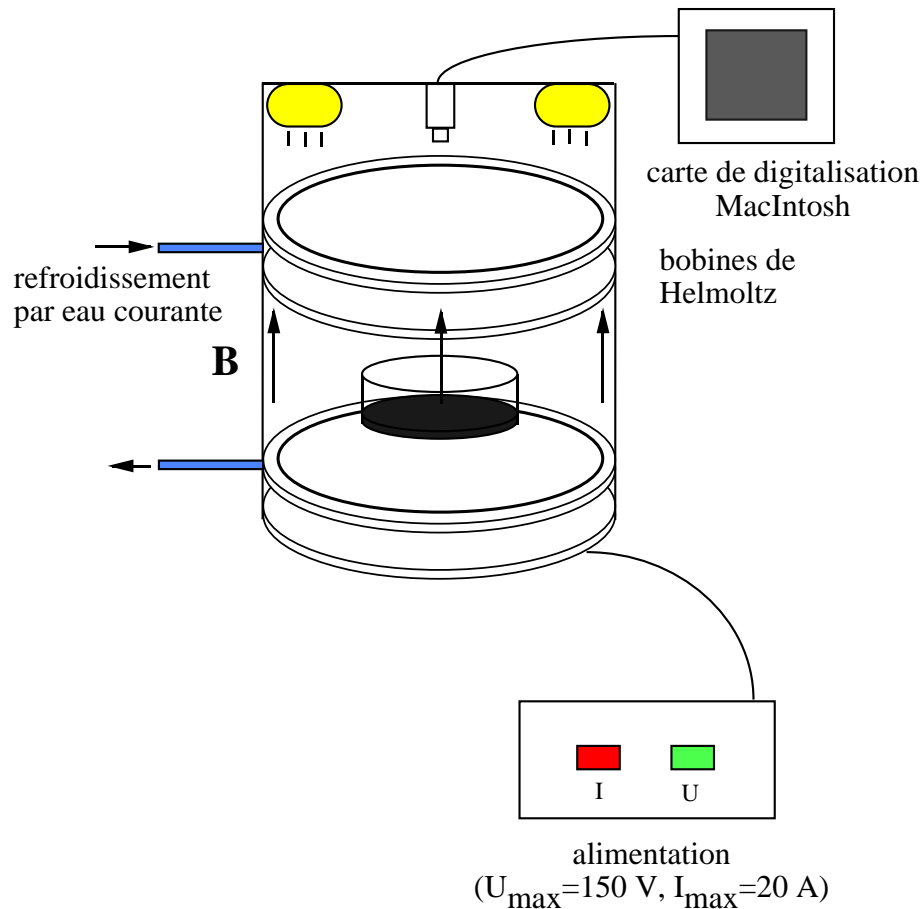


FIG. 2.7: Dispositif expérimental permettant l'étude de l'instabilité interfaciale de pics dans les ferrofluides.

placée dans un champ magnétique uniforme et vertical. Ce champ magnétique est produit par l'association de deux bobines qui sont montées en Helmholtz. Elles sont reliées à une alimentation de puissance pouvant fonctionner en source de courant ou source de tension et dont les caractéristiques en courant et tension sont les suivantes  $(I_{\max}, V_{\max}) = (20 \text{ A}, 150 \text{ V})$ . L'intensité du champ magnétique crée par les bobines dépendant directement de l'intensité du courant qui les traverse, l'alimentation est utilisée en source de courant. Un système de refroidissement par eau courante minimise la chauffe des bobines. L'intensité du champ magnétique est contrôlée et mesurée à l'aide d'une sonde à effet Hall. Il peut atteindre une valeur maximale d'environ 350 Gauss. Nous avons mesuré que le champ magnétique était uniforme à 4% sur l'étendue de la cuve hexagonale de 14 cm de côté, inscrite dans un cercle de 28 cm de diamètre. Il est uniforme à 2% sur l'étendue de la

cuve cylindrique de 16,9 cm de diamètre et celle de la cuve carrée de 12 cm de côté. Les différentes cuves de ferrofluide sont remplies jusqu'à une hauteur de  $a = 1,3$  cm.

L'acquisition des images de réseaux formés se fait par l'intermédiaire d'une caméra CCD, reliée à un MacIntosh (type MacII SI) et placée au dessus de la cuve. La cuve de ferrofluide est éclairée par dessus. Lorsque l'interface ferrofluide-air est perturbée, la lumière qui arrive sur la caméra est celle qui s'est réfléchié dans les vallées et sur les sommets de l'interface (Figure 2.1). Afin d'analyser les images prises par la caméra, nous disposons du logiciel NIH-Image<sup>1</sup>. Ce logiciel nous permet de traiter nos images par différents moyens. Soit en étalonnant la caméra afin de mesurer les longueurs d'onde des réseaux — étude du problème de sélection de longueur d'onde, chapitre 8. Soit en réalisant une transformation de Fourier bi-dimensionnelle des niveaux de gris d'une image de réseau — étude du rôle des défauts penta-hepta lors de la transition hexagones-carrés, chapitre 7.

Le ferrofluide APG 512 A, dont nous disposons, est commercialisé par la *Ferrofluidics Corporation*. Ses caractéristiques nous ont été fournies de manière approximative, afin de conserver le secret de fabrication du produit. Il est constitué de 3 – 8% en volume de magnétite, dispersée dans 60 – 78% en volume d'esther synthétique. L'agent dispersant a été introduit à raison de 18 – 30% en volume dans la solution. La pression de vapeur saturante du ferrofluide est inférieure à 1 mm Hg, ce qui lui assure une grande stabilité dans le temps. La densité du ferrofluide est  $\rho = 1,26$  g cm<sup>-3</sup>, son aimantation de saturation  $M_{sat} = 300$  Gauss, sa viscosité dynamique  $\eta = 75$  cP. La perméabilité magnétique initiale du ferrofluide  $\mu_r = 2,4$ . Sa tension interfaciale ferrofluide-air, mesurée avec un tensiomètre digital KRÜSS (type K10 ST), est  $\gamma = 28 \pm 2$  dyn cm<sup>-1</sup> à  $T = 20^\circ$  C. Les caractéristiques du ferrofluide APG 512 A sont résumées dans le Tableau 2.1 :

ferrofluide	$\rho$ (g cm <sup>-3</sup> )	$\gamma$ (dyn cm <sup>-1</sup> )	$\eta$ (cP)	$\mu_r$	$M_{sat}$ (Gauss)	$a$ (cm)
APG 512 A	1,26	28	75	2,4	300	1,3

TAB. 2.1: Paramètres du ferrofluide APG 512 A.

## 2.4 Comparaison avec d'autres instabilités interfaciales hydrodynamiques

La relation de dispersion obtenue dans le cas d'une couche de ferrofluide sous champ magnétique normal est à comparer avec celles d'autres instabilités interfaciales. Pour chacune de ces instabilités, on retrouve des facteurs stabilisants et déstabilisants de l'interface. Ces instabilités interfaciales apparaissent avec le même nombre d'onde  $k_{crit} = k_c$ , correspondant au nombre d'onde pour lequel les contributions de la pesanteur et de la tension interfaciale sont égales. Les relations de dispersion ont la même structure et montrent une déstabilisation de l'interface par un paramètre.

<sup>1</sup>développé au U.S. National Institutes of Health et disponible sur Internet à l'adresse suivante <http://rsb.info.nih.gov/nih-image/>

## L'instabilité de Rayleigh-Taylor

L'instabilité de Rayleigh-Taylor est une instabilité interfaciale pilotée par la gravité. Elle se développe entre deux fluides de densités différentes, quand le plus dense est placé au dessus du moins dense. Dans le cas de deux couches semi-infinies de fluides non visqueux, l'analyse linéaire conduit à la relation de dispersion suivante [27] :

$$(\rho_1 + \rho_2)s^2 = -(\rho_1 - \rho_2)gk - \gamma k^3$$

où  $\rho_1 - \rho_2 < 0$ ,  $\rho_1$  et  $\rho_2$  représentant les densités respectives des deux fluides,  $\gamma$  la tension interfaciale et  $g$  le champ de pesanteur. Cette instabilité se développe à  $k = k_{crit} = k_c = (\Delta\rho g/\gamma)^{1/2}$ . Par exemple, si l'on dispose une couche mince d'huile sur une plaque plane et que l'on retourne la plaque, le film d'huile est instable. L'instabilité se manifeste par l'apparition de gouttes pendantes disposées de façon périodique. Ce réseau peut être hexagonal ou carré, selon la géométrie de la plaque et la présence de défauts sur la plaque [28].

L'instabilité de Rayleigh-Taylor se présente comme le résultat de l'amplification gravitationnelle des ondes gravito-capillaires.

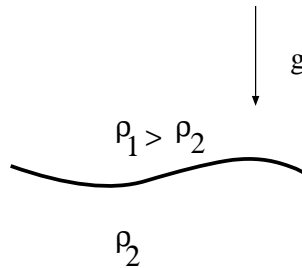


FIG. 2.8: Schéma de l'instabilité de Rayleigh-Taylor : le fluide le plus dense est placé sur le fluide le moins dense,  $\rho_1 > \rho_2$ .

## L'instabilité de Kelvin-Helmoltz

L'instabilité de Kelvin-Helmoltz se manifeste à l'interface de deux fluides glissant l'un sur l'autre à des vitesses différentes. Deux fluides incompressibles, de masse volumique  $\rho_1$  et  $\rho_2$ , animés de vitesses uniformes  $U_1$  et  $U_2$ , s'écoulent entre deux parois horizontales. Lorsque la différence de vitesses dépasse une valeur critique  $\Delta U = U_1 - U_2 = \Delta U_{crit}$ , cet écoulement devient instable. Le mécanisme de l'instabilité est le suivant : au voisinage d'une perturbation de l'interface, les lignes de courant se resserrent au-dessus des crêtes et s'écartent au dessous. Le fluide supérieur accélère au dessus des crêtes et sa pression diminue (Théorème de Bernouilli), alors que celle du fluide inférieur augmente. Il en résulte une amplification de la perturbation. La relation de dispersion obtenue après linéarisation des équations s'écrit [27] :

$$\rho_1(\omega - kU_1)^2 + \rho_2(\omega - kU_2)^2 = (\rho_1 - \rho_2)gk + \gamma k^3$$



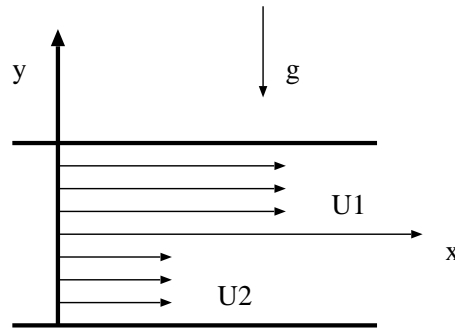


FIG. 2.9: Instabilité de Kelvin-Helmoltz : schéma de l'écoulement.

où  $\omega = -is$ . Si  $U_1 = U_2 = 0$ , on retrouve la relation de dispersion des ondes gravito-capillaires. Lorsque  $\Delta U$  croît,  $s^2$  devient positif pour  $\Delta U \geq \Delta U_{crit}$  et il y a amplification de la perturbation.

L'instabilité de Kelvin-Helmoltz est l'amplification par la différence de vitesses  $\Delta U$  des ondes gravito-capillaires.

## L'instabilité d'un fluide conducteur sous champ électrique normal

On considère une interface stable entre un liquide conducteur et un fluide non-conducteur plus léger placé au dessus, soumise à un champ électrique extérieur. Par exemple, une interface eau-air, eau-huile, ou encore mercure-air, mercure-huile [29]. Pour une valeur du champ électrique supérieure à une valeur critique, une instabilité se développe sous la forme d'un réseau hexagonal de pics. Le mécanisme de l'instabilité est similaire à celui de l'instabilité d'un ferrofluide sous champ magnétique normal. L'équation de dispersion des ondes de surface s'écrit :

$$(\rho_1 + \rho_2)s^2 = -(\rho_1 - \rho_2)gk - \gamma k^3 + \epsilon_0 k^2 (E_1^2 + E_2^2)$$

Cette instabilité électrocapillaire a été étudiée très en détail par Néron de Surgy dans le cas d'une interface mercure-vide ou mercure-huile [30].

Un autre exemple similaire, qui a été étudié est le cas d'une interface  ${}^4\text{He}$  liquide-vapeur chargée négativement (électrons) [31].

On obtient dans tous ces cas la formation d'un réseau hexagonal de pics avec un nombre d'onde  $k_{crit} = k_c$ . Cette instabilité est le résultat de l'amplification par le champ électrique des ondes gravito-capillaires.

## Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté des résultats déjà acquis sur l'instabilité de pics. L'analyse statique de stabilité permet d'obtenir les valeurs critiques de l'instabilité.

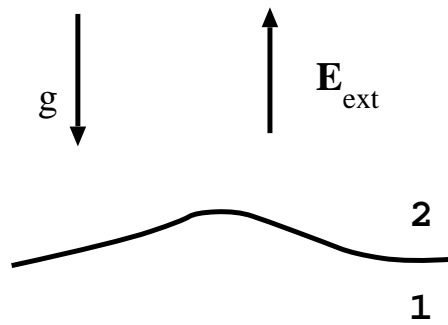


FIG. 2.10: Instabilité d'une interface chargée sous champ électrique.

Ces résultats peuvent être retrouvés par une analyse linéaire. Cowley et Rosensweig ont développé cette analyse pour une couche de ferrofluide non-visqueuse et d'épaisseur infinie. Dans le prochain chapitre, nous présentons l'analyse linéaire d'une couche de ferrofluide d'épaisseur et de viscosité quelconques. Nous avons détaillé le dispositif expérimental utilisé pour nos expériences. Enfin, nous avons vu que l'instabilité de pics est à comparer à une classe d'instabilités interfaciales.



# Chapitre 3

## Analyse linéaire à deux dimensions

L'analyse linéaire d'un problème physique consiste à considérer les équations qui décrivent le système pour ensuite les linéariser. La théorie de la stabilité linéaire suppose que la structure initiale du fluide est très légèrement perturbée. On dispose de deux solutions différentes des équations générales du mouvement : une solution stable et une solution perturbée. La théorie linéaire permet de déterminer l'évolution de cette perturbation. Cette étude, valable pour des petites perturbations de l'interface et donc près du seuil, nous fournit des informations sur les valeurs critiques de l'instabilité, sur le nombre d'onde de taux de croissance maximal, et aussi sur la vitesse de croissance de l'instabilité. L'analyse linéaire nous permet de calculer l'équation de la courbe de stabilité marginale, qui délimite dans le plan (contrainte, nombre d'onde) les régions stables et instables. Néanmoins, l'analyse linéaire ne permet pas de déterminer la géométrie du réseaux de pics qui apparaît. Quand la perturbation s'amplifie, elle ne reste plus infinitésimale, des phénomènes non-linéaires rentrent en jeu et le système peut bifurquer vers une autre structure.

Cowley et Rosensweig ont les premiers réalisé l'analyse linéaire d'une couche de ferrofluide infinie et non-visqueuse en 1967 [16]. Depuis, d'autres études ont été faites avec des hypothèses différentes, soit par linéarisation des équations, soit par approche phénoménologique du problème :

- couche infinie-inertielle (Cowley et Rosensweig 1967 [16]);
- couche mince-inertielle (Zelazo et Melcher 1969 [32]);
- couche épaisse-visqueuse (Brancher 1980 [33], Salin 1993 [34]);
- couche mince-visqueuse (Bacri et al. 1988 [35], Valet et al. 1988 [36]).

En 1996, Weillepp et al. ont réalisé une étude de stabilité linéaire incluant les effets de viscosité et d'épaisseur de la couche de fluide [37]. Les auteurs ont dégagé la dépendance des valeurs critiques en fonction de l'épaisseur de la couche. Néanmoins, cette étude visait principalement à comparer la compétition entre deux instabilités susceptibles de se produire dans la couche de ferrofluide : l'instabilité de Bénard-Marangoni et l'instabilité de pics.

Une étude expérimentale détaillée de la relation de dispersion des ondes à la surface d'un ferrofluide a été récemment réalisée [38].

Ici, nous nous intéressons à l'analyse de stabilité linéaire d'une couche de ferrofluide d'épaisseur et de viscosité quelconques [39]. Nous présentons la démarche utilisée, c'est à dire les équations qui décrivent le système puis leur linéarisation et enfin l'adimensionnement par les grandeurs caractéristiques du problème. Nous nous référons à l'étude précédemment faite par G. Néron de Surgy, dans le cas de l'instabilité électrocapillaire [40]. La relation de dispersion que nous obtenons permet dans un premier temps de montrer que les valeurs critiques dépendent de l'épaisseur de la couche de ferrofluide. Nous verrons que ceci n'est pas le cas pour l'instabilité électrocapillaire. Dans le chapitre 4, cette étude générale nous permettra de retrouver les cas particuliers précédemment cités dans les limites asymptotiques suivantes : infini-inertiel, infini-visqueux, mince-visqueux.

### 3.1 Équations du système

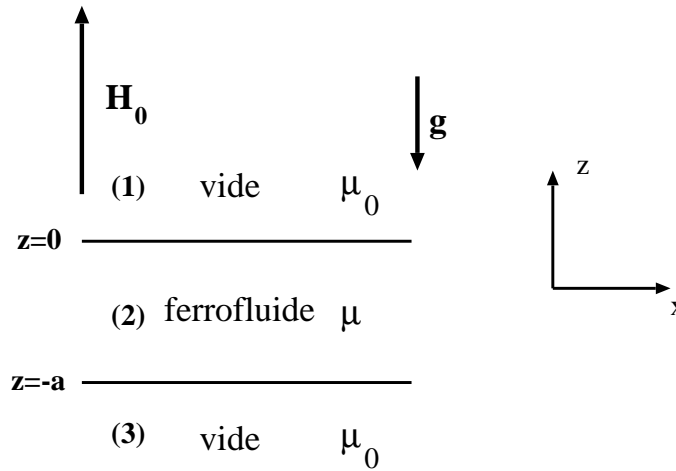


FIG. 3.1: Couche de ferrofluide dans le vide, soumise à une induction magnétique  $\mathbf{H}_0$ .

Le problème est schématisé sur la Figure 3.1 : une couche de ferrofluide d'épaisseur  $a$ , de viscosité cinématique  $\nu$ , de densité  $\rho$ , est placée dans le vide sous champ magnétique normal  $B_0 \mathbf{u}_z$ . Nous rappelons que la viscosité cinématique est reliée à la viscosité dynamique  $\eta$  par la relation  $\nu = \eta/\rho$ . Nous nous limitons à l'étude d'un système bi-dimensionnel dans le plan  $(x, z)$ . La perméabilité de la couche de ferrofluide est notée  $\mu$  et elle dépend du champ magnétique. Les inductions magnétiques selon  $(Oz)$ , dans les différents milieux sont alors :

$$H_1 = B_0/\mu_0 = H_0, \quad H_2 = B_0/\mu = \mu_0/\mu H_0, \quad H_3 = H_0$$

Nous considérons une perturbation infinitésimale du système initial. On note  $\xi(x, z)$ , la déformation de l'interface et  $\mathbf{v}(x, z)$ , le champ de vitesse au sein du ferrofluide. A l'ordre zéro

des perturbations, le ferrofluide est au repos et l'interface est plane. Soit  $\mathbf{H} = \mathbf{H}_0 + \mathbf{h}(x, z, t)$ , l'induction magnétique perturbée et enfin  $P = P_0 - \rho g z + p$  la pression perturbée au sein du milieu considéré. Nous remarquons que  $P_0 = 0$  puisqu'on considère le vide autour du ferrofluide.  $\mathbf{n}$  est le vecteur unitaire normal à l'interface où  $\mathbf{n} \simeq \partial_x \xi \mathbf{u}_x - \mathbf{u}_z$ , au premier ordre.

Afin d'abrégier les notations, on écrit  $\partial_\alpha$  pour  $\frac{\partial}{\partial \alpha}$ . Les équations qui décrivent le système sont les suivantes :

• D'une part, nous devons considérer les équations locales de mouvement du fluide. Dans le cas d'un fluide incompressible, visqueux et magnétique, l'équation de Navier-Stokes et l'équation de conservation de la masse s'écrivent respectivement :

$$\rho[\partial_t \mathbf{v} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v}] = -\nabla P + \eta \Delta \mathbf{v} + \rho \mathbf{g} \quad (3.1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (3.2)$$

Dans l'équation de Navier-Stokes ainsi écrite, nous avons négligé les termes magnétiques qui sont tous du second ordre.

• D'autre part, les équations de Maxwell dans le vide et dans le ferrofluide qui ne contient ni charges libres, ni courant s'écrivent :

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{0} \quad (3.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H} = 0$$

• Enfin, les conditions aux limites suivantes doivent être satisfaites à l'interface ferrofluide-vide (où  $[[X]] =$  valeur de  $X$  au dessus de l' interface - valeur de  $X$  au dessous de l' interface).

Considérons l'équation de l'interface ferrofluide - vide :  $G(x(t), z(t), t) = z - \xi = 0$  alors on peut écrire  $\frac{dG}{dt} = \frac{\partial G}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla)G = 0$  qui nous donne la condition cinématique à l'interface :

$$\partial_t \xi = v_z - v_x \partial_x \xi - v_y \partial_y \xi \quad \text{en } z = \xi$$

Le fluide étant visqueux, les conditions aux limites sur la vitesse du fluide sont :

$$v_z = 0, \quad v_x = 0 \quad \text{en } z = -a$$

Les relations de passage du champ magnétique entre les trois milieux s'écrivent :

$$[[\mathbf{n} \cdot \mu \mathbf{H}]] = 0 \quad \text{en } z = \xi \text{ et } z = -a$$

$$[[\mathbf{n} \times \mathbf{H}]] = 0 \quad \text{en } z = \xi \text{ et } z = -a$$

L'équilibre des forces à l'interface nous donne :

$$-[[P]]n_i + [[T_{ik} + \sigma'_{ik}]]n_k - (\gamma/R)n_i = 0 \quad \text{en } z = \xi$$

où  $T_{ik}$  est le tenseur des contraintes magnétiques s'exprimant ainsi ([16], [3]) :

$$T_{ik} = \mu H_i H_k - \frac{\mu}{2} H^2 \delta_{ik}$$

et  $\sigma'_{ik}$  est le tenseur des contraintes en fluide visqueux pour un fluide incompressible :

$$\sigma'_{ik} = \eta(\partial_{x_k} v_i + \partial_{x_i} v_k)$$

et  $R^{-1}$  est la courbure locale de l'interface (positive si dirigée vers l'intérieur du fluide) :

$$R^{-1} \simeq -\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)\xi$$

et  $\gamma$  la tension de surface du ferrofluide.

## 3.2 Linéarisation des équations

La linéarisation de ces équations va nous permettre de découpler les différentes composantes de Fourier du type  $\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$  et de les traiter indépendamment. On cherche ainsi des solutions de la forme :

$$A = \Re e[\hat{A}(z) \exp(st - ikx)]$$

pour les grandeurs suivantes  $\xi$ ,  $(h_{x,i}, h_{z,i})_{i=1,2,3}$ ,  $v_x$ ,  $v_z$ ,  $p$ .

### Calcul de la pression à l'ordre zéro

Nous calculons la pression au sein du ferrofluide à l'ordre zéro des perturbations. En utilisant l'équation qui décrit l'équilibre des forces à l'interface, nous trouvons que :

$$p = P_0 - \frac{\mu_0}{2}(1 - \mu_0/\mu) H_0^2$$

Nous retrouvons le résultat suivant : en présence du champ magnétique, à volume constant, la hauteur du ménisque croît comme  $H_0^2$ .

### Détermination du champ des vitesses dans le ferrofluide

Il nous faut résoudre l'équation de Navier-Stokes au sein du ferrofluide. En projection sur (Oz), l'équation de Navier-Stokes nous donne au premier ordre :

$$\rho s \hat{v}_z = -\partial_z \hat{p} + \eta(\partial_{z^2}^2 - k^2) \hat{v}_z \quad (3.4)$$

où  $\hat{p} = P_0 - \rho g z$ ,  $P_0 = 0$  car on considère le vide autour du ferrofluide.

En appliquant l'opération  $\mathbf{div}$  à (3.1), on obtient que  $\Delta \hat{p} = -\rho \frac{\partial^2 \hat{v}_i \hat{v}_k}{\partial x_k \partial x_i}$  ce qui entraîne qu'au premier ordre la pression satisfait l'équation de Laplace [41].

$$\Delta \hat{p} = 0 \quad (3.5)$$

Des deux équations (3.4) et (3.5), on obtient l'équation de la pression  $\hat{p}$  en fonction de la composante verticale de la vitesse  $\hat{v}_z$  :

$$\hat{p} = \eta(-s/\nu + (\partial_{z^2}^2 - k^2)) \partial_z \hat{v}_z / k^2 \quad (3.6)$$

Dans l'équation (3.4), on remplace la pression par l'expression précédente pour aboutir à une équation sur  $\hat{v}_z$  :

$$(\partial_{z^2}^2 - k^2)[(\partial_{z^2}^2 - k^2) - s/\nu]\hat{v}_z = 0 \quad (3.7)$$

En introduisant le nombre d'onde  $q$  qui satisfait  $q^2 = k^2 + s/\nu$ , l'équation (3.7) devient :

$$(\partial_{z^2}^2 - k^2)(\partial_{z^2}^2 - q^2)\hat{v}_z = 0 \quad (3.8)$$

L'équation de conservation de la masse permet de relier les composantes de la vitesse entre elles :

$$\hat{v}_x + i/k \partial_z \hat{v}_z = 0 \quad (3.9)$$

La solution générale de l'équation (3.8) s'écrit :

$$\hat{v}_z = A_1 \text{sh}k(z+a) + A_2 \text{sh}(kz) + A_3 \text{sh}q(z+a) + A_4 \text{sh}(qz)$$

et par conséquent, à partir de (3.9), on obtient :

$$\hat{v}_x = -i(A_1 \text{ch}k(z+a) + A_2 k \text{ch}(kz) + A_3 q \text{ch}q(z+a) + A_4 q \text{ch}(qz))$$

## Détermination des champs dans les différents milieux

Les équations de Maxwell (3.3) conduisent au système d'équations suivant pour l'induction magnétique perturbée dans les trois milieux :

$$\begin{aligned} \partial_{z^2}^2 \hat{h}_x - k^2 \hat{h}_x &= 0 \\ \partial_{z^2}^2 \hat{h}_z - k^2 \hat{h}_z &= 0 \\ \partial_x \hat{h}_x + \partial_z \hat{h}_z &= 0 \end{aligned}$$

Ce qui conduit pour les différents milieux à :

$$\begin{aligned} \hat{h}_{x,1} &= A_5 e^{-kz} & \hat{h}_{z,1} &= -iA_5 e^{-kz} \\ \hat{h}_{x,2} &= A_6 e^{-kz} + A_7 e^{k(z+a)} & \hat{h}_{z,2} &= -iA_6 e^{-kz} + iA_7 e^{k(z+a)} \\ \hat{h}_{x,3} &= A_8 e^{k(z+a)} & \hat{h}_{z,3} &= iA_8 e^{k(z+a)} \end{aligned}$$

## Conditions aux limites

La condition cinématique à l'interface nous conduit à :

$$s\hat{\xi} = A_1 \text{sh}(ka) + A_3 \text{sh}(qa) \quad (3.10)$$

Les conditions aux limites sur la vitesse en  $z = -a$  conduisent aux deux équations suivantes :

$$A_2 \text{sh}(ka) + A_4 \text{sh}(qa) = 0 \quad (3.11)$$

$$A_1 + A_2 \text{ch}(ka) + A_3 q/k + A_4 q/k \text{ch}(qa) = 0 \quad (3.12)$$



Les relations de passage du champ nous donnent :

$$\mu A_6 - \mu A_7 e^{ka} - \mu_0 A_5 = 0 \quad (3.13)$$

$$\mu_0 A_8 + \mu A_6 e^{ka} - \mu A_7 = 0 \quad (3.14)$$

$$A_6 + A_7 e^{ka} - A_5 - ik\hat{\xi}H_0(\mu_0/\mu - 1) = 0 \quad (3.15)$$

$$A_6 e^{ka} + A_7 - A_8 = 0 \quad (3.16)$$

L'équilibre des forces à l'interface en  $z = \xi$ , projetée sur (Ox) et (Oz) donne respectivement :

$$2A_1 k^2 \text{sh}(ka) + A_3 \text{sh}(qa)(k^2 + q^2) = 0 \quad (3.17)$$

$$2\eta k + \frac{\eta s}{\nu k} \text{ch}(ka) A_1 + (2\eta k + \frac{\eta s}{\nu k}) A_2 + 2\eta q \text{ch}(qa) A_3 \\ + 2\eta q A_4 + i\mu_0 H_0 A_5 + (\rho g + \gamma k^2) \hat{\xi} - i\mu_0 H_0 A_6 + i\mu_0 H_0 e^{ka} A_7 = 0 \quad (3.18)$$

Au premier ordre, on obtient un système de neuf équations à neuf inconnues  $\hat{\xi}, A_i, (i = 1, \dots, 8)$ . La solution triviale donne une surface plane, sans mouvement de fluide. Pour obtenir une solution non triviale, le déterminant suivant doit être égal à zéro. Ceci nous conduit à la relation de dispersion  $s = s(H_0, k)$  du système.

$$\begin{vmatrix} 0 & \text{sh}(ka) & 0 & \text{sh}(qa) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ k & k\text{ch}(ka) & q & q\text{ch}(qa) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ (2\eta k + \frac{\eta s}{\nu k})\text{ch}(ka) & 2\eta k + \frac{\eta s}{\nu k} & 2\eta q \text{ch}(qa) & 2\eta q & i\mu_0 H_0 & \rho g + \gamma k^2 & -i\mu_0 H_0 & i\mu_0 H_0 e^{ka} & 0 \\ 2\eta k^2 \text{sh}(ka) & 0 & \eta(k^2 + q^2)\text{sh}(qa) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & e^{ka} & 1 & -1 \\ \text{sh}(ka) & 0 & \text{sh}(qa) & 0 & 0 & -is & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & e^{ka} & -1 & \mu_0/\mu \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & -ikH_0(\mu_0/\mu - 1) & 1 & e^{ka} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \mu_0/\mu & 0 & -1 & e^{ka} & 0 \end{vmatrix} = 0$$

La relation de dispersion obtenue après simplification et calcul du déterminant est la suivante :

$$4\eta^2 q k (q - k \coth(qa) \coth(ka)) \\ - (2\eta k + \rho s/k)^2 (q \coth(ka) \coth(qa) - k) + \frac{4qk\eta(2\eta k + \rho s/k)}{\text{sh}(qa)\text{sh}(ka)} \\ = \frac{\rho}{k} (\rho g + \gamma k^2 - H_0^2 k \frac{1 + \mu_0/\mu}{1 + \frac{\mu_0/\mu}{1+F(ka)}}) (q \coth(qa) - k \coth(ka)) \quad (3.19)$$

où

$$F(ka) = \frac{(1 - \mu/\mu_0)e^{-ka}}{(1 + \mu/\mu_0 \coth(ka))\text{sh}(ka)}$$

### 3.3 Échelles caractéristiques du problème

Nous allons maintenant adimensionner le problème étudié. Pour cela, il nous faut considérer les échelles caractéristiques du problème. Nous avons vu au chapitre 2 que l'instabilité de pics représentait l'amplification magnétique des ondes gravito-capillaires. Nous allons nous appuyer sur les échelles caractéristiques communément dégagées lorsqu'il s'agit d'instabilités interfaciales, impliquant des ondes gravito-capillaires, comme l'instabilité de Rayleigh-Taylor d'un film mince [42].

Considérons les effets de la gravité et de la tension interfaciale et par la-même les forces de rappel par unité de largeur de l'écoulement sur une perturbation de type  $\xi = \epsilon \cos(kx)$ . La force de rappel due à la gravité est de l'ordre de  $\rho g \xi / k$  et est d'autant plus grande que la longueur d'onde est grande. La force de rappel due à la tension interfaciale est de l'ordre de  $\gamma k \xi$  et est d'autant plus grande que la longueur d'onde est petite. La gravité stabilise les grandes longueurs d'onde alors que la tension interfaciale stabilise les courtes longueurs d'onde. Les deux contributions stabilisatrices sont égales pour le nombre d'onde capillaire  $k_c$ , qui nous permet de définir la longueur capillaire  $l_c$ .

$$k_c = 1/l_c$$

$$l_c = (\gamma/\rho g)^{1/2}$$

Ceci nous amène à utiliser la longueur capillaire  $l_c$  comme longueur de référence. A partir de cette longueur capillaire, on peut aussi construire un temps et une pression capillaires dont les expressions sont consignées dans le Tableau 3.1. Les valeurs numériques des grandeurs

longueur capillaire	$l_c = (\gamma/\rho g)^{1/2}$
temps capillaire	$t_c = (l_c/g)^{1/2}$
pression capillaire Laplace	$p_c = \gamma/l_c$

TAB. 3.1: Grandeurs capillaires.

capillaires pour le ferrofluide APG 512 A sont présentées dans le Tableau 3.2 :

$l_c = 0,15 \text{ cm}$	$t_c = 0,012 \text{ s}$	$p_c = 1,86.10^2 \text{ dyn cm}^{-2}$
-------------------------	-------------------------	---------------------------------------

TAB. 3.2: Valeurs numériques des grandeurs capillaires pour le ferrofluide APG 512 A.

Pour prendre en compte les effets liés à la viscosité, on introduit la longueur visqueuse [30], [42], [43] :

$$l_v = \nu^{2/3} g^{-1/3}$$

Pour notre ferrofluide,  $l_v = 7,1.10^{-2} \text{ cm}$ . Cette longueur se construit assez naturellement à partir de la viscosité  $\nu$  ( $\text{cm}^2/\text{s}$ ) et des grandeurs du problème, ici  $g$  l'accélération de la pesanteur ( $\text{m}/\text{s}^2$ ). Cette longueur peut être obtenue à partir de considérations physiques

suivantes : on considère la propagation d'une onde de gravité à la surface d'un fluide visqueux peu profond, de profondeur  $l$  et de viscosité cinématique  $\nu$ . La vitesse de l'onde est  $v = (gl)^{1/2}$  et nous permet de définir un temps caractéristique  $\tau_g$ . Soit  $\tau_\nu$ , le temps de diffusion de la vorticit .

$$\tau_\nu = l^2/\nu, \quad \tau_g = (l/g)^{1/2}$$

Ces deux temps caract ristiques sont  gaux pour une longueur  $l = l_\nu$ , appel e longueur visqueuse, telle que :

$$l_\nu = \nu^{2/3} g^{-1/3}$$

Nous verrons que selon la valeur du rapport  $l_c/l_\nu$ , deux comportements diff rents de la couche de ferrofluide (visqueuse ou inertielle) peuvent  tre d gag s de l'analyse lin aire. Plus particuli rement, nous notons  $f = (l_\nu/l_c)^{3/2}$ , le param tre qui nous permettra de comparer les effets visqueux aux effets inertiels.

Afin d'adimensionner les effets magn tiques, on choisit le champ critique de l'instabilit  de pics. On d finit ainsi :

$$\Phi = H_0^2/H_{crit}^2$$

o   $H_{crit}$  est le champ critique en couche  paisse et inertielle, d termin  par Cowley et Rosenweig [16].

Nous avons adimensionn  la relation de dispersion (3.19) avec les grandeurs capillaires comme r f rence, ainsi que le champ critique comme r f rence de la contribution magn tique du probl me. On note :

$$\begin{aligned} x' &= x/l_c & z' &= z/l_c & a' &= a/l_c \\ \xi' &= \xi/l_c & k' &= kl_c & q' &= ql_c \\ s' &= st_c & q'^2 &= k'^2 + s'/f & \Phi &= H_0^2/H_{crit}^2 \end{aligned}$$

La relation de dispersion  $s' = s'(\Phi, k')$  est une  quation implicite. Dor navant nous enl verons les  $'$  et consid rerons la forme adimensionn e de l' quation de dispersion :

$$\begin{aligned} &4qk^3(q - k \coth(qa) \coth(ka)) \\ &- (k^2 + q^2)^2(q \coth(ka) \coth(qa) - k) + \frac{4qk^2(k^2 + q^2)}{\text{sh}(qa)\text{sh}(ka)} \\ &= \frac{1}{f^2} \left( k + k^3 - 2\Phi k^2 \frac{1 + \mu_0/\mu}{1 + \frac{\mu_0/\mu}{1+F(ka)}} \right) (q \coth(qa) - k \coth(ka)) \end{aligned} \quad (3.20)$$

Nous pouvons d velopper l' quation (3.20) quand  $s$  tend vers 0 ( $s = 0$  est une racine de l' quation (3.20)). Nous consid rons alors que  $\delta k = q - k \sim \frac{s}{2fk^2}$  et nous obtenons la relation  $k + k^3 - 2\Phi k^2 \frac{1 + \mu_0/\mu}{1 + \frac{\mu_0/\mu}{1+F(ka)}} \sim \delta k$ .

$\delta k = 0$  (i.e.  $s = 0$ ) conduit   la courbe de stabilit  marginale d'une couche de ferrofluide visqueuse d' paisseur  $a$  :

$$k + k^3 - 2\Phi k^2 \frac{1 + \mu_0/\mu}{1 + \frac{\mu_0/\mu}{1+F(ka)}} = 0 \quad (3.21)$$

Les valeurs critiques de l'instabilité  $k_{crit}$  et  $\Phi_{crit}$  découlent de la relation (3.21). Elles représentent le minimum dans l'espace  $(k, \Phi)$  de la courbe de stabilité marginale :

$$\Phi_{crit}(k) = \frac{1 + \mu_0/\mu + F(ka)}{2(1 + F(ka))(1 + \mu_0/\mu)}(1 + 1/k) \quad (3.22)$$

$$\partial_k \Phi_{crit}(k) = 0 \quad (3.23)$$

$k_{crit}$  et  $\Phi_{crit}$  dépendent de l'épaisseur de la couche de ferrofluide  $a$  (Figure 3.2)([3], [37]). Nous remarquons que les valeurs critiques ne dépendent pas de la viscosité. En effet, au seuil, la vitesse de croissance de l'instabilité est nulle. Avant apparition de cette dernière, il n'y a aucun mouvement de l'interface.

### 3.4 Analogie avec l'instabilité électrocapillaire

Lorsqu'une couche de métal liquide est soumise à un champ électrique normal, une instabilité interfaciale se développe sous la forme d'un réseau hexagonal de pics, au dessus d'un certain champ critique. Ceci est bien connu depuis les travaux de Larmor [44] et Rayleigh [45]. Depuis l'étude de cette instabilité a été approfondie par Néron de Surgy en 1993 [30]. Néron de Surgy a fait une analyse linéaire complète pour une couche de métal liquide d'épaisseur finie et visqueuse. L'étude d'une couche de ferrofluide et d'une couche de métal sont très proches bien que différentes. Les équations sont les mêmes à l'exception des équations de Maxwell et des conditions de passage du champ qui sont celles du champ électrique. Néanmoins, il ne suffit pas de substituer dans les équations finales  $\mathbf{B}$  à  $\mathbf{E}$  pour retrouver nos résultats. De même, le comportement des valeurs critiques est différent puisqu'il ne dépend pas de l'épaisseur de la couche. Ceci provient du fait qu'à l'intérieur de la couche de métal, le champ ne pénètre pas, il est nul.

## Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté puis linéarisé les équations du problème. Ceci nous a permis d'obtenir une relation de dispersion générale prenant en compte les effets de viscosité et d'épaisseur de la couche de ferrofluide. Nous avons ensuite dégagé les échelles caractéristiques du problème, afin de l'adimensionner. La relation de dispersion obtenue nous indique que les valeurs critiques dépendent faiblement de l'épaisseur de la couche de ferrofluide.

Nous allons maintenant étudier la relation de dispersion dans différents cas asymptotiques correspondant aux configurations expérimentales suivantes : couche mince ou infinie, couche inertielle ou visqueuse. Le nombre d'onde de taux de croissance maximal sera dégagé pour chaque cas asymptotique ainsi que la vitesse de croissance et les valeurs critiques de l'instabilité. Notre étude nous permettra aussi de définir le régime de notre expérience à partir des caractéristiques de la couche de ferrofluide.

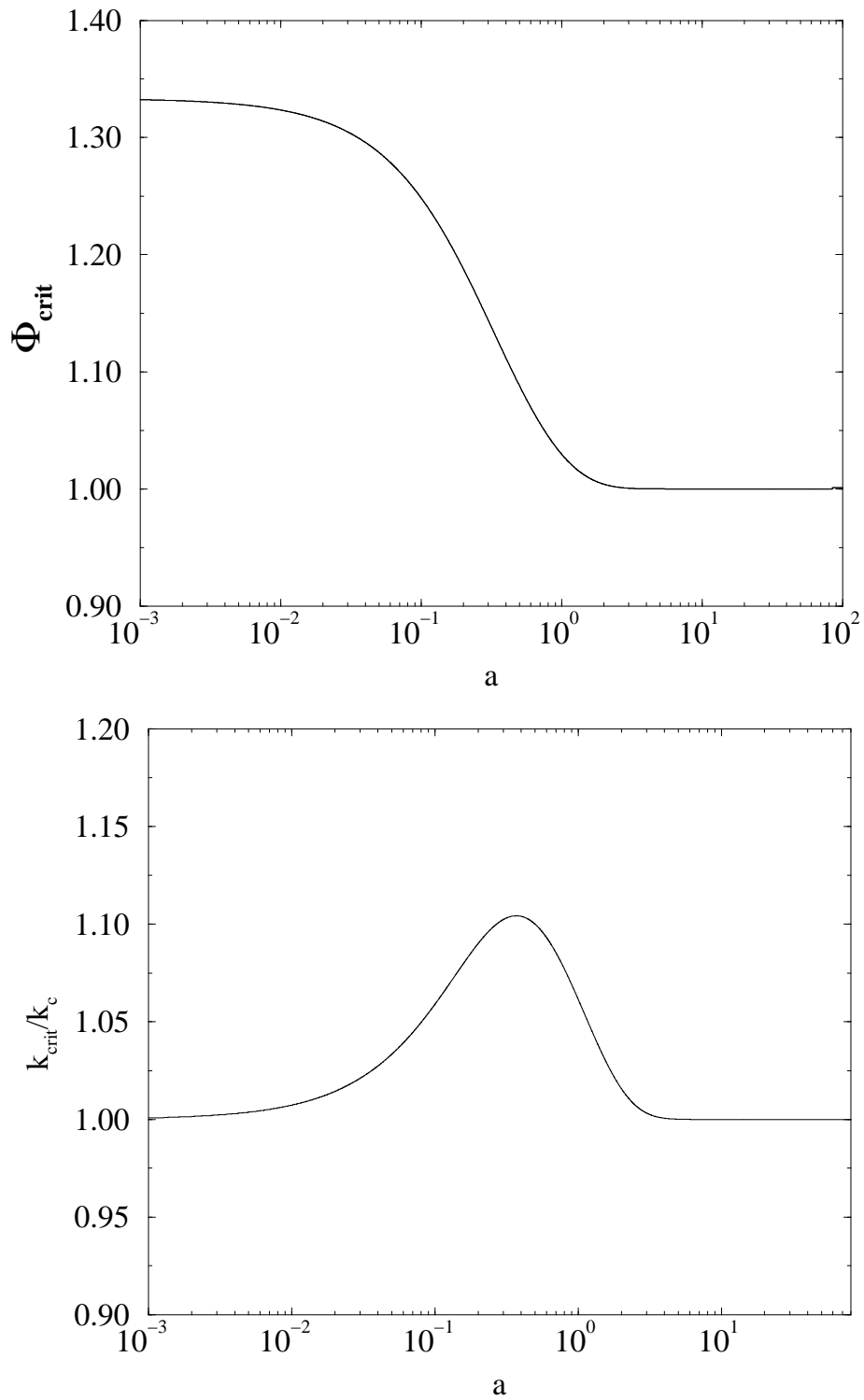


FIG. 3.2: Dépendance du champ magnétique et du nombre d'onde critiques en fonction de l'épaisseur de la couche.

# Chapitre 4

## Les régimes asymptotiques de la relation de dispersion

Dans ce chapitre, nous simplifions la relation de dispersion générale (3.20) obtenue dans le chapitre précédent. Pour cela, nous nous intéressons particulièrement aux quatre cas asymptotiques de la couche de ferrofluide :

- couche épaisse-inertielle;
- couche épaisse-visqueuse;
- couche mince-visqueuse;
- couche mince-inertielle.

On remarque que ces cas limites nous permettront de retrouver les relations de dispersion déjà calculées dans ces cas particuliers, par linéarisation des équations ou par abord semi-phénoménologique. Afin de comparer les effets de la viscosité aux effets inertiels, nous introduisons le nombre de Reynolds  $Re$ . Parallèlement, le produit  $ka$  nous permettra de définir l'épaisseur du régime, en comparant l'épaisseur de la couche à la longueur d'onde de l'instabilité. Nous exprimerons les domaines de validité des différents régimes. Ceci nous permettra notamment de positionner nos expériences dans le cadre de la théorie linéaire. Les domaines de validité seront exprimés à l'aide de l'épaisseur de la couche  $a$  et du paramètre  $f = (l_v/l_c)^{3/2}$ , caractéristique du ferrofluide, introduit au chapitre précédent. Il ne faut pas oublier que l'étude qui suit est réalisée avec des grandeurs adimensionnées (chapitre 3). Ainsi,  $a \ll 1$  signifie  $a \ll l_c$ . Pour chaque régime, nous exprimons les valeurs critiques de l'instabilité, ainsi que le nombre d'onde de taux de croissance maximal  $k_m$  et le taux de croissance  $s_m$  associé. Nous montrons que le comportement visqueux ou inertiel du ferrofluide au-dessus du seuil dépend du paramètre  $f$  de la couche de fluide.

## 4.1 Les différents régimes

Nous allons définir les paramètres qui mesurent le comportement de la couche de ferrofluide. Nous nous référons à l'étude précédemment faite par Néron de Surgy pour l'instabilité électrocapillaire [30].

**épaisseur :** pour la couche de ferrofluide, il existe deux échelles de longueur. Une échelle horizontale  $l_x$  qui est la longueur d'onde de l'instabilité  $\lambda/2\pi$ , à un facteur multiplicatif près. Une échelle verticale  $l_z$  qui est l'épaisseur de la couche  $a$ , si cette dernière est mince, ou la longueur d'onde si elle est épaisse. Autrement dit,  $l_z = \min(a, \lambda/2\pi)$ .

Pour déterminer le régime d'épaisseur, nous comparons l'épaisseur de la couche  $a$  à la longueur d'onde de l'instabilité  $\lambda/2\pi$ . Nous dirons que la couche est **épaisse** ou d'épaisseur infinie si  $\lambda/2\pi \ll a$  ( $ka \gg 1$ ) et **mince** si  $\lambda/2\pi \gg a$  ( $ka \ll 1$ ).

**viscosité :** les effets de la viscosité d'un écoulement sont mesurés par le nombre de Reynolds, défini comme le rapport de forces inertielles sur les forces visqueuses, dans l'équation de Navier-Stokes. Le nombre de Reynolds s'écrit :

$$Re = \frac{|\rho \partial_t v|}{|\eta \Delta v|} \simeq \frac{|s|}{\nu[(1/l_x)^2 + (1/l_z)^2]}$$

Si  $Re \gg 1$ , la viscosité de l'écoulement est négligée et la couche de ferrofluide est dite **inertielle**.

Si  $Re \ll 1$ , la couche de ferrofluide sera dite **visqueuse**.

Pour une couche épaisse, l'échelle verticale est  $\lambda/2\pi$  et le nombre de Reynolds s'écrit :

$$Re = \frac{|s|}{2\nu k^2}$$

et pour une couche mince, l'échelle verticale est  $a$  et celui-ci devient :

$$Re = \frac{|s|a^2}{\nu}$$

Récapitulons ces résultats dans le Tableau (4.1) en utilisant les grandeurs caractéristiques du problème définies au chapitre précédent dans le paragraphe 3.3 :

épais-inertiel	épais-visqueux	mince-inertiel	mince-visqueux
$\frac{s}{2fk^2} \gg 1$	$\frac{s}{2fk^2} \ll 1$	$\frac{sa^2}{f} \gg 1$	$\frac{sa^2}{f} \ll 1$
$ka \gg 1$	$ka \gg 1$	$ka \ll 1$	$ka \ll 1$

TAB. 4.1: Les différents régimes de la couche de ferrofluide.

## 4.2 Couche épaisse

L'équation (3.20) peut être simplifiée dans le cas d'une couche supposée épaisse c'est à dire pour  $ka \gg 1$ . Ceci nous conduit à l'équation suivante :

$$4qk^3 - (k^2 + q^2)^2 = \frac{1}{f^2}(k + k^3 - 2\Phi k^2)$$

que l'on réécrit ainsi :

$$16(k^2 + s/f)k^6 = [(2k^2 + s/f)^2 - 1/f^2(-k^3 - k + 2\Phi k^2)]^2 \quad (4.1)$$

On considère maintenant deux cas : celui d'une couche inertielle ou visqueuse.

### Couche épaisse et inertielle

Dans le cas où  $Re \gg 1$  i.e.  $\frac{|s|}{2fk^2} \gg 1$ , le comportement de la couche de ferrofluide est inertielle. L'équation (3.20) devient l'équation bien connue de Cowley and Rosensweig, Zelazo et Melcher [16, 32]:

$$s^2 = -k^3 + 2\Phi k^2 - k \quad (4.2)$$

Les paramètres critiques de l'instabilité sont  $\Phi_{crit} = H_0^2/H_{crit}^2 = 1$  et  $k_{crit} = 1$ .

Il est intéressant de regarder le comportement du nombre d'onde correspondant au taux de croissance maximal des perturbations. Sachant que la déformation de l'interface  $\xi$  est choisi telle que  $\xi \propto e^{st-ikx}$  dans le cadre de l'analyse linéaire,  $k_m$  représente le nombre d'onde qui "pousse le plus vite". Celui-ci est donné par la relation  $\partial_k s^2 = 0$  et on trouve qu'il dépend du champ magnétique. Nous en déduisons aussi l'expression du taux maximal  $s_m$  :

$$k_m = \frac{1}{3}(2\Phi + \sqrt{4\Phi^2 - 3})$$

$$s_m = \frac{\sqrt{2}}{3\sqrt{3}}(2\Phi + \sqrt{4\Phi^2 - 3})\sqrt{\sqrt{4\Phi^2 - 3} - \Phi}$$

Les comportements de  $k_m$  et  $s_m$  en fonction de  $\Phi$  sont représentés sur la Figure 4.1.

Nous introduisons le paramètre  $\varepsilon$  tel que  $\Phi = 1 + \varepsilon$  et le paramètre  $\delta k$ , où  $k = 1 + \delta k$  (où  $\delta k$  dépend du nombre d'onde réellement sélectionné). Près du seuil, on développe le taux de croissance  $s(\Phi, k)$  en une série de  $\varepsilon$  et  $\delta k$ . Nous trouvons à l'ordre le plus bas en  $\varepsilon$  et  $\delta k$  ( $\varepsilon$  et  $\delta k$  indépendants) :

$$s^2(\Phi = 1 + \varepsilon, k = 1 + \delta k) = s^2(\varepsilon, \delta k) = 2\varepsilon - \delta k^2$$

On retrouve le résultat connu qu'une bande de nombre d'onde, de largeur  $\varepsilon^{1/2}$ , est instable près du seuil [46]. Ceci signifie que l'ordre de grandeur  $\delta k^2$  est au plus  $\varepsilon$  de telle façon que nous pouvons considérer  $s^2$  du même ordre de grandeur que  $\varepsilon$ .



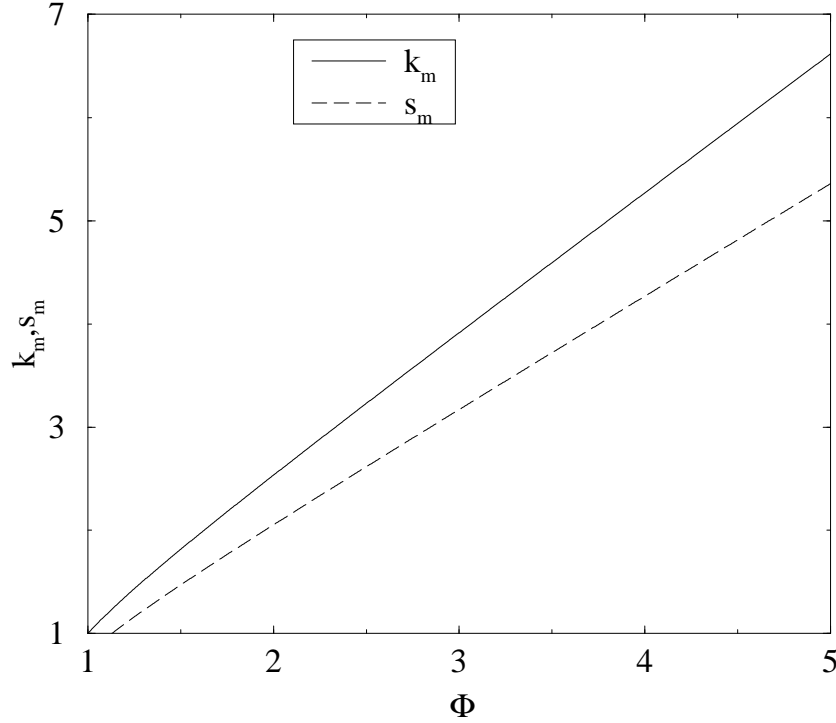


FIG. 4.1: Taux de croissance maximal  $s_m$  et nombre d'onde associé  $k_m$  en fonction du champ  $\Phi$ , pour une couche épaisse-inertielle.

Si  $k_m$  est le nombre d'onde réellement sélectionné, on vérifie que  $\delta k^2$  est de l'ordre de grandeur de  $\varepsilon^2$  (plus petit que  $\varepsilon$ ). Si le nombre d'onde sélectionné est  $k = 1 + \sqrt{2\varepsilon}$  (nombre d'onde extrême situé sur la courbe de stabilité marginale), on a vérifié qu'une analyse semblable est valable, en poussant les calculs à l'ordre supérieur.

Les conditions de validité, à l'ordre le plus bas, pour ce régime peuvent être résumées ainsi :

$$\begin{cases} a \gg 1 & (ka \gg 1, \text{ film épais}) \\ f^2 \ll \varepsilon \quad \left( \frac{|s|}{2fk^2} \gg 1 \text{ et } \frac{|s|}{2fk^2} \text{ de l'ordre de } \varepsilon^{1/2}/f, \text{ film inertiel} \right) \end{cases}$$

Il faut bien garder à l'esprit que ces conditions de validité sont adimensionnées par rapport aux grandeurs capillaires.  $a \gg 1$  signifie donc que l'épaisseur de la couche doit être très supérieur à la longueur capillaire  $l_c$ . Sur la Figure 4.6-a, nous avons tracé  $s^2(k)$  pour différentes valeurs du paramètre de contrôle  $\Phi$ .

## Couche épaisse et visqueuse

On réécrit l'équation (4.1) sous la forme :

$$\left(1 + \frac{s}{fk^2}\right) = \left(1 + \frac{s}{2fk^2}\right)^2 - \left(\frac{s\epsilon_{,i}}{2fk^2}\right)^2 \quad (4.3)$$

où  $s_{\epsilon_{,i}}^2 = -k^3 - k + 2\Phi k^2$  est le taux de croissance dans le cas d'une couche épaisse et inertielle. Dans le cas d'une couche considérée comme visqueuse, le nombre de Reynolds  $Re = \frac{|s|}{2fk^2}$ . De plus, en se référant à l'étude faite par Néron de Surgy, on note [40] :

$$\theta = \frac{2fk^2}{s\epsilon_{,i}} = \frac{1}{Re_i} \quad \text{et} \quad \zeta = \frac{s}{s\epsilon_{,i}}$$

où  $Re_i$  est le nombre de Reynolds pour un fluide non visqueux et  $\zeta$  est le rapport entre un taux de croissance effectif et le taux de croissance pour un fluide non-visqueux. On obtient  $Re = \zeta Re_i = \zeta/\theta$ .

L'équation (4.3) s'écrit alors :

$$\theta^3(\theta + 2\zeta) = [(\theta + \zeta)^2 - 1]^2 \quad (4.4)$$

## Couche épaisse quasi non-visqueuse

On considère que la viscosité du liquide est faible c'est à dire que le nombre de Reynolds est grand devant 1. Le paramètre  $\zeta \simeq 1$  et  $Re \simeq Re_i$ . Dans ce cas,  $\theta \ll 1$ . Cette étude est valable pour des fluides dont le paramètre caractéristique  $f \ll 1$ . Dans ce cas, la relation de dispersion (4.1) est peu modifiée et le régime correspondant est appelé quasi non visqueux. La relation (4.4) devient alors :

$$\zeta = 1 - \theta + (\theta^2) \quad \text{quand} \quad \theta \rightarrow 0$$

ou encore :

$$s = (-k^3 - k + 2\Phi k^2)^{1/2} - 2fk^2$$

cette relation nous montre comment la relation est modifiée pour des faibles viscosités.

## Couche épaisse et très visqueuse

Si par contre la couche est très visqueuse,  $Re = \zeta/\theta \ll 1$ . On montre, à l'aide de l'équation (4.4), que ceci entraîne que  $\theta \gg 1$ . Dans ce cas, l'équation (4.4) conduit à :

$$\zeta = 1/\theta - 3/2\theta^3 + (\frac{1}{\theta^4}) \quad \text{quand} \quad \theta \rightarrow \infty$$

ou encore, au premier ordre en  $1/\theta$ , à la relation de dispersion visqueuse [33, 34, 40] :

$$s = \frac{1}{2f} \left( -k + 2\Phi - \frac{1}{k} \right) \quad (4.5)$$

Ceci nous conduit aux valeurs critiques suivantes  $\Phi_{crit} = 1$ ,  $k_{crit} = 1$ .

Le nombre d'onde de taux de croissance maximal ne dépend pas du champ dans ce régime et  $k_m = k_{crit} = 1$ , quelque soit  $\Phi$ .

Le taux de croissance maximal s'écrit :

$$s_m = \frac{1}{f}(\Phi - 1)$$

Près du seuil de l'instabilité, le taux de croissance devient après développement :

$$s(\varepsilon, \delta k) = (2\varepsilon - \delta k^2)/(2f)$$

On peut considérer  $s$  de l'ordre de  $\varepsilon/f$ .

Les conditions de validité pour ce régime deviennent :

$$\begin{cases} a \gg 1 & \text{film épais} \\ f^2 \gg \varepsilon & \text{film visqueux} \end{cases}$$

On remarque qu'au seuil de l'instabilité les conditions de régime visqueux sont toujours remplies.

Nous avons tracé sur la Figure 4.2, les relations de dispersion  $s(k)$  pour  $\Phi \simeq 1^+$  et  $s(k) \geq 0$ . Nous avons choisi de prendre le paramètre de contrôle  $\Phi = 1,1$ . La densité du ferrofluide  $\rho = 1,26 \text{ g cm}^{-3}$ , sa tension de surface est typiquement  $\gamma = 35 \text{ dyn cm}^{-1}$ . Ceci nous permet de calculer  $l_c = (\gamma/\rho g)^{1/2} = 0,17 \text{ cm}$ . La longueur visqueuse s'exprime en fonction de la viscosité dynamique :

$$l_v = \rho^{-2/3} g^{-1/3} \eta^{2/3}$$

qui nous permet de calculer le paramètre  $f = (l_v/l_c)^{3/2}$ .

$\eta = 75 \text{ cP}$  correspond à  $f = 0,27$ ,  $\eta = 7,5 \text{ cP}$  à  $f = 0,027$  et  $\eta = 750 \text{ cP}$  correspond à  $f = 2,7$ . Ces courbes représentent la vitesse de croissance de l'instabilité près du seuil pour différentes valeurs de la viscosité du ferrofluide. Nous constatons que plus la viscosité dynamique est importante, plus la vitesse de croissance de l'instabilité est faible. Sur la Figure 4.6, nous avons tracé les relations de dispersion  $s(k)$  pour différentes valeurs du champ magnétique  $\Phi$ .

## Domaine de validité des différents régimes

En comparant les conditions de validité des régimes inertiels et visqueux pour une couche épaisse, on constate que le cross-over entre ces régimes se produit lorsque  $\varepsilon = f^2$ , où  $\varepsilon = H_0^2/H_{crit}^2 - 1$  et  $\varepsilon \ll 1$  et (Figure 4.3). Ceci amène les remarques suivantes :

- Strictement au seuil de l'instabilité ( $\varepsilon = 0$ ), la condition de régime inertiel n'est jamais vérifiée : le ferrofluide a un comportement visqueux ( $f$  est fini).
- Lorsqu'on augmente le champ magnétique, on atteint le régime inertiel pour  $\varepsilon = f^2$ , tout en gardant à l'esprit que l'analyse est valable près du seuil i.e.  $\varepsilon \ll 1$ .

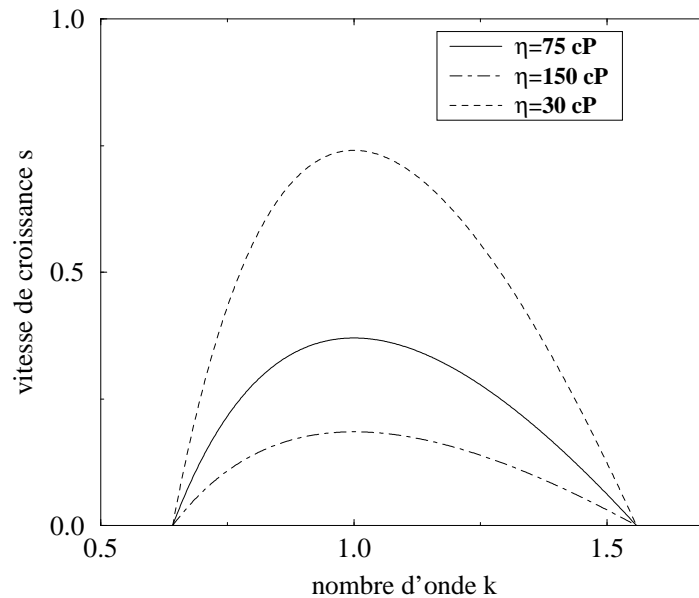


FIG. 4.2: Vitesse de croissance de l'instabilité pour différentes valeurs de la viscosité à  $\Phi = 1, 1$ .

Dans le Tableau 4.2, nous présentons divers ferrofluides disponibles dans le commerce (*Ferrofluidics Corporation*). Pour chacun, nous avons calculé le paramètre  $f$ . Nous avons calculé aussi le rapport  $H_0/H_{crit}$  correspondant au champ pour lequel le cross-over entre les régimes visqueux et inertiel se produit. La valeur du rapport dépend de  $f$ , caractéristique du ferrofluide. En effet,  $H_0 \simeq H_{crit}(1 + \varepsilon/2) = H_{crit}(1 + f^2/2)$ .

Par exemple, avec le ferrofluide EMG 507, le régime inertiel est atteint quand  $H_0 \simeq 1.00002 H_{crit}$  : on peut considérer dans ce cas que la description inertielle est adaptée au problème, quelque soit  $H_0$ .

Par contre, le ferrofluide APG 067 permet de garder une description visqueuse loin du seuil de l'instabilité. Ainsi, le type de description linéaire près du seuil — inertiel ou visqueux — dépend du ferrofluide utilisé. Cependant, il faut manier cette interprétation avec précaution puisque l'analyse linéaire est valable très près du seuil.

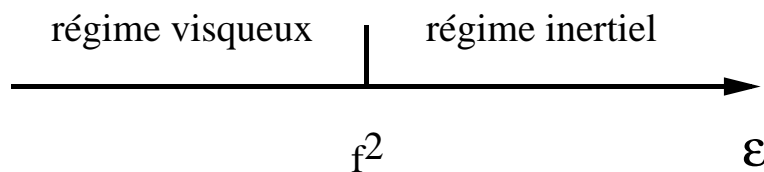


FIG. 4.3: Cross-over entre les régimes visqueux et inertiel pour une couche épaisse.

ferrofluide	$f$	$H_0/H_{crit}$
EMG 507	0.0068	1.00002
EMG 901	0.039	1.0008
APG 512 A	0.33	1.05
APG 314	0.71	1.25
APG 067	1.29	1.8

TAB. 4.2: Amplitude du régime visqueux pour divers ferrofluides; les paramètres de ces ferrofluides sont présentés dans l'annexe C.

## 4.3 Couche mince

### Couche mince-inertielle

Si le nombre de Reynolds  $Re \gg 1$  i.e.  $\frac{|s|a^2}{f} \gg 1$ , on obtient, en simplifiant l'équation (3.20), l'équation de dispersion suivante :

$$s^2 = a(-k^4 + 2\Phi k^3 \left( \frac{1 + \mu_o/\mu}{2} \right) - k^2) \quad (4.6)$$

Au seuil de l'instabilité,  $\Phi_{crit} = \frac{2}{1 + \mu_o/\mu}$  et  $k_{crit} = 1$ .

On définit la fonction  $c(\mu) = \frac{1 + \mu_o/\mu}{2}$ . La valeur asymptotique du champ critique en couche mince diffère de celle en couche épaisse. On remarque que comme  $c(\mu) \leq 1$ , le champ critique en couche mince est toujours supérieur à celui en couche épaisse. La variation est légère : pour un ferrofluide typique,  $\mu/\mu_0$  est de l'ordre de 2, ce qui nous donne  $\Phi_{crit} \simeq 1,33$  et donc  $H_{crit}^{mince} = 1,15 H_{crit}^{épais}$ . Quand on prend la limite d'un matériau très magnétique,  $\mu/\mu_0 \rightarrow \infty$ , le champ critique en couche mince tend vers  $H_{crit}^{mince} = \sqrt{2} H_{crit}^{épais} \simeq 1,41 H_{crit}^{épais}$ .

Le nombre d'onde de taux de croissance maximale est donné par :

$$k_m = \frac{1}{4}(3\Phi c + \sqrt{9\Phi^2 c^2 - 8})$$

$$s_m^2 = \frac{\sqrt{9\Phi^2 - 8} - \Phi}{256}(\sqrt{9\Phi^2 - 8} + 3\Phi)^3 a$$

On note  $\varepsilon$  tel que  $\varepsilon = \Phi c - 1$ . Près du seuil de l'instabilité, le taux de croissance peut être développé à l'ordre le plus bas, en  $\varepsilon$  et  $\delta k$ , et ceci conduit à :

$$s^2(\Phi c = 1 + \varepsilon, k = k_{crit} + \delta k) = s^2(\varepsilon, \delta k) = a(2\varepsilon - \delta k^2)$$

Nous obtenons le fait que  $s^2$  est du même ordre de grandeur que  $a\varepsilon$ . Les conditions de validité s'écrivent :

$$\begin{cases} a \ll 1 & \text{(film mince)} \\ f^2/a^5 \ll \varepsilon & \text{(film inertielle)} \end{cases}$$

Nous avons tracé sur la Figure 4.6-c, les relations de dispersion pour différentes valeurs du champ.

## Couche mince-visqueuse

Quand le nombre de Reynolds  $Re \ll 1$  i.e.  $\frac{|s|a^2}{f} \ll 1$ , l'équation (3.20) devient [35, 36] :

$$s = \frac{a^3}{3f} \left( -k^4 + 2\Phi k^3 \left( \frac{1 + \mu_o/\mu}{2} \right) - k^2 \right) \quad (4.7)$$

Au seuil,  $\Phi_{crit} = \frac{2}{1 + \mu_o/\mu}$  et  $k_{crit} = 1$ .

Quand  $\Phi \geq \frac{2}{1 + \mu_o/\mu}$ , le nombre d'onde de taux de croissance maximale est donné par :

$$k_m = \frac{1}{4} (3\Phi c + \sqrt{9\Phi^2 c^2 - 8})$$

$$s_m = \frac{a^3}{768f} (3\Phi + \sqrt{9\Phi^2 - 8})^3 (\sqrt{9\Phi^2 - 8} - \Phi)$$

On remarque que comme pour le cas épais-visqueux, la vitesse de croissance près du seuil est proportionnelle à  $1/f$ . On a le même comportement : près du seuil, l'instabilité croît d'autant plus vite que le ferrofluide est peu visqueux. De plus, il faut noter la dépendance du taux de croissance en  $a^3$ , ce qui signifie que le temps d'établissement de l'instabilité est proportionnel à  $1/a^3$ . Sur la Figure 4.4, sont représentées les courbes  $k_m(\Phi)$  pour les différents régimes. Dans le cas mince, on a choisi une perméabilité magnétique  $\mu/\mu_0 = 2$ , ce qui entraîne  $c(\mu) = 3/4$ .

Plusieurs expériences réalisées dans le cas mince-visqueux, montrent que le nombre d'onde sélectionné par application d'un champ magnétique brutal correspond au  $k_m$  [35, 36].

Près du seuil, on développe le taux de croissance en  $\varepsilon$  et  $\delta k$  :

$$s(\Phi c = 1 + \varepsilon, k = 1 + \delta k) = (a^3/3f)(2\varepsilon - \delta k^2)$$

$s$  est du même ordre de grandeur que  $(a^3/f)\varepsilon$ .

Les conditions de validité sont :

$$\begin{cases} a \ll 1 & \text{(film mince)} \\ f^2/a^5 \gg \varepsilon & \text{(film visqueux)} \end{cases}$$

Sur la Figure 4.6-d, nous avons représenté les relations de dispersion  $s(k)$  pour différentes valeurs du paramètre de contrôle.

## Près du seuil de l'instabilité

- Au seuil de l'instabilité, la couche mince de ferrofluide a toujours un comportement visqueux.
  - Le cross-over vers le régime inertiel est atteint lorsque  $\varepsilon = f^2/a^5$  (Figure 4.5).
- Dans le cas d'une couche mince,  $a \ll 1$ , il en résulte que  $1/a^5 \gg 1$ . En prenant l'exemple du ferrofluide EMG 507 pour lequel  $f \simeq 0,0068$  et donc  $f \ll 1$ , et en choisissant  $a = 0,1$ ,

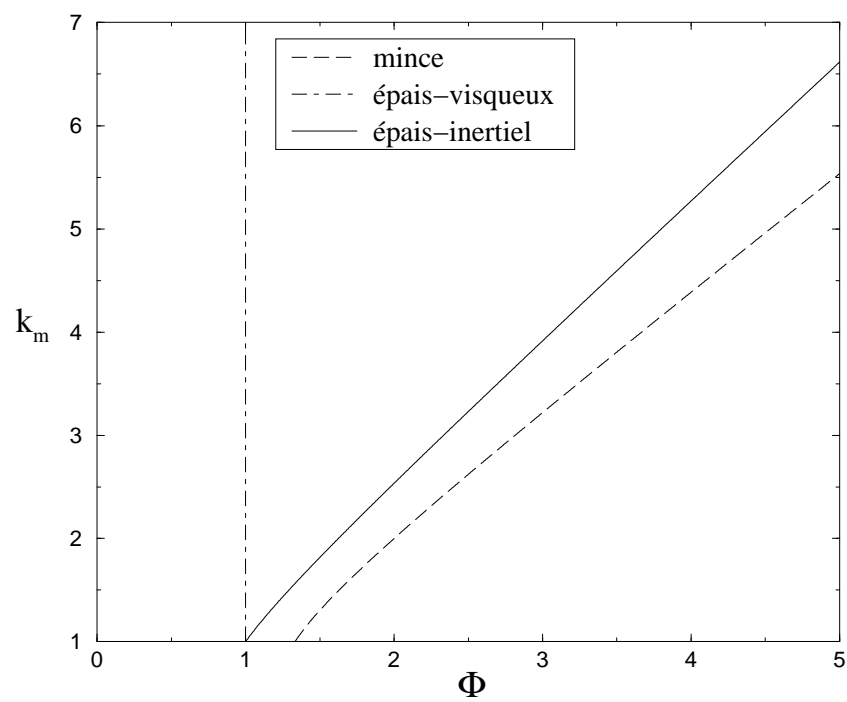


FIG. 4.4: Le nombre d'onde de taux de croissance maximale  $k_m$  pour les différents régimes.

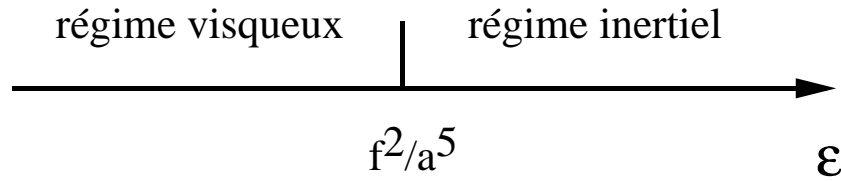


FIG. 4.5: Les régimes visqueux et inertiels, couche mince;  $f = (l_v/l_c)^{3/2}$ ,  $\varepsilon = \Phi c - 1$  et  $a$  est l'épaisseur de la couche.

on obtient  $f^2/a^5 = 4,6$ . Le régime inertiel est atteint lorsque  $H_0 \simeq H_{crit}^{mince}(1 + \frac{\varepsilon}{2}) = H_{crit}^{mince}(1 + f^2/(2a^5))$  i.e.  $H_0 \simeq 3 H_{crit}^{mince}$ .

Nous pouvons remarquer que pour une couche mince, le comportement de la couche de fluide doit être considéré comme visqueux dans le cadre de la théorie linéaire, résultat auquel on pouvait s'attendre.

## 4.4 Quel régime pour notre expérience ?

Les caractéristiques de notre fluide ont été présentées dans le chapitre 2 lors de la description du dispositif expérimental. La longueur capillaire du ferrofluide  $l_c = 0,15$  cm. Cette longueur est d'un ordre de grandeur plus petite que l'épaisseur de la couche  $a = 1,3$  cm. Nous pouvons considérer que l'épaisseur de la couche est infinie. Ce fait est confirmé sur la Figure 3.2 du chapitre 3. De plus, pour notre fluide  $f = 0,33$ , ce qui signifie que le régime inertiel est atteint lorsque  $H_0 \simeq H_{crit}(1 + f^2/2) = 1,05 H_{crit}$ . Ceci signifie que l'on peut considérer le régime comme inertiel quand on s'éloigne peu du seuil. Néanmoins, la théorie linéaire est réalisée pour des petites perturbations de l'interface et donc très près du seuil. Ces résultats sont donc à manier avec précaution.

## Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié les différents régimes asymptotiques de la relation de dispersion :

- couche infinie-inertielle;
- couche infinie-visqueuse;
- couche mince-inertielle;
- couche mince-visqueuse.

Pour chaque régime asymptotique, nous avons simplifié la relation de dispersion, calculé les valeurs critiques, le nombre d'onde de taux de croissance maximal  $k_m$ , la vitesse de croissance de l'instabilité.



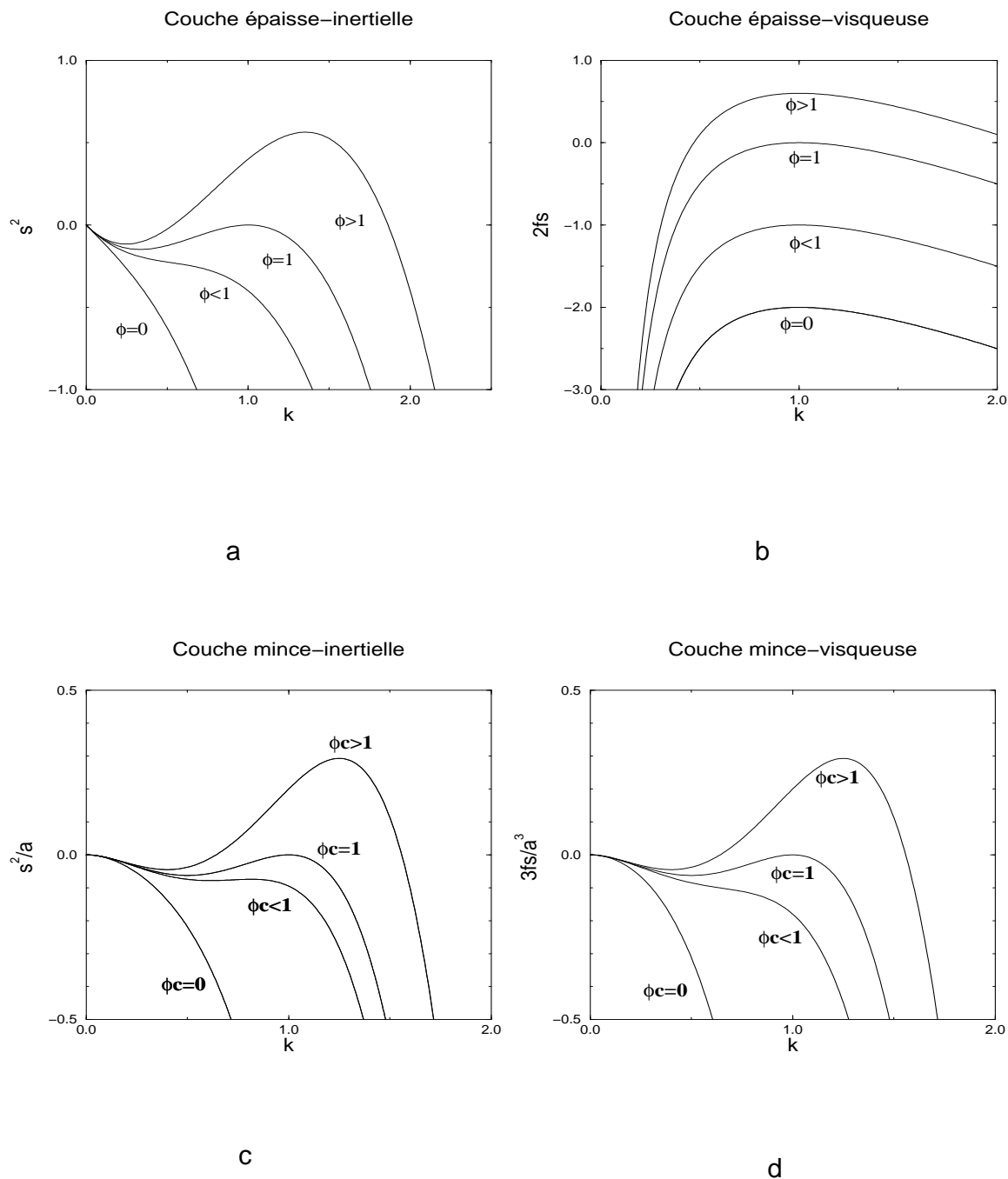


FIG. 4.6: Les relations de dispersion : (a) :  $k_m$  dépend de  $\Phi$ ;  $k_{crit} = 1$ ;  $\Phi_{crit} = 1$ . (b) :  $k_m = k_{crit} = 1$ ;  $\Phi_{crit} = 1$ . (c,d) :  $k_m$  dépend de  $\Phi$ ;  $k_{crit} = 1$ ;  $\Phi_{crit} = 1/c = \frac{2}{1 + \frac{\mu\sigma}{\mu}}$ .

Dans le cas d'une couche mince de ferrofluide, le champ critique est différent de celui calculé pour une couche épaisse. Le rapport des champs critiques  $H_{crit}^{mince}/H_{crit}^{épais}$  tend vers  $\sqrt{2}$  et est d'autant plus grand que le ferrofluide est magnétique.

Nous montrons que le comportement inertiel ou visqueux du ferrofluide est régi par un paramètre caractéristique  $f$ . Au seuil de l'instabilité, une description visqueuse est nécessaire. Quand on s'éloigne du seuil, au delà d'un champ  $\varepsilon$  dépendant de  $f$ , une description inertielle devient suffisante. Pour une couche mince, une description visqueuse est toujours adéquate.

Nous avons défini les domaines de validité des quatre régimes asymptotiques. Cette étude nous a permis de retrouver les cas déjà acquis de la littérature, puis de définir le cadre de notre expérience.



## Deuxième partie

### La transition hexagones-carrés



Dans cette deuxième partie, nous abordons l'étude de la transition hexagones-carrés. Dans le chapitre 5, nous rappelons brièvement les contributions théoriques, numériques et expérimentales à la transition hexagones-carrés. Dans le chapitre 6, nous présentons et étudions les différents réseaux et leur défaut, à l'aide d'une méthode de FFT bi-dimensionnelle. Puis, nous expliquons comment nous contrôlons la présence de défauts dans le réseau hexagonal, ceci afin de mettre en évidence leur contribution durant la transition. Dans le chapitre 7, nous décrivons la phénoménologie de la transition et analysons le rôle des défauts présents dans le réseau hexagonal. Dans le chapitre 8, nous étudions le problème de sélection de nombre d'onde par variation brutale puis quasistatique du champ magnétique. Dans le chapitre 9, nous donnons une interprétation aux résultats du chapitre précédent, et nous montrons que la transition peut être provoquée à champ constant, par compression isotrope du réseau hexagonal.



# Chapitre 5

## La transition hexagones-carrés

### 5.1 Historique de la transition

Nous nous intéressons dorénavant à la transition hexagones-carrés. Nous avons vu dans la première partie qu'un réseau hexagonal de pics se développe pour des valeurs du champ supérieures à un seuil  $H_{crit}$ . Lorsqu'on augmente encore le champ magnétique, le réseau hexagonal se transforme progressivement en réseau carré, pour  $H \geq H'_{crit} \geq H_{crit}$ . Les deux symétries coexistent dans un intervalle de valeurs du paramètre de contrôle et la transition est hystérétique. Nous commençons par établir une petite revue historique des contributions théoriques, expérimentales et numériques à la transition hexagones-carrés. En 1967, lors de la découverte de l'instabilité par Cowley et Rosensweig, le réseau carré avait été observé de façon marginale, dans l'une de leurs expériences. Les auteurs mentionnent le fait suivant : *In one case the pattern changed to square array at a field 40% above critical* [16].

Théoriquement, l'existence du réseau carré a été prédite par Gailitis en 1970, avant même qu'il n'ait été observé expérimentalement de façon reproductible. Gailitis s'intéresse à l'instabilité d'un ferrofluide sous champ magnétique normal. Il considère, au moyen d'un principe de minimisation de l'énergie du système, les configurations stables de l'interface. Il prédit ainsi l'existence probable d'un réseau carré de pics et le caractère hystérétique de la transition [21]. D'autre part, Kuznetsov et Spektor font une analyse semblable dans le cas d'une couche de fluide diélectrique sous champ électrique normal et obtiennent des résultats similaires [20]. Twombly et Thomas, en 1980, obtiennent des résultats similaires à ceux de Gailitis, en réalisant une étude basée sur la théorie des bifurcations [23].

En 1985, Allais *et al.* observent expérimentalement la transition hexagones-carrés [24]. En 1987, Boudouvis *et al.* font une simulation numérique non-linéaire à l'aide des équations du problème [25]. Ils trouvent aussi que pour un champ magnétique assez grand, le système bifurque du réseau hexagonal vers le réseau carré. Expérimentalement, ils observent la transition hexagones-carrés sans hystérésis.

La transition hexagones-carrés a aussi été étudiée numériquement à l'aide du système d'équations couplées de type Ginzburg-Landau [47, 48, 49]. Ces équations d'amplitude sont



obtenues à partir de l'équation de Swift-Hohenberg généralisée, qui prend en compte l'existence possible de rouleaux, de carrés et d'hexagones dans le système. En particulier, ces simulations étudient les domaines de stabilité des différents réseaux dont le nombre d'onde est constant et fixé à  $k_{crit}$ . Très récemment, la transition hexagones-carrés a été étudiée en détail — expérimentalement et numériquement — dans l'instabilité de Bénard-Marangoni où elle est observée [50, 51]. Jusqu'à présent, les travaux théoriques et numériques, concernant la transition hexagones-carrés dans les ferrofluides, n'ont pas bénéficié de rétroaction expérimentale.

## 5.2 Le cadre théorique de la transition hexagones-carrés

Dans ce chapitre, nous présentons les deux contributions théoriques servant de cadre à l'étude de la transition hexagones-carrés. La première est basée sur un principe de minimisation de l'énergie et a été réalisée par Gailitis en 1970. Celui-ci a prédit l'existence possible de réseau carré alors qu'il n'avait pas encore été observé. La deuxième contribution théorique est plus générale et s'applique aux transitions entre réseaux à symétries différentes. Elle est basée sur un système d'équations de type Ginzburg-Landau, où l'on introduit a priori les différentes symétries possibles pour le système. Ce type de calcul a été d'abord appliqué à la convection de Rayleigh-Bénard, où on observe une transition hexagones-rouleaux. L'intérêt pour l'étude de la transition hexagones-carrés a été attisé fortement car elle est aussi observée récemment dans l'instabilité électrocapillaire [40], l'instabilité de Bénard-Marangoni [52] et aussi dans l'expérience de Faraday d'une couche de sable [53].

### 5.2.1 Minimisation de l'énergie : étude non linéaire statique

#### Principe du calcul

Nous allons présenter dans ce paragraphe les résultats de l'analyse faiblement non-linéaire faite par Gailitis en 1970 [21]. Alors qu'une analyse linéaire ne permet pas de prévoir la géométrie du réseau formé, l'analyse non-linéaire consiste à tenir compte des interactions entre les différentes composantes en poussant le calcul à des ordres supérieurs en l'amplitude de la surface. On voit par conséquent apparaître des termes en  $\cos n(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r})$  pour  $1 \leq i \leq N$ ,  $N$  étant le nombre de composantes. Le couplage qui en résulte dépend ainsi du type de réseau choisi.

L'étude de Gailitis est basée sur la minimisation de l'énergie du système, qui est la somme de trois contributions : gravité, capillarité, énergie magnétique. Gailitis considère une couche infinie de ferrofluide, supposée inviscide et incompressible (dans le plan  $(x, y)$ ), soumise à un champ magnétique normal  $\mathbf{B}_0$  (selon  $Oz$ ).

L'énergie du système par unité de surface s'écrit :

$$U(\xi) = \frac{1}{2} \overline{\rho g \xi^2(x, y)} + \overline{\gamma [1 + (\nabla \xi)^2]^{1/2}} + \frac{1}{2\mu_0} \overline{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{B^2(x, y, z)}{\mu(x, y, z)} dz}$$

où la barre désigne une moyenne sur la surface supposée infinie du liquide :

$$\overline{X} = \lim_{A \rightarrow \infty} \frac{1}{S} \int \int_A X dx dy$$

Le premier terme représente l'énergie gravitationnelle, le deuxième terme l'énergie capillaire et le troisième l'énergie magnétique.

La surface du ferrofluide est constituée de la somme de  $N$  composantes de Fourier des termes du premier ordre et de  $M - N$  harmoniques engendrées :

$$\xi(x, y) = \sum_{i=1}^M a_{k_i} \cos(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r})$$

qui développée nous donne :

$$\xi(x, y) = \sum_{i=1}^N a_{k_i} \cos(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}) + \sum_{i=1}^N a_{2k_i} \cos(2\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}) + \sum_{\pm} \sum_{\substack{i < j \leq N \\ |k_i \pm k_j| \neq 1}} a_{k_i \pm k_j} \cos((\mathbf{k}_i \pm \mathbf{k}_j) \cdot \mathbf{r})$$

où  $|\mathbf{k}_i| = k_{crit}$ .

Gailitis adimensionne le problème : l'échelle de longueur est la longueur capillaire, l'échelle d'énergie par unité de surface est la tension de surface  $\gamma$ .

L'énergie peut ainsi être réécrite comme suit :

$$U(\xi) = \frac{1}{2} \overline{\xi^2(x, y)} + \overline{[1 + (\nabla \xi)^2]^{1/2}} + \frac{(\gamma \rho g)^{-1/2}}{2\mu_0} \overline{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{B^2(x, y, z)}{\mu(x, y, z)} dz}$$

De plus, il note :

$$\varepsilon = B_0^2 / B_{crit}^2 - 1$$

Gailitis se place au voisinage du champ critique. Il fait l'hypothèse que les modules des vecteurs d'onde sont constants et égaux à 1 et que  $|\mu_r - 1| \ll 1$ .

Gailitis développe ensuite l'énergie en série jusqu'à l'ordre quatre par rapport aux amplitudes des ondes principales, et jusqu'à l'ordre deux par rapport aux amplitudes des harmoniques. Il minimise enfin  $U(\xi)$  par rapport aux amplitudes des harmoniques, en gardant fixes les amplitudes  $a_{k_i}$  des ondes principales. Il analyse alors différentes configurations de l'interface en faisant varier  $N$ , le nombre d'ondes principales.

### Les résultats de Gailitis

Le cas  $N = 1$ , correspondant à des rouleaux, est instable. Par contre, dans les cas  $N = 2$  (carrés) et  $N = 3$  (hexagones), l'énergie du système a un minimum. Les trois configurations stables de l'interface sont dès lors : plan, carré, hexagonal.

Gailitis dégage les domaines de stabilité des trois configurations possibles de l'interface. Il en déduit le diagramme de bifurcation représenté sur la Figure 5.1. la quantité  $\epsilon\gamma^{-2} \simeq (4\mu_0)^{-1}(\alpha\rho g)^{-1/2}(B_0^2 - B_{crit}^2)$ , où  $\alpha$  est la tension interfaciale, représente l'écart au seuil et  $\xi(0,0)/\gamma$  représente la déflexion de l'interface. Gailitis prédit qu'à champ élevé, le réseau carré est un état stable du système. Il prédit de plus qu'un phénomène d'hystérésis à la transition hexagones-carrés peut se produire. Ses résultats indiquent aussi que la transition vers le réseau hexagonal est du premier ordre et hystérétique. Gailitis prédit ainsi deux hystérésis pour le système dont l'un (hexagones-carrés) diffère en amplitude d'un facteur 1660 par rapport à l'autre (plan-hexagones).

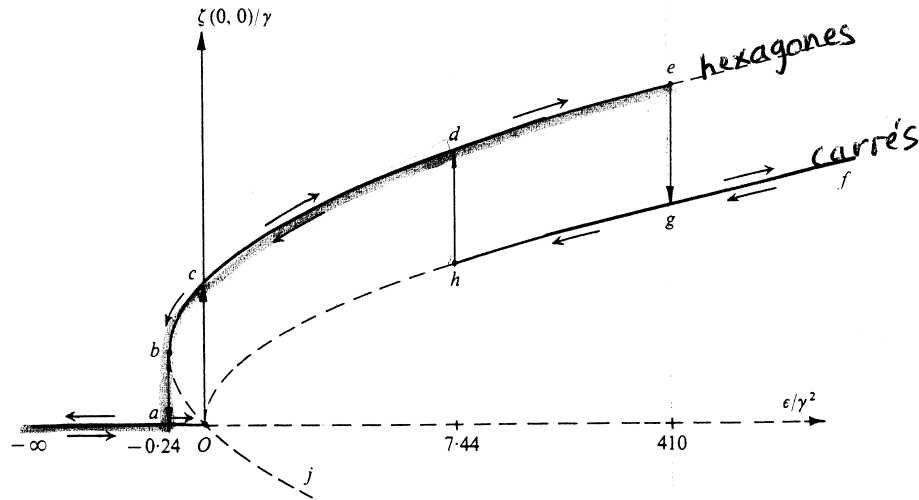


FIG. 5.1: Les trois configurations possibles de l'interface [21].

## 5.2.2 Modèle de Swift-Hohenberg généralisé

### Principe du calcul

L'équation de Swift-Hohenberg a été introduite afin d'étudier les rouleaux en convection de Rayleigh-Bénard [54]. Bestehorn *et al.* ont généralisé cette équation en introduisant des symétries différentes [55]. L'équation de Swift-Hohenberg généralisée (ESHG), qui contient des rouleaux, des hexagones et des carrés s'écrit pour la variable scalaire  $\phi(x, y, t)$  [49]:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = [\epsilon - (1 + \Delta)^2]\phi - \alpha\phi^2 - \beta\phi^3 - \gamma\phi\Delta^2\phi^2 \quad (5.1)$$

où  $\phi$  représente ici la déformation de l'interface,  $\Delta$  le Laplacien à deux dimensions,  $\varepsilon = (B_0/B_{crit})^2 - 1$ , le paramètre de contrôle de l'instabilité défini comme l'écart au seuil. Les conditions aux limites pour le champ scalaire s'écrivent :

$$\phi = \partial_{\mathbf{n}}\phi = 0$$

où  $\mathbf{n}$  est le vecteur unitaire normal aux parois.

Maintenant, on considère les situations où le système développe des motifs presque parfaits avec une symétrie bien définie. Le champ scalaire  $\phi$  peut être développé en ondes planes, qui peuvent conduire à l'expression de rouleaux, carrés ou hexagones.

$$\phi(x, y, t) = \sum_{j=1}^6 [A_j(x, y, t) \exp(i\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r}) + c.c.] + \mathcal{O}(A_i^2) \quad (5.2)$$

où  $\mathbf{r}$  est le vecteur bi-dimensionnel  $(x, y)$ ,  $|\mathbf{k}_j| = k_{crit}$ .

Les vecteurs d'onde sont reliés entre eux par les relations suivantes afin de permettre l'existence de deux systèmes d'hexagones et carrés conjugués (Figure 5.2) :

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3 &= \mathbf{0} \\ \mathbf{k}_4 + \mathbf{k}_5 + \mathbf{k}_6 &= \mathbf{0} \\ \mathbf{k}_j \cdot \mathbf{k}_{j+3} &= \mathbf{0} \end{aligned}$$

On introduit alors le développement (5.2) dans l'équation (5.1) et on obtient le système d'équations couplées de Ginzburg-Landau suivant :

$$\begin{aligned} \frac{\partial A_j}{\partial t} &= [\varepsilon + 4(\frac{\partial}{\partial x_j} - \frac{i}{2k_{crit}} \frac{\partial^2}{\partial y_j^2})^2] A_j + a \overline{A_{j+1} A_{j+2}} \\ &- [b(|A_{j+1}|^2 + |A_{j+2}|^2) + c|A_j|^2 + d(|A_{j+4}|^2 + |A_{j+5}|^2) + e|A_{j+3}|^2] A_j \end{aligned} \quad (5.3)$$

avec  $j = 1$  puis permutation circulaire  $j = (1, 2, 3)$  ou bien  $j = 4$  puis permutation circulaire  $j = (4, 5, 6)$ .

Les conditions aux limites sont :

$$A = \partial_n A = 0 \quad (5.4)$$

Le système d'équations (5.3) sont les équations d'amplitude de l'équation de Swift-Hohenberg généralisée (5.1). Ceci permet d'identifier les coefficients du système (5.3) :

$$\begin{aligned} a &= 2\alpha & b &= 6\beta + 20\gamma & c &= 3\beta + 16\gamma \\ d &= 6\beta + 28\gamma & e &= 6\beta + 16\gamma \end{aligned}$$

### Les résultats du modèle de Swift-Hohenberg généralisé

$\beta$  étant toujours négatif, les rouleaux ne peuvent pas apparaître et seule une transition entre hexagones et carrés est possible.

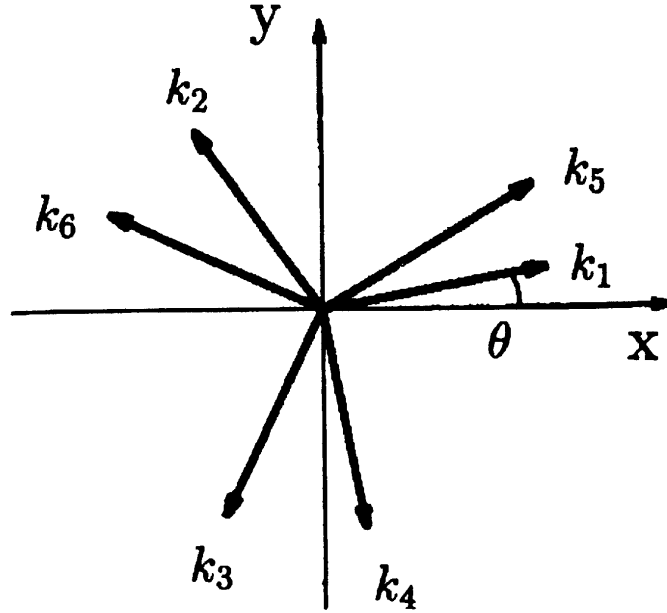


FIG. 5.2: Les six modes considérés pour permettre l'existence de rouleaux, carrés et hexagones,  $|\mathbf{k}_j| = |k_{crit}|$  [49].

Herrero *et al.* donnent la dépendance en la perméabilité magnétique relative  $\mu_r$  des coefficients des équations d'amplitude à l'aide du travail de Gailitis où  $|\mu_r - 1| \ll 1$  [48, 21]. Ils trouvent :

$$\begin{aligned}
 \alpha &= \frac{3}{8} \left( \frac{\mu_r - 1}{\mu_r + 1} \right) \\
 \beta &= -0,0768 - 1,5 \left( \frac{\mu_r - 1}{\mu_r + 1} \right)^2 \\
 \gamma &= 0,034 + 0,2187 \left( \frac{\mu_r - 1}{\mu_r + 1} \right)^2
 \end{aligned} \tag{5.5}$$

Les domaines de stabilité des états stationnaires sont ensuite déterminés [47, 56, 48, 49]. On note :

$$\begin{aligned}
 \varepsilon_s &= \frac{4\alpha^2(9\beta + 32\gamma)}{(3\beta + 16\gamma)^2} \\
 \varepsilon_h &= \frac{4\alpha^2(12\beta + 52\gamma)}{(3\beta + 4\gamma)^2} \\
 \varepsilon_c &= \frac{-\alpha^2}{(15\beta^2 + 56\gamma)}
 \end{aligned} \tag{5.6}$$

Les hexagones sont stables si :

$$\varepsilon_c \leq \varepsilon \leq \varepsilon_h$$

Les carrés sont stables si :

$$\beta \leq 0 \text{ et } \varepsilon \geq \varepsilon_s \geq 0$$

Les résultats sont résumés sur la Figure 5.3. Cependant, cet intervalle ne tient pas compte

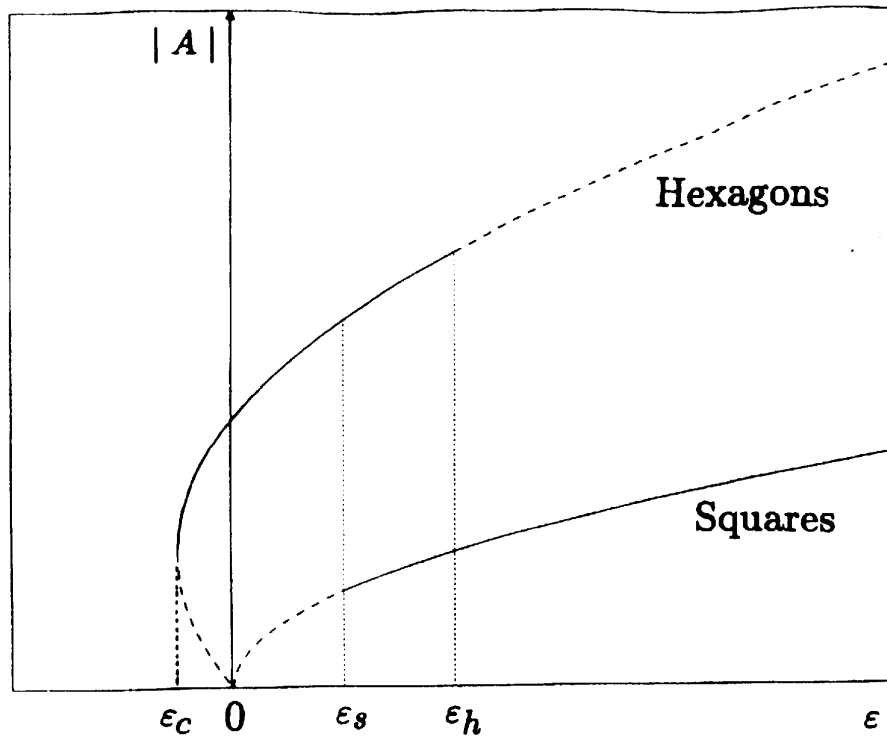


FIG. 5.3: Domaines de stabilité des états stationnaires dans le cas où des rouleaux, carrés, hexagones à  $k_{crit}$  peuvent apparaître [49].

des effets à petites échelles.

### 5.2.3 Comparaison des deux calculs

Les deux calculs donnent les mêmes résultats qualitatifs :

- il y a trois configurations stables de l'interface : plan, carrés, hexagones. À champ élevé, le réseau hexagonal devient instable en faveur du réseau carré;
- les rouleaux ne sont jamais stables;

- les diagrammes de bifurcation sont semblables et indiquent qu'un phénomène d'hystérésis est à prévoir à la transition hexagones-carrés, ainsi que lors de la transition plan-hexagones.

Du point de vue quantitatif, Herrero *et al.* ont fait le parallèle entre les deux modèles, ce qui a permis de relier les coefficients de ESHG à la perméabilité magnétique du ferrofluide.

Ces deux calculs sont réalisés pour des réseaux à  $k_{crit}$ . Dans le calcul de Gailitis, le système est considéré proche du champ critique et la perméabilité magnétique relative du ferrofluide satisfait à  $|\mu_r - 1| \ll 1$ . Ces conditions restrictives ne sont pas satisfaites dans nos expériences. En particulier, la perméabilité magnétique de notre ferrofluide ne satisfait pas la condition ci-dessus. Nous verrons de plus au chapitre 8 que la transition hexagones-carrés ne se produit pas entre réseaux à  $k_{crit}$ . Par conséquent, nous verrons que les prédictions théoriques pour  $\varepsilon_s$  et  $\varepsilon_h$  ne sont pas confirmées expérimentalement.

## Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les deux principaux modèles théoriques analysant la transition hexagones-carrés. Le premier est basé sur un principe de minimisation de l'énergie et a été proposé par Gailitis en 1970. Ce calcul a permis de prédire l'existence possible de carrés avant même qu'ils n'aient été observés. Le deuxième type de modèle est basé sur une équation de Swift-Hohenberg généralisée (ESHG), qui décrit le comportement d'un paramètre d'ordre du système, ici la déformation de l'interface. Puis, ce paramètre d'ordre est développé en ondes planes, qui peuvent conduire aux différentes symétries possibles : rouleaux, carrés, hexagones. Après avoir introduit ce développement dans ESHG, on obtient un système d'équations d'amplitude à partir desquelles on peut déterminer les domaines de stabilité des différentes symétries. Ces deux modèles conduisent aux mêmes résultats qualitatifs. La transition entre le réseau hexagonal et un réseau carré est prédite ainsi que son caractère hystérétique.

Dans le chapitre suivant, nous présentons les réseaux hexagonal, carré ainsi que leur défaut. Puis, nous analysons leur structure par transformation de Fourier des images. Nous présentons ensuite deux méthodes permettant de contrôler le nombre de défauts dans le réseau hexagonal.

# Chapitre 6

## Présentation des réseaux et de leur défaut

Nous présentons dans ce chapitre les structures des réseaux hexagonal et carré, ainsi que celles de leur défaut respectif. Cette étude a été motivée par celle faite précédemment par Ciliberto *et al.* en convection de Rayleigh-Bénard sous conditions non Boussinesq, où la transition hexagones-rouleaux est observée [57, 58].

Leur expérience est la suivante : une couche d'eau, maintenue entre deux plaques, est chauffée par dessous. Lorsque la différence de température entre les plaques excède une valeur critique  $\Delta T = \Delta T_{crit}$ , un réseau hexagonal de cellules convectives apparaît. En augmentant le paramètre de contrôle, ce réseau hexagonal se transforme en rouleaux.

Ciliberto *et al.* analysent le champ de température à la surface du fluide, en réalisant la transformée de Fourier de ce champ, pour les différents réseaux et leur défaut respectif. Le réseau hexagonal peut contenir des défauts stables qui sont des paires de cellules pentagonales-heptagonales. Dans leurs expériences, ces défauts n'apparaissent pas spontanément, il faut les créer (par chauffage local, par exemple). Pour les rouleaux, ils observent des joints de grain.

Leur conclusion est que la phase instable est déjà présente au cœur du défaut de chaque réseau. Ce résultat avait déjà été théoriquement mis en évidence par P. Coulet [59]. Nous avons tenté de vérifier ce fait dans notre expérience, en réalisant des transformées de Fourier bi-dimensionnelles de nos images de réseaux ou de défauts. Dans ce chapitre, nous nous contentons de présenter les résultats de l'analyse de Fourier. Ce n'est qu'au chapitre suivant 7, que nous analyserons le rôle des défauts lors de la transition : nous montrerons que les caractéristiques de la phase carrée sont présentes au niveau du défaut du réseau hexagonal.

Ensuite, nous expliquons comment contrôler la présence des défauts dans le réseau hexagonal. En effet, voici ce que l'on est susceptible d'obtenir lorsqu'on réalise l'expérience dans une cuve cylindrique (Figure 6.1) : le réseau hexagonal contient de nombreux défauts penta-hepta formant des joints de grain.

Une fois formé, le système n'évolue plus ou très peu sur quelques heures. Cette évolution très lente tend à faire disparaître quelques défauts. Si l'on augmente le champ magnétique,



l'ensemble — réseau hexagonal et défauts penta-hepta — reste stable et n'évolue pas et ceci jusqu'au seuil de la transition hexagones-carrés. À ce moment, les défauts agissent comme des centres de nucléation de la transition. Afin de bien comprendre ce mécanisme de nucléation, nous avons tenté d'isoler ces défauts penta-hepta, par deux méthodes. L'idée la plus naturelle, afin de diminuer le nombre de défauts, est de choisir des conditions aux limites hexagonales. Une deuxième méthode utilisée est une méthode de recuit, inspirée de la métallurgie où le champ magnétique joue le rôle de la température [60].

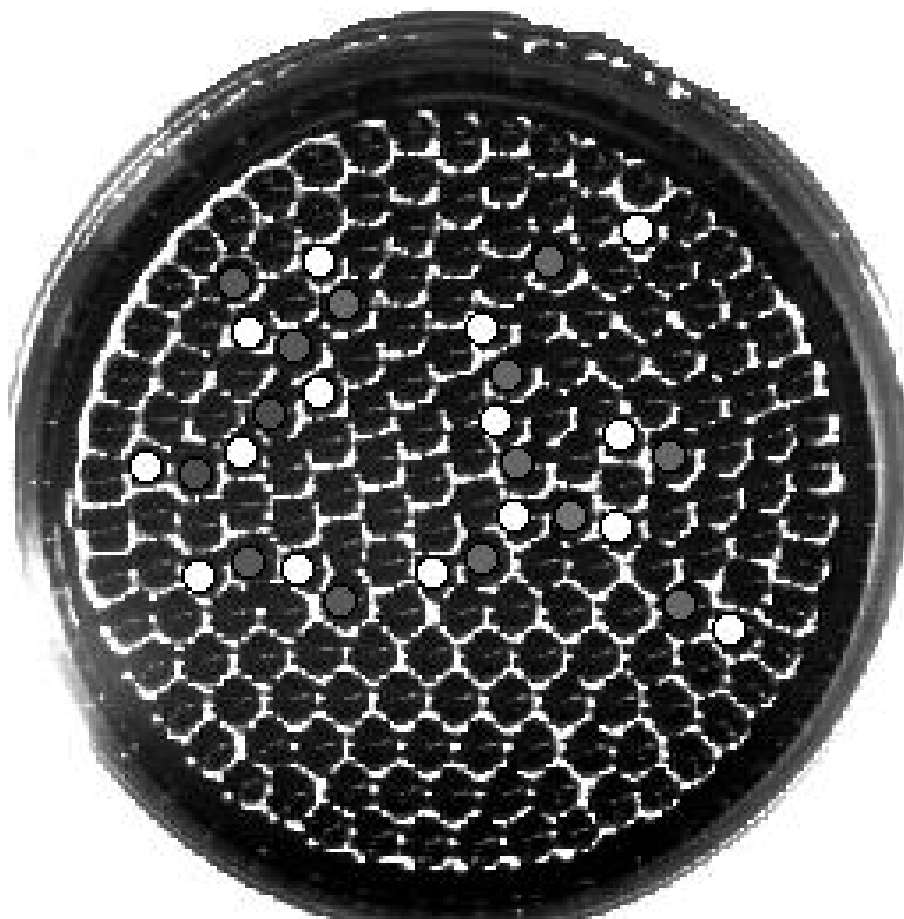


FIG. 6.1: Le réseau hexagonal contient des lignes de défauts appelés joints de grain. Nous observons plusieurs réseaux hexagonaux d'orientations différentes dans la cuve. Les défauts penta-hepta du réseau hexagonal sont représentés par un rond blanc pour le pic qui a cinq voisins, un rond gris pour le pic qui en a sept.

## 6.1 Analyse de Fourier des images

### 6.1.1 Le réseau hexagonal

À l'aide de la caméra, nous prenons des photographies des réseaux et nous les analysons à l'aide du traitement d'image NIH-Image du domaine public<sup>1</sup>. Celui-ci réalise une transformation de Fourier bi-dimensionnelle des niveaux de gris d'une sélection  $256 * 256$  pixels de cette image et fait apparaître le module  $F(\mathbf{k})$  de cette transformée de Fourier. Sur la Figure 6.2(a) apparaît une sélection  $256 * 256$  pixels du réseau hexagonal. Après traitement par NIH-Image, on obtient le module de la transformée de Fourier 6.2(b) de l'image. Celle-ci est constituée principalement de trois paires de vecteurs d'onde  $(\mathbf{k}_i, -\mathbf{k}_i)$ ,  $i=(1,2,3)$  à 120 degrés les uns des autres, qui sont les modes fondamentaux. NIH-Image nous permet alors de filtrer une paire  $(\mathbf{k}_i, -\mathbf{k}_i)$  et de supprimer les deux autres. On peut ensuite reconstruire l'image réelle à partir de la seule paire  $(\mathbf{k}_i, -\mathbf{k}_i)$  en réalisant une transformation de Fourier inverse (Figure 6.2(c,d,e)). Le réseau hexagonal peut être décomposé en la superposition linéaire de trois modes à 120 degrés les uns des autres. Nous avons représenté dans l'espace de Fourier, les trois modes du réseau hexagonal de la Figure 6.2 (Figure 6.3).

De par la présence d'un réseau hexagonal régulier de pics, la déformation de l'interface dans le plan  $(x, y)$  peut s'écrire comme la somme de trois ondes principales :

$$\xi(x, y) = \sum_{j=1}^3 A_j(x, y) \exp(i\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r}) + \text{c.c.}$$

où  $A_j(x, y)$ ,  $j = (1, 2, 3)$  sont les amplitudes complexes des ondes,  $|\mathbf{k}_j| = k_{crit}$  et les vecteurs d'onde satisfont la condition de résonance  $\sum_{j=1}^3 \mathbf{k}_j = \mathbf{0}$ . On peut montrer que les phases  $\phi_j$  des amplitudes complexes  $A_j(x, y)$  satisfont la condition suivante  $\sum_{j=1}^3 \phi_j = 0$  [57].

### 6.1.2 Le défaut penta-hepta

Comme on l'a vu précédemment, le réseau hexagonal que l'on observe dans les expériences n'est pas régulier et contient des défauts. La présence de défauts dans le réseau est favorisée par les conditions aux limites non favorables à la formation d'un réseau régulier. Par exemple, dans une cuve ronde, le réseau hexagonal ne peut remplir de façon régulière l'espace dont il dispose : il contient des défauts afin de minimiser son énergie.

Dans le réseau hexagonal, nous observons un seul défaut topologiquement stable. Celui-ci est une paire pentagone-heptagone de pics (Figure 6.4(a)) : l'un des pics a cinq plus proches voisins et l'autre sept plus proches voisins, alors que dans un réseau régulier, les pics ont tous six plus proches voisins.

Si l'on applique la FFT à une image de défaut penta-hepta [61, 57, 58], on constate que le coeur du défaut correspond à deux dislocations dans le réseau. Deux directions sur

---

<sup>1</sup>développé au U.S. National Institutes of Health et disponible sur Internet à <http://rsb.info.nih.gov/nih-image/>

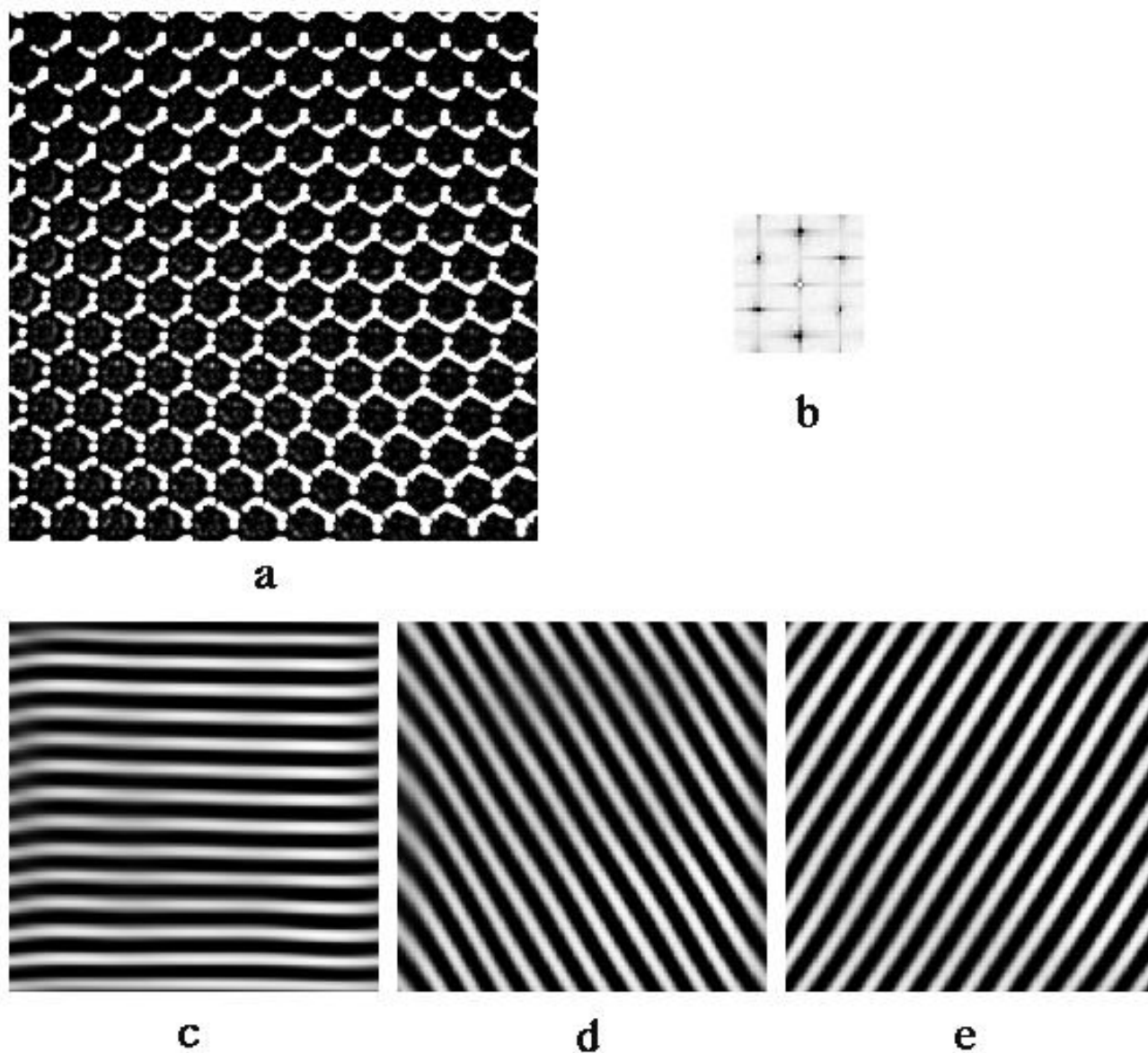


FIG. 6.2: Le réseau hexagonal et ses trois modes fondamentaux reconstitués; (a) : image du réseau hexagonal (vue de dessus); (b) : le module de la transformée de Fourier bi-dimensionnelle, représentant les modes fondamentaux; (c, d, e) : les trois modes fondamentaux à 120 degrés reconstitués.

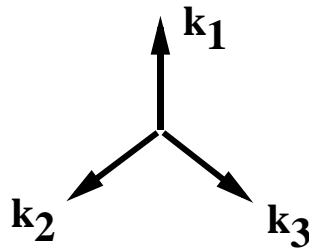


FIG. 6.3: Les trois modes du réseau hexagonal dans l'espace de Fourier;  $\mathbf{k}_1$ ,  $\mathbf{k}_2$ ,  $\mathbf{k}_3$  correspondent respectivement aux modes de la figure 6.2 - (c,d,e).

trois sont altérées par une dislocation (Figure 6.4(d,e)). Au coeur du défaut, seulement un mode sur trois survit (Figure 6.4(c)). Nous verrons plus loin que ce mode-là joue un rôle primordial dans la formation du réseau carré.

On peut montrer que les phases des deux modes altérés subissent un saut de  $+2\pi$  et  $-2\pi$  respectivement, ce qui indique qu'il y a une dislocation dans ces deux systèmes de rouleaux. La phase du mode qui survit n'a aucune singularité; ainsi, la phase totale  $\sum_{j=1}^3 \phi_j$  reste nulle dans le défaut [57].

Comme nous l'avons vu précédemment, lorsque plusieurs défauts penta-hepta sont proches les uns des autres, ils forment des lignes de défauts appelés joints de grain (Figure 6.5). Alors que le défaut penta-hepta altère localement le réseau hexagonal, le joint de grain sépare le réseau hexagonal en deux réseaux hexagonaux d'orientations différentes.

### 6.1.3 Le réseau carré; joints de grain

Une analyse de Fourier appliquée à une image de réseau carré met en évidence le fait que celui-ci peut être vu comme la superposition linéaire de deux modes à 90 degrés l'un de l'autre. Le réseau carré très régulier de la Figure 6.6 a été obtenu dans une cuve carrée. Quand les conditions aux limites (cuve cylindrique ou hexagonale) sont moins favorables, on observe généralement des joints de grain dans le réseau carré. La Figure 6.7 présente un joint de grain : celui-ci sépare deux réseaux carrés d'orientations différentes. L'analyse par transformée de Fourier met en évidence les différents modes, présents dans chaque portion de réseau carré. Nous observons aussi des dislocations dans le réseau carré. La Figure 6.8 présente le réseau carré avec deux dislocations, mises en évidence par l'analyse de Fourier.

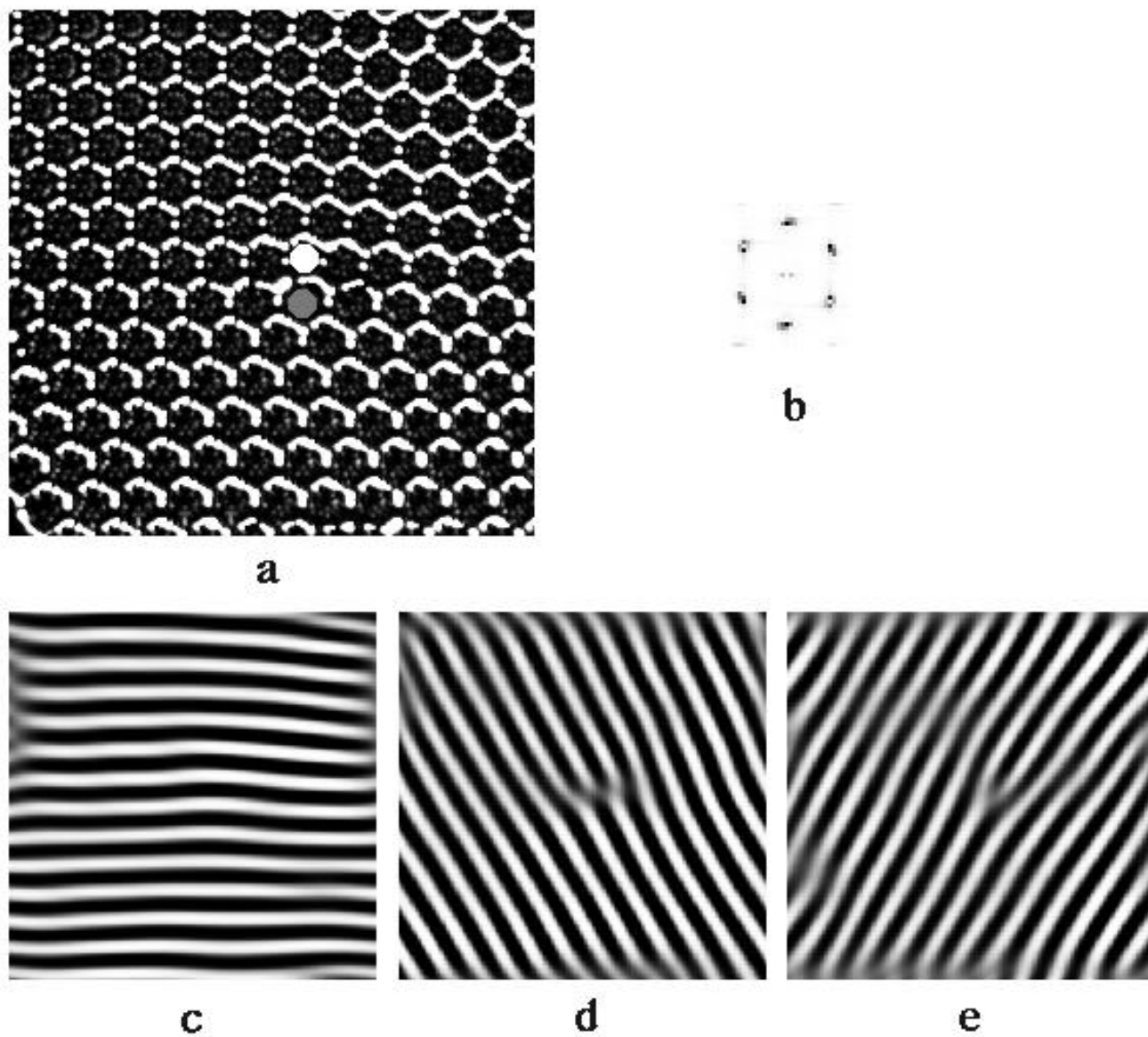


FIG. 6.4: Le défaut penta-hepta du réseau hexagonal;  
(a) : le défaut penta-hepta; (b) : le module de la transformée de Fourier bi-dimensionnelle, représentant les modes fondamentaux; (c) : au cœur du défaut, un seul mode survit; (d, e) : deux directions sur trois sont altérées par une dislocation.

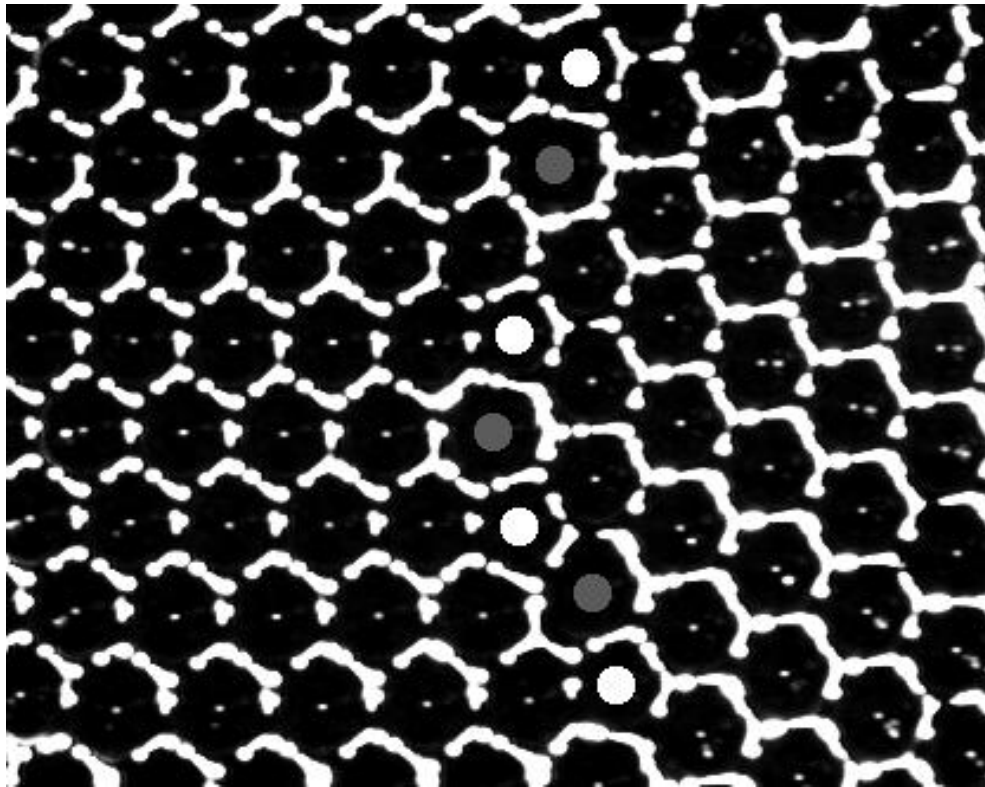


FIG. 6.5: Les défauts penta-hepta sont proches les uns des autres et forment un joint de grain dans le réseau hexagonal, séparant deux réseaux hexagonaux d'orientations différentes.

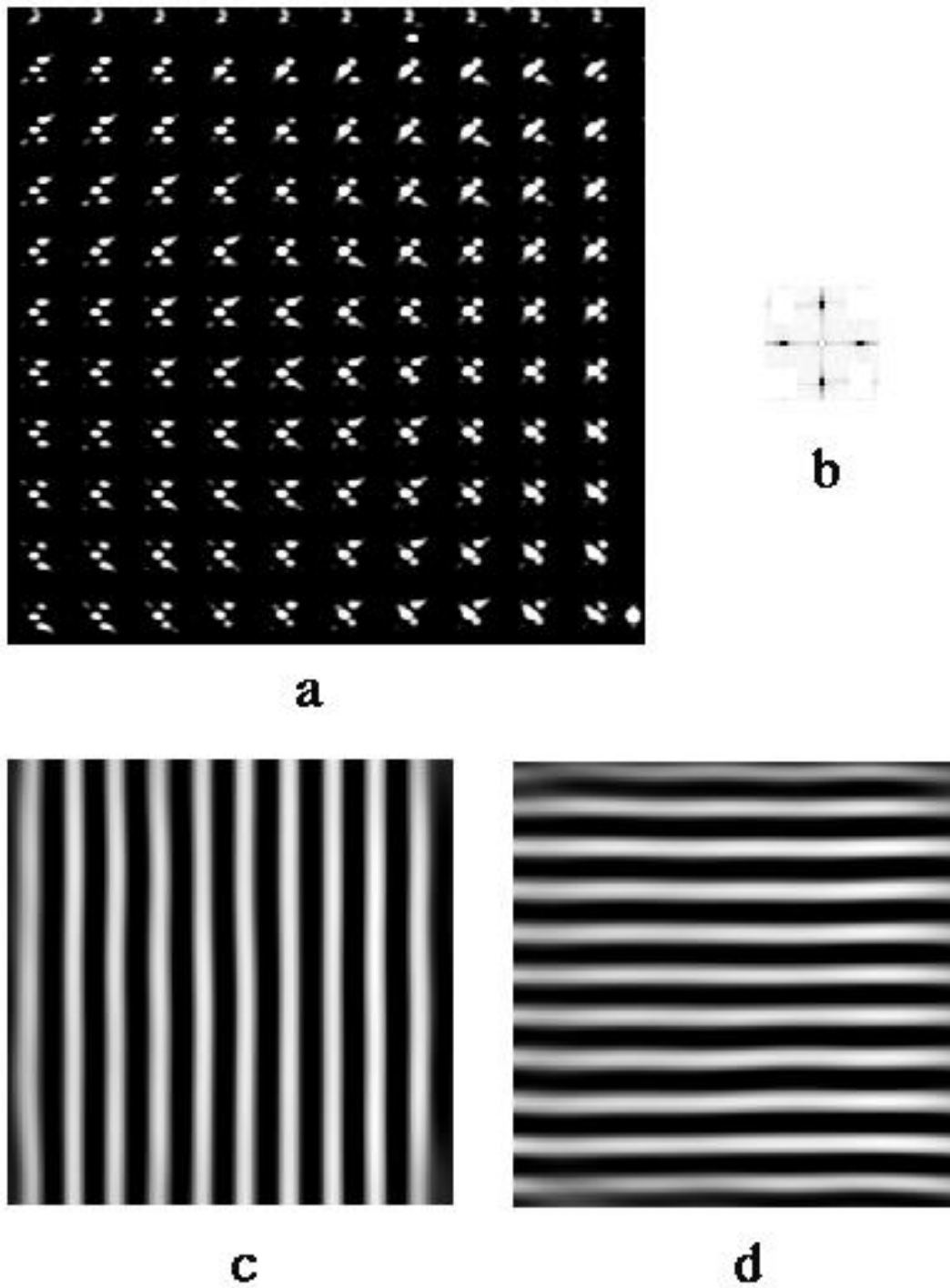


FIG. 6.6: Le réseau carré et ses deux modes fondamentaux reconstitués; (a) : le réseau carré; (b) : le module de la transformée de Fourier bi-dimensionnelle, représentant les modes fondamentaux; (c, d) : les deux modes reconstitués à 90 degrés l'un de l'autre.

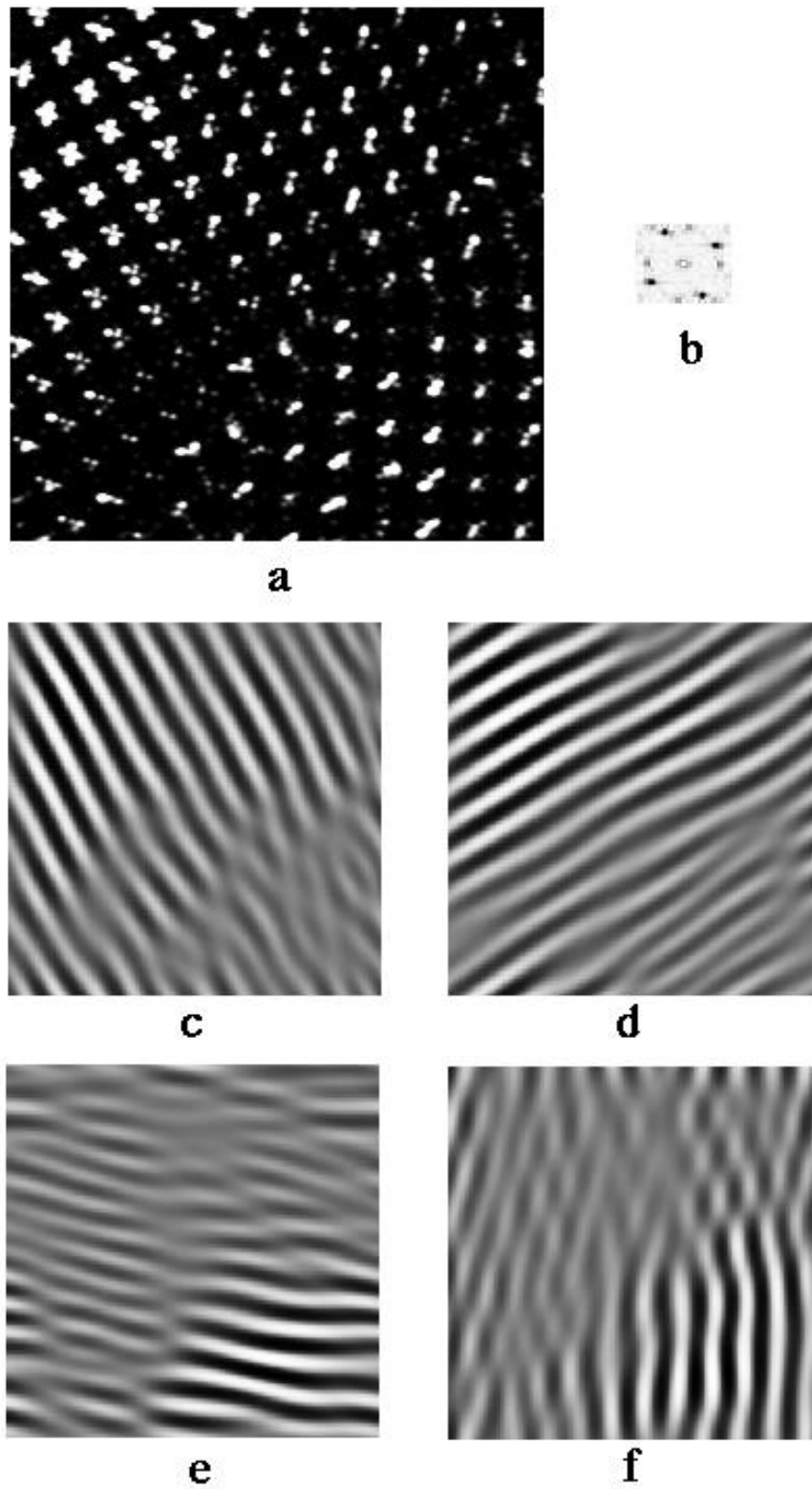


FIG. 6.7: Joint de grain qui sépare deux réseaux carrés d'orientations différentes; (b) : module de la transformée de Fourier; (c,d,e,f) : les quatre modes reconstitués.



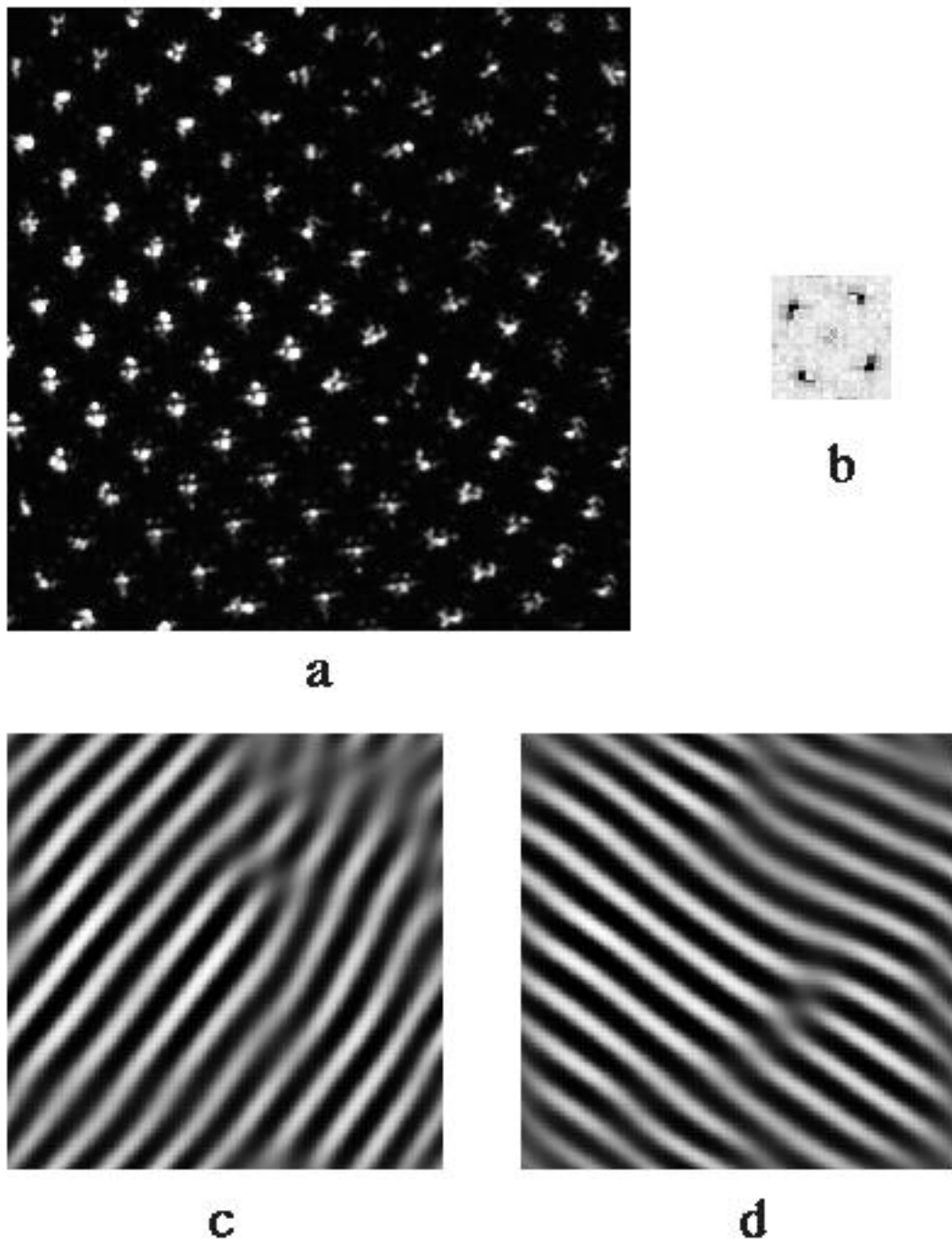


FIG. 6.8: Deux dislocations dans le réseau carré.

## 6.2 Contrôle des défauts dans le réseau hexagonal

Lors d'une expérience typique, réalisée dans une cuve cylindrique, nous avons vu que le réseau hexagonal se développe avec de nombreux défauts. Nous allons décrire ici deux procédés permettant de contrôler la présence de ces défauts dans le réseau hexagonal. Cette étude, qui permet d'isoler les défauts les uns des autres, se révèle nécessaire pour étudier leur rôle lors de la transition.

### 6.2.1 Les conditions aux limites : cuve hexagonale

L'utilisation d'une cuve hexagonale nous a permis d'éliminer les joints de grain dans le réseau hexagonal. Dans 50% des cas, le réseau hexagonal se développe avec quelques défauts qui sont isolés et dans l'autre moitié des cas, nous n'observons aucun défaut dans le réseau (Figure 6.10). Quand il y a des défauts, leur nombre est faible, en moyenne 4 défauts sur 400 pics, c'est à dire 1% de défauts. Dans la cuve cylindrique, le nombre de défauts est plus élevé, environ une dizaine sur 200 pics (5%), et surtout le plus gros inconvénient reste que ces défauts forment des joints de grain. Ceux-ci rendent l'étude de la contribution du défaut penta-hepta lors de la transition difficile.

Nous avons choisi les dimensions de la cuve de façon à ce que le côté représente un nombre entier de fois la distance interpic critique  $d_{crit}$ . Nous rappelons que cette dernière est reliée à la longueur d'onde critique  $\lambda_{crit}$  par la relation  $d_{crit} = 2/\sqrt{3}\lambda_{crit}$ . Ce choix de la longueur du côté a été justifié par le fait expérimental que le réseau hexagonal, une fois formé, a un nombre d'onde  $k = k_{crit}$  qui ne varie pas quand on augmente le paramètre de contrôle.

La longueur d'onde critique  $\lambda_{crit} = 2\pi(\gamma/\rho g)^{1/2}$  est fonction de deux paramètres  $\gamma$  et  $\rho$ . Parmi ces deux paramètres, la tension interfaciale est difficile à évaluer car elle varie avec la température mais surtout avec l'état de propreté du ferrofluide. Une variation relative de 20% sur la tension interfaciale entraîne une variation relative de 10% sur la longueur d'onde critique. De plus, la présence d'un ménisque aux parois — d'une largeur difficile à déterminer de l'ordre du centimètre —, une fois l'instabilité formée, rajoute une inconnue au problème (Figure 6.10). De plus, la hauteur et la largeur du ménisque croissent quand nous augmentons le champ. Ainsi, on imagine qu'il est difficile de prévoir avec exactitude les dimensions d'un côté de la cuve hexagonale...

Heureusement, le réseau de pics possède de l'élasticité. Afin de la quantifier, on réalise l'expérience suivante : on place le réseau hexagonal dans un entonnoir ou dans une cuve-piston, puis on le comprime. Celui-ci se laisse comprimer, sans disparition de pics jusqu'à une diminution de la surface de l'ordre de 20%. Ceci équivaut à une variation de longueur d'onde — ou distance interpic — possible de 10%. Dans la cuve hexagonale, on observe en moyenne sur les expériences, douze pics sur un côté. Ajouter ou enlever un pic sur douze correspondrait à une variation de longueur d'onde de 8%. Ainsi, même si la longueur du côté n'est pas parfaitement prévue, le réseau hexagonal peut s'adapter, tout en gardant un nombre d'onde proche de  $k_{crit}$ .

### La bifurcation sous-critique imparfaite

Les trois directions du réseau hexagonal sont imposées par celles de la cuve, par l'intermédiaire de la bifurcation imparfaite due au ménisque.

Au seuil de l'instabilité ( $\varepsilon = 0$ ), l'interface devient instable et nous observons la formation du réseau hexagonal de pics. Avant que le réseau hexagonal de pics ne se forme, on observe d'abord la formation de rouleaux sous-critiques aux parois. Ces rouleaux sous-critiques apparaissent parallèlement aux parois (Figure 6.9). Lorsque l'on augmente le champ ma-

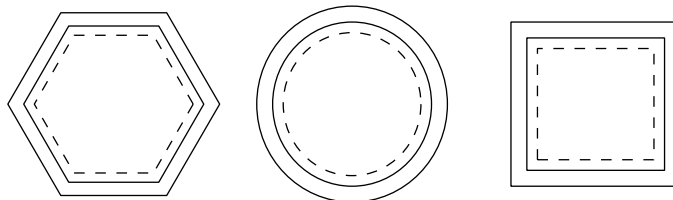


FIG. 6.9: Formation de rouleaux sous-critiques parallèlement aux parois, avant apparition de l'instabilité.

gnétique à partir de zéro, la hauteur du ménisque aux parois augmente proportionnellement à  $H_0^2$ , ce qui résulte du nouvel état d'équilibre de l'interface dans le champ magnétique [62]. On dit que les conditions aux limites qui en résultent aux parois, sont imparfaites ou inhomogènes. L'existence de ce ménisque va déclencher la formation d'un rouleau, parallèle aux parois, suivant une bifurcation imparfaite et sous-critique [63]. Ce rouleau, parmi les trois qui constituent le réseau hexagonal, devient instable avant les deux autres. En augmentant encore le champ magnétique, les deux autres rouleaux deviennent à leur tour instables et les pics se forment des parois vers le centre.

### 6.2.2 La technique de recuit

Dans notre expérience, les défauts penta-hepta apparaissent naturellement. Leur configuration et leur nombre dépend de l'expérience. Le réseau hexagonal et ses défauts représentent un état métastable du système, et à champ fixé, il en existe plusieurs. Pour une valeur du champ magnétique donnée, on pourrait essayer de passer d'une configuration à l'autre en rejoignant l'état le plus stable du système — réseau plan, champ sous-critique — en abaissant le champ magnétique puis en le ramenant à sa valeur initiale. C'est sans compter l'existence d'un réseau de concentration des particules magnétiques, parallèlement au réseau de pics. En effet, quand le réseau de pics se forme, nous avons vu au chapitre 2 que les lignes de champs s'accroissent sur les pointes. Ceci favorise l'apparition du réseau de concentration. Celui-ci est d'autant plus tenace que le ferrofluide utilisé est vieux... Ainsi, si l'on essaie d'obtenir une autre configuration de défauts en baissant le champ jusqu'à une valeur inférieure au seuil puis en l'augmentant jusqu'à une valeur supérieure au seuil, le réseau de concentration force le plus souvent la réapparition de la configuration

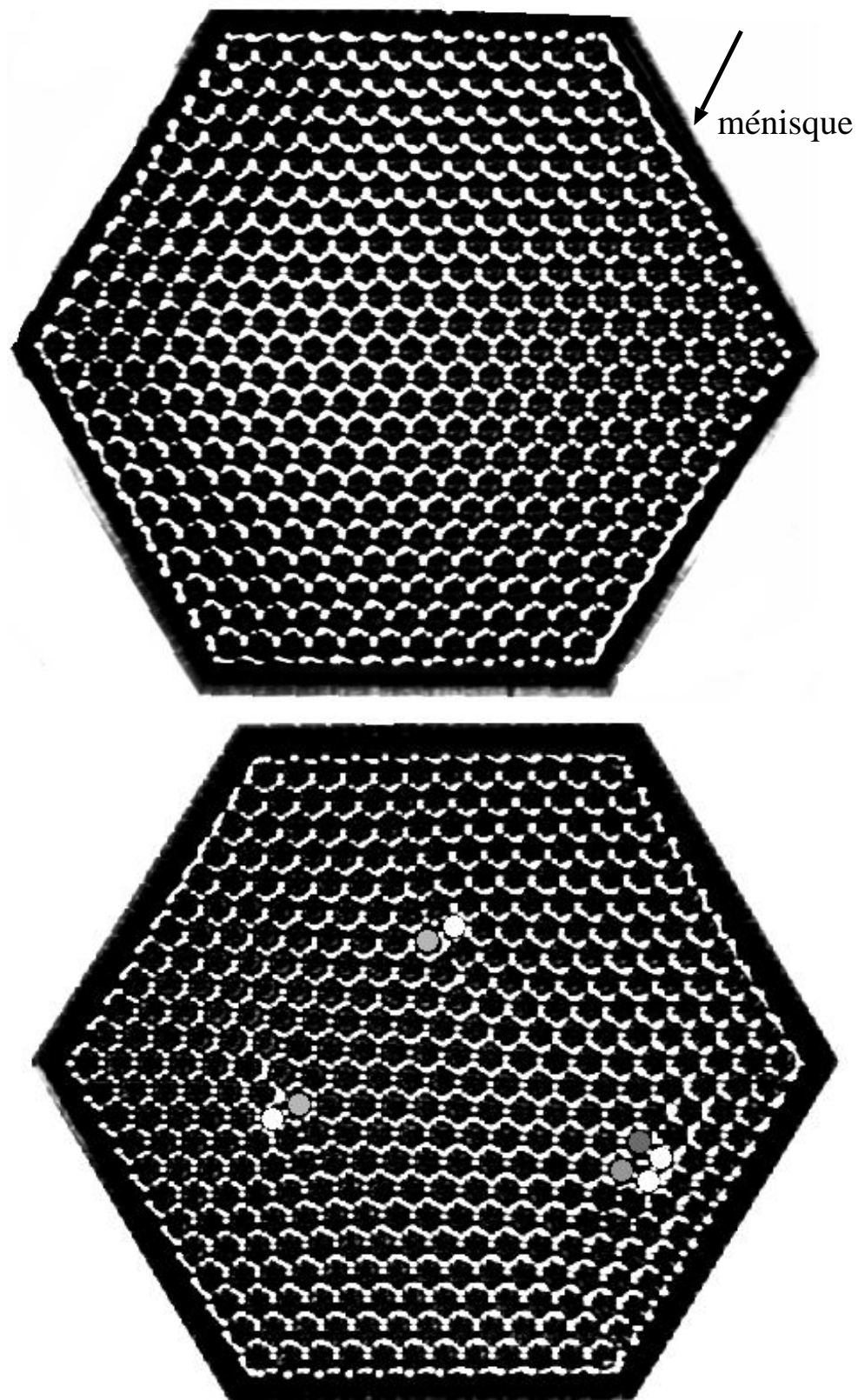


FIG. 6.10: Réseau hexagonal sans défaut (haut) ou avec des défauts penta-hepta isolés (bas).

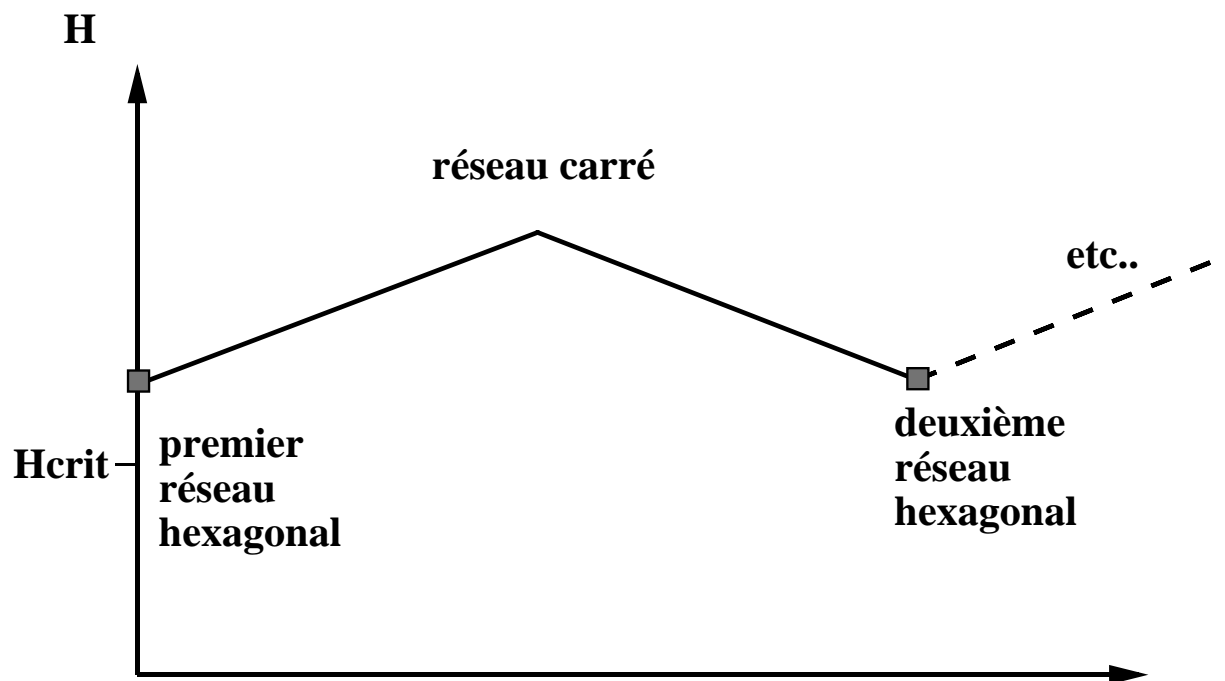


FIG. 6.11: Principe de la technique de recuit : obtenir une succession de réseaux hexagonaux en faisant croître et décroître le champ magnétique, tout en passant par l'état carré.

initiale. Une méthode s'impose naturellement : remuer le ferrofluide pour homogénéiser la distribution de dipôles magnétiques. Une autre méthode : la méthode de recuit inspirée de la métallurgie, où le champ magnétique joue le rôle de la température, et qui peut être appliquée quelque soit la forme de la cuve [60].

La technique de recuit consiste à augmenter le champ magnétique à partir du réseau hexagonal jusqu'au réseau carré puis à le faire décroître pour revenir à la structure hexagonale. Le processus est schématisé sur la Figure 6.11. Par cette méthode, on obtient une succession de réseaux hexagonaux qui sont autant de solutions métastables du système différentes. Nous verrons, au chapitre 8, qu'au delà du seuil de transition hexagones-carrés, les pics coalescent à partir d'un certain champ. Ainsi, le résultat obtenu lorsqu'on applique la technique de recuit dépend du champ atteint pour obtenir les carrés. Nous distinguerons ainsi deux types de recuits : les recuits avec ou sans coalescences de pics.

Lorsqu'on atteint le réseau carré sans coalescences de pics, le réseau hexagonal obtenu à la redescente en champ garde le même nombre d'onde  $k_{crit}$ . Sur les Figures 6.12 et 6.13, nous montrons deux exemples de recuits, pour lesquels on obtient une diminution des défauts penta-hepta, initialement présents dans le réseau hexagonal. De tels recuits seront qualifiés d'*efficaces*. Par contre, dans l'exemple illustré sur la Figure 6.14, le système passe d'un état à l'autre en changeant la distribution de ses défauts et très peu leur nombre. Ce recuit est *inefficace*. Cette méthode permet de passer d'une configuration de défauts à l'autre mais ne garantit pas une diminution des défauts.

Par contre, si on atteint le réseau carré avec coalescences de pics, le réseau hexagonal obtenu à la redescende a un nombre d'onde inférieur à  $k_{crit}$ . Nous verrons dans la section 8.6, que lorsqu'on a un réseau hexagonal avec un nombre d'onde inférieur à  $k_{crit}$ , on peut, en abaissant le champ magnétique, provoquer la création de nouveaux pics dans la cuve. Le mécanisme de croissance des pics se produit au niveau des défauts penta-hepta et équivaut globalement à l'expulsion de ces défauts sur les bords de la cuve. Ainsi, l'efficacité d'un tel recuit est certaine, et de plus améliorée. Nous présentons sur la Figure 6.15, un exemple de recuit avec coalescences. Ce recuit a été réalisé en montant le champ jusqu'à son maximum (c'est-à-dire  $M_{sat} = 300$  Gauss). On remarque que le nombre d'onde du deuxième réseau hexagonal est inférieur à celui du premier, puisqu'il y a eu coalescences de pics en montant aux carrés. Le troisième réseau hexagonal est obtenu après réapparition des nouveaux pics. Nous constatons que les défauts sont expulsés sur les bords de la cuve. Ce type de recuit comporte donc une étape supplémentaire — création de nouveaux pics — qui garantit son efficacité.

## Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié les réseaux et leur défaut à l'aide d'une méthode de transformation de Fourier bi-dimensionnelle. Le réseau hexagonal peut être décomposé en la superposition linéaire de trois modes à 120 degrés les uns des autres. Le défaut du réseau hexagonal, rencontré dans nos expériences, est le défaut penta-hepta. Il est constitué d'une paire de pics, dont l'un a cinq voisins, l'autre sept — au lieu de six dans un réseau parfaitement régulier. Quand le réseau hexagonal contient un défaut penta-hepta, deux modes sur trois sont altérés par une dislocation. Nous avons ensuite étudié le réseau carré. Celui-ci peut être vu comme la superposition linéaire de deux modes à 90 degrés l'un de l'autre. Ce réseau carré, lorsqu'il n'est pas régulier, contient généralement des joints de grain ou encore des dislocations.

Nous nous sommes ensuite intéressés au contrôle des défauts penta-hepta dans nos expériences. Généralement, le réseau hexagonal, qui se développe, contient de nombreux défauts. Ces derniers, disposés proches les uns des autres, forment des joints de grain. Nous avons mis au point deux méthodes afin d'éliminer les joints de grain, d'isoler les défauts ou d'en diminuer le nombre. Ceci nous permettra d'étudier dans le chapitre suivant leur rôle durant la transition. Une des deux méthodes consiste à changer les conditions aux limites cylindriques habituelles par des conditions aux limites hexagonales. Nous obtenons ainsi un réseau hexagonal avec peu de défauts isolés ou pas du tout. La deuxième méthode est inspirée de la méthode de recuit en métallurgie, où le champ magnétique joue le rôle de la température. Nous avons montré que cette méthode nous permettait d'obtenir une succession d'états métastables du système, chacun correspondant à une configuration de défauts. Nous distinguons deux types de recuits : le recuit sans coalescences de pics, le recuit avec coalescences de pics. Le recuit sans coalescences peut se révéler efficace, si le nombre de défauts diminue au terme du processus ou inefficace, lorsque le système va vers

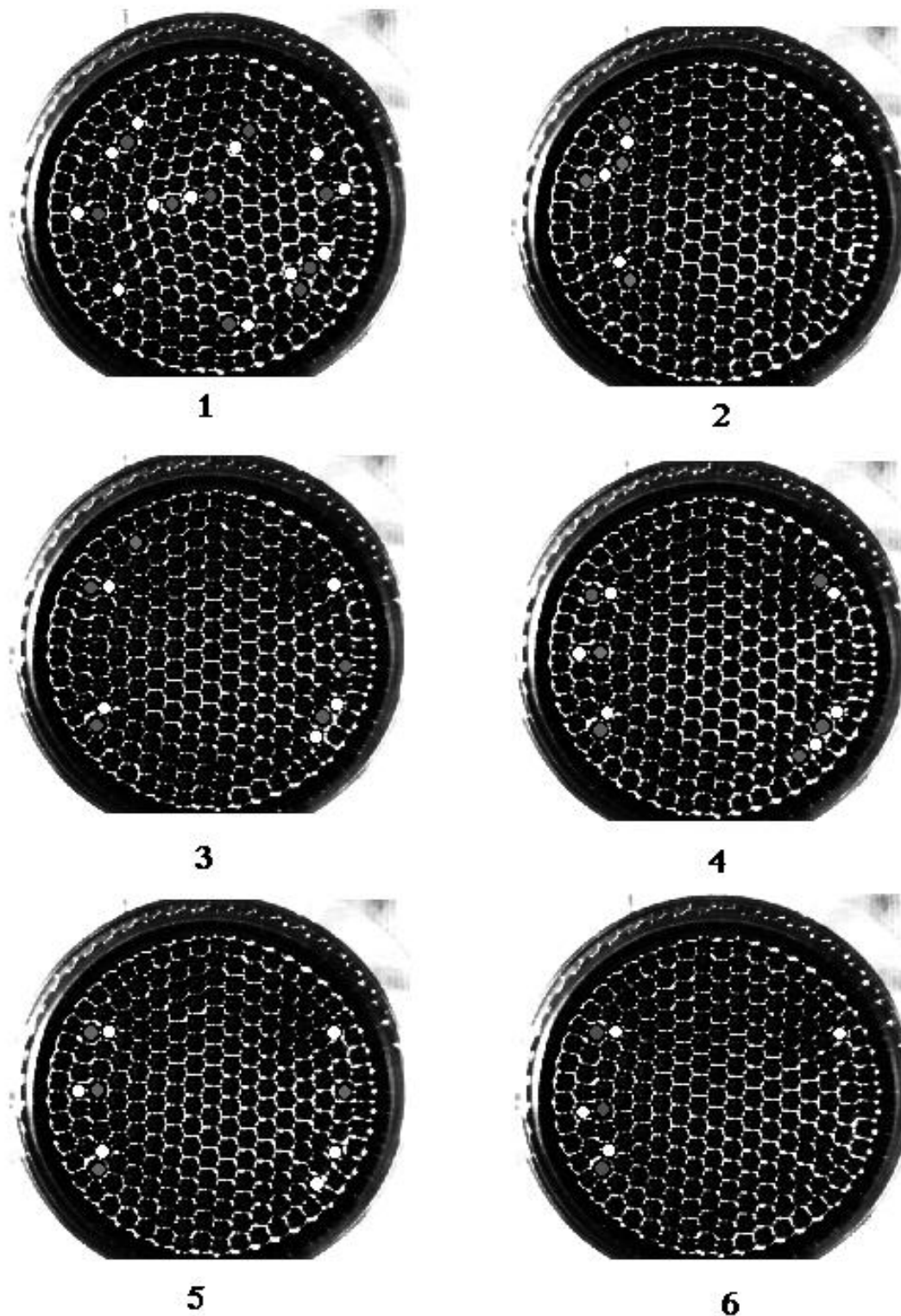


FIG. 6.12: Technique de recuit sans coalescences : diminution des défauts penta-hepta.

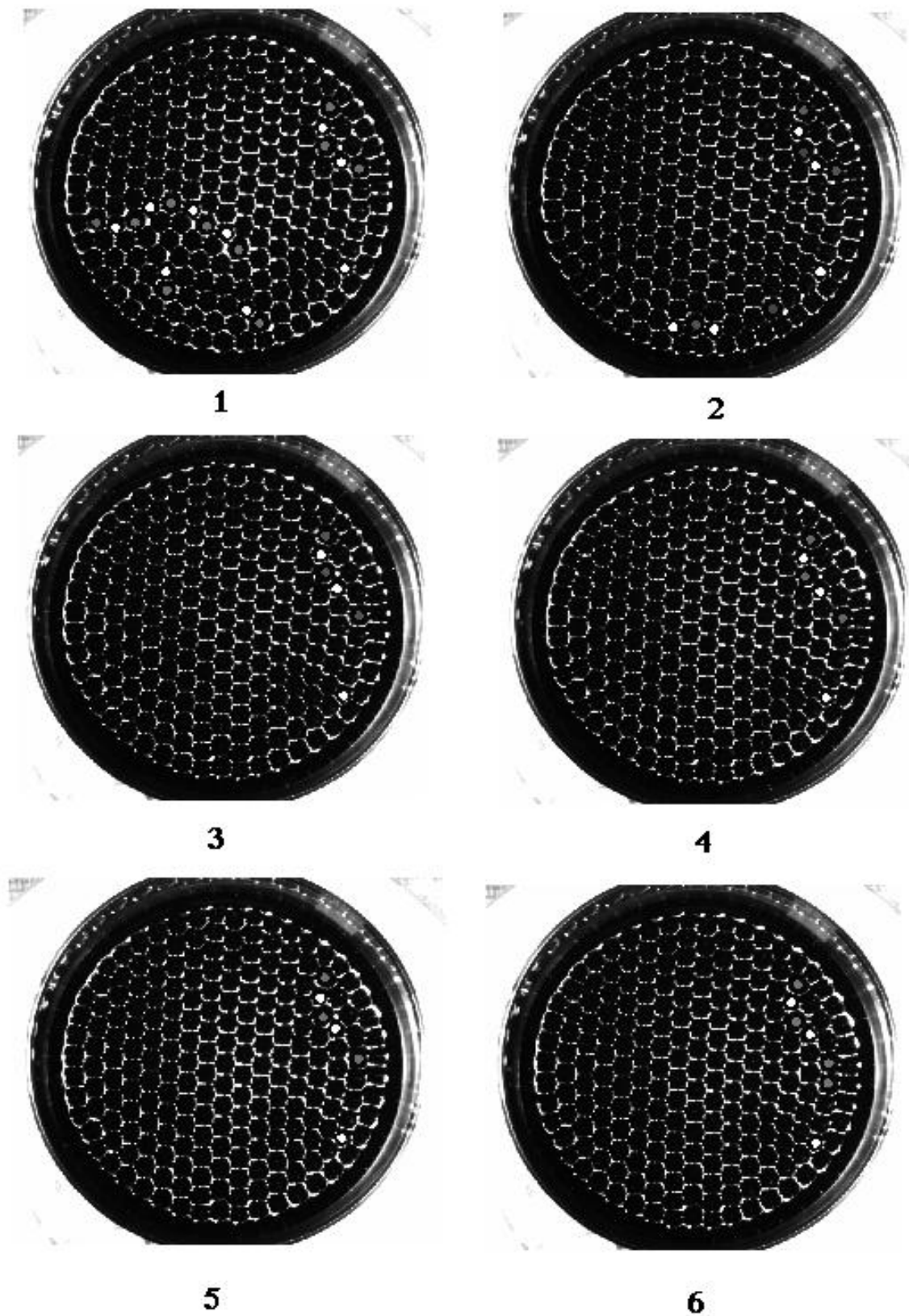


FIG. 6.13: Technique de recuit sans coalescences : les défauts penta-hepta diminuent dès la 2ème étape; la structure reste stable lors des étapes suivantes.



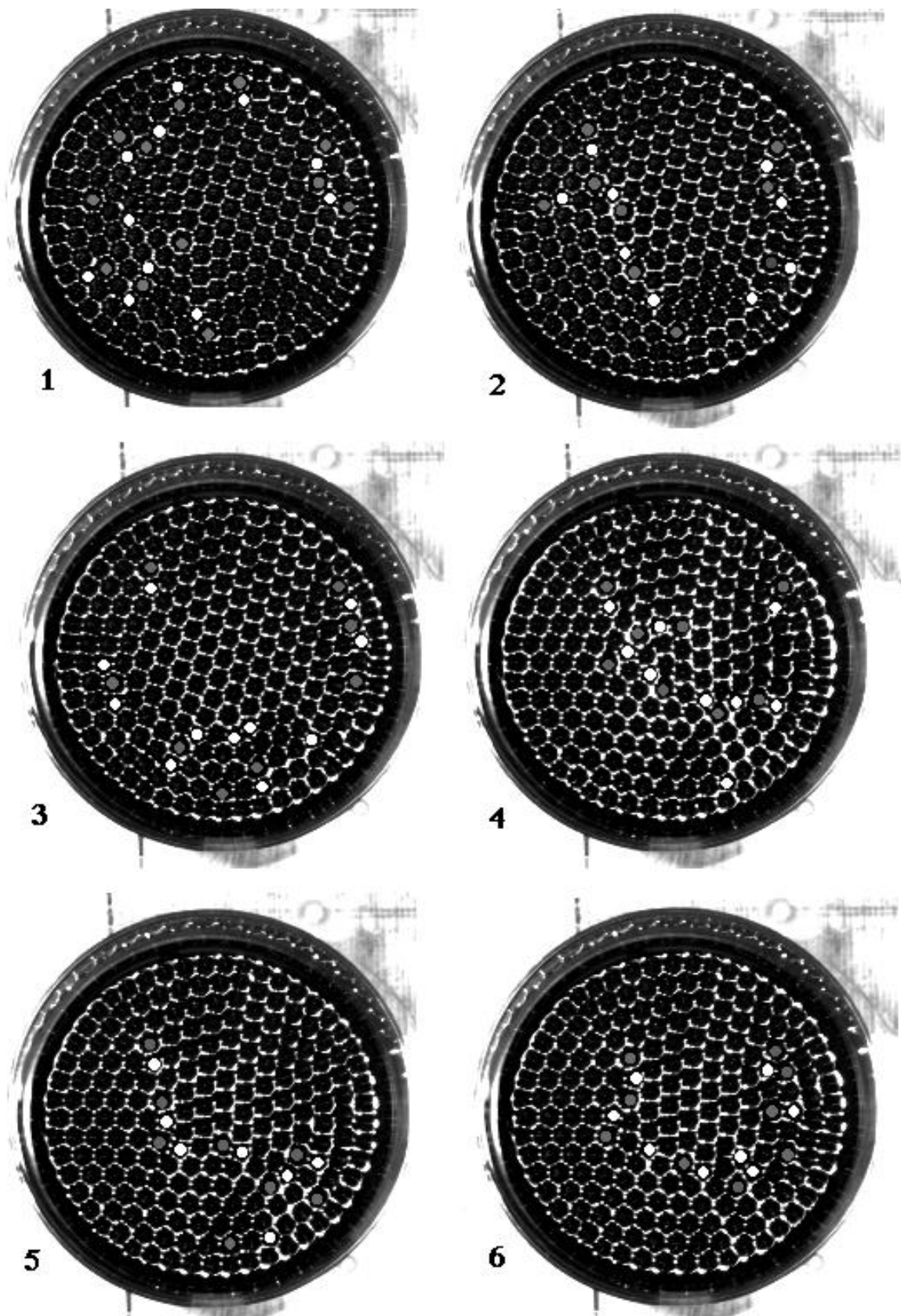


FIG. 6.14: Technique de recuit sans coalescences : succession d'états métastables du système, qui passe d'une configuration de défauts à l'autre.

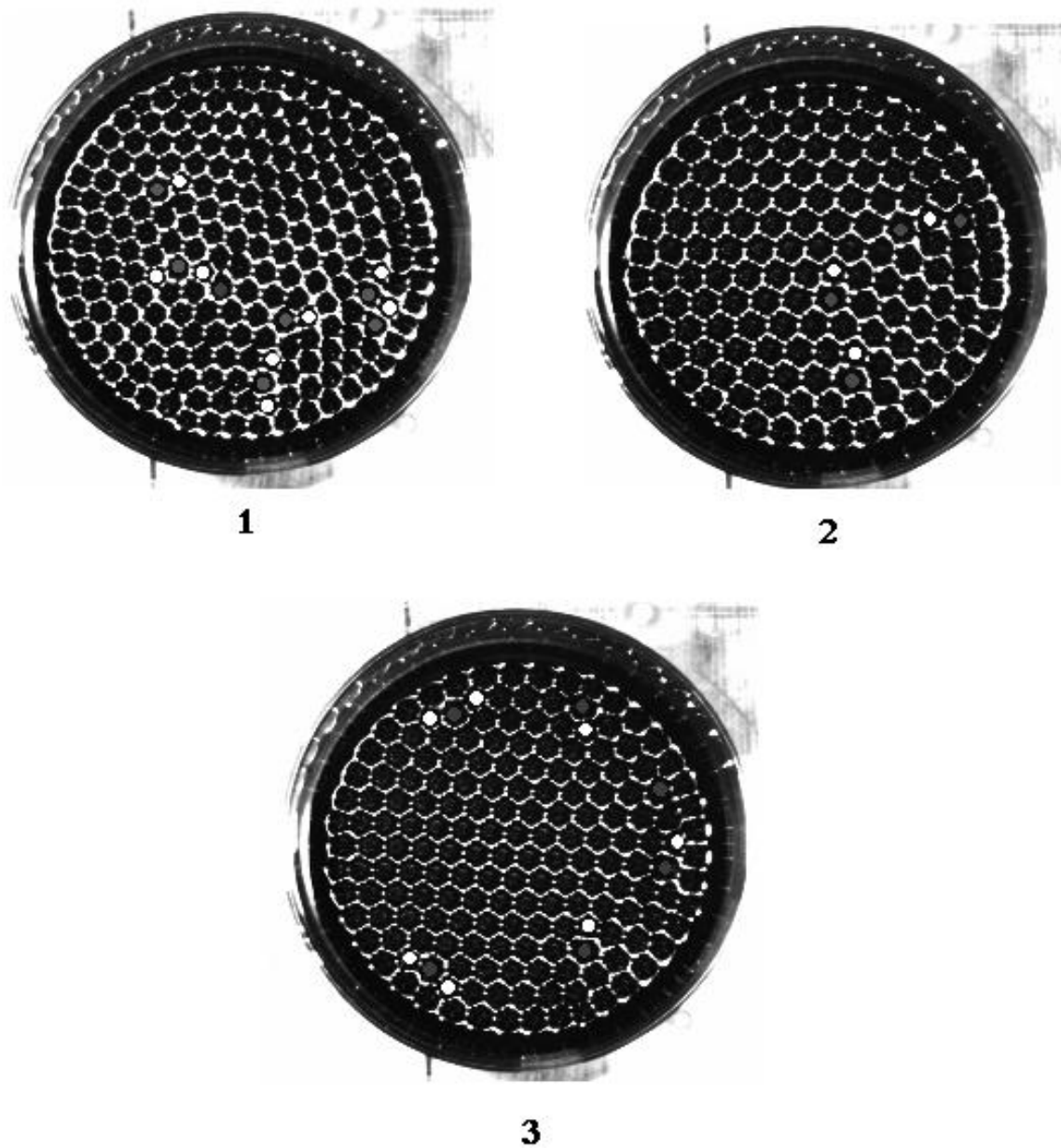


FIG. 6.15: Technique de recuit avec coalescences : après réapparition des pics sur l'image 3, on constate que les défauts ont été expulsés sur les bords.

une structure contenant plus de défauts. Nous avons montré que l'on pouvait améliorer l'efficacité d'un recuit sans coalescences, en utilisant les résultats du chapitre 8. Pour cela, on réalise un recuit avec coalescences de pics, auquel on rajoute une étape supplémentaire durant laquelle de nouveaux pics apparaissent dans le réseau hexagonal. Le processus de réapparition de ces pics implique l'expulsion des défauts sur les bords de la cuve. L'efficacité du recuit est ainsi améliorée.

Dans le chapitre suivant, nous allons étudier le mécanisme de la transition hexagones-carrés. Nous analyserons le rôle des défauts penta-hepta lors de la transition.

# Chapitre 7

## Phénoménologie de la transition hexagones-carrés

Dans ce chapitre, nous décrivons la phénoménologie de la transition hexagones-carrés dans les ferrofluides i.e., de quelle manière la symétrie initialement triangulaire se transforme en symétrie carrée, sous l'action du champ magnétique. Nous montrons que les défauts penta-hepta, présents dans la phase hexagonale, agissent comme des centres de nucléation de la transition et que les caractéristiques de la phase carrée sont présentes au niveau de ces défauts. Le mécanisme de la transition implique la formation de fronts pour lesquels le vecteur d'onde du réseau hexagonal, perpendiculaire au front, est conservé. Au seuil, nous montrons qu'il y a changement de nombre d'onde dans le système [64].

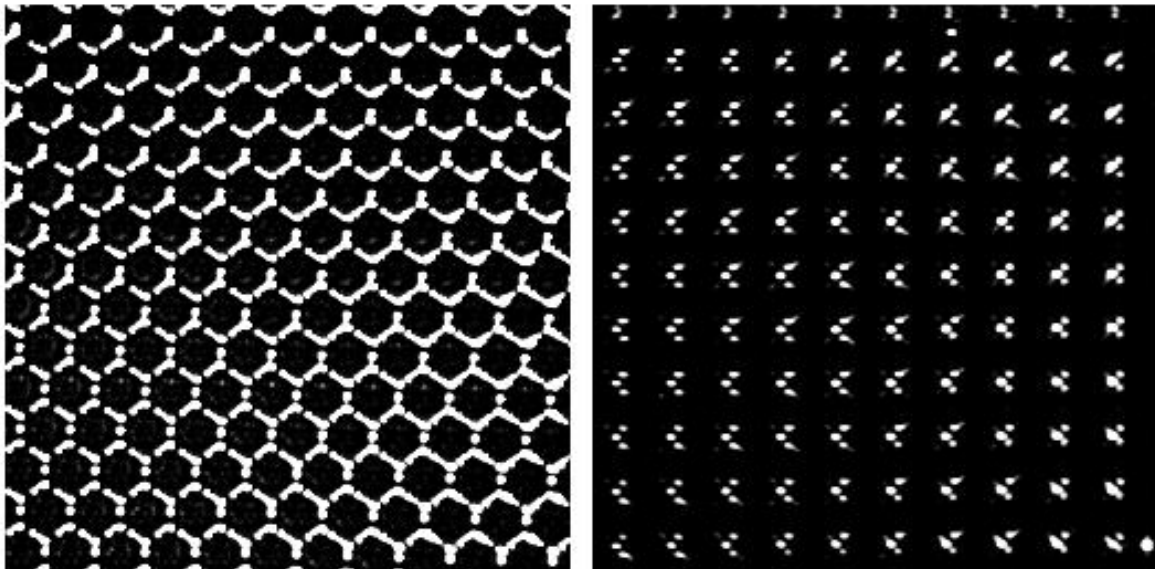


FIG. 7.1: Les réseaux hexagonal et carré de pics.

## 7.1 Description de la phénoménologie

Nous allons commencer par décrire la phénoménologie de la transition en l'absence de défauts c'est à dire le processus de transformation géométrique de la symétrie triangulaire en symétrie carrée. Pour cela, on réalise l'expérience dans la cuve hexagonale, où un réseau hexagonal régulier en tout point s'est établi : en l'absence de défauts, on remarque que la transition débute au niveau des parois, ou selon une diagonale de la cuve (Figure 7.4). Dans le paragraphe suivant, nous mettrons en évidence le rôle des défauts penta-hepta lors de la transition. Afin de mieux cerner la phénoménologie de la transition, nous allons utiliser les résultats du chapitre précédent, concernant l'analyse de Fourier. Nous rappelons que le réseau hexagonal peut être décomposé en la superposition linéaire de trois modes fondamentaux à 120 degrés les uns des autres.

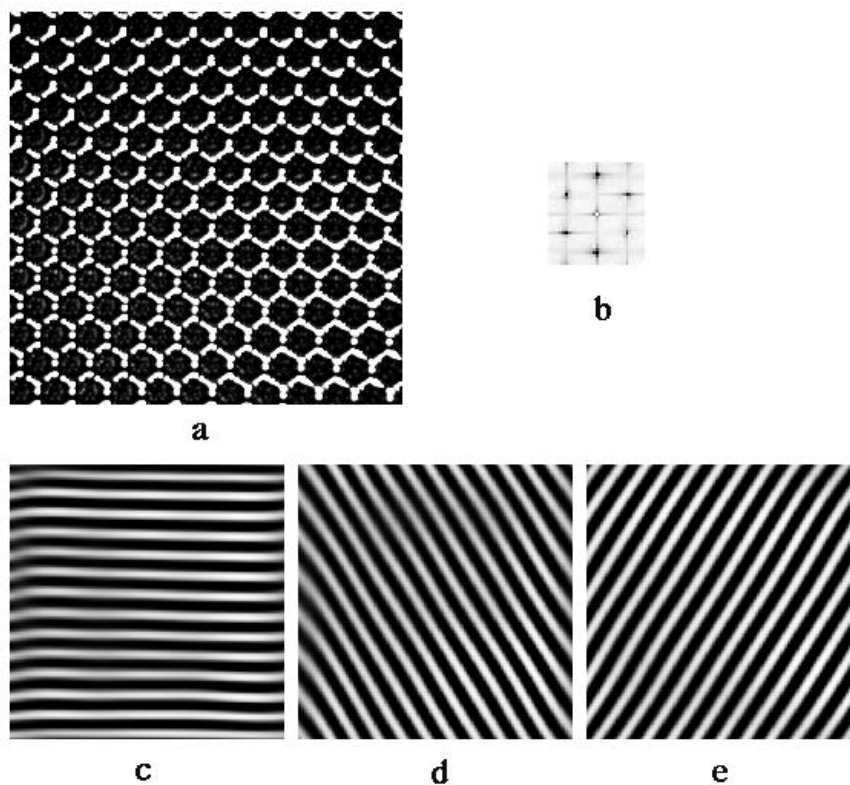


FIG. 7.2: Le réseau hexagonal (a) et les trois modes fondamentaux qui le constituent (c,d,e).

La transition débute de la manière suivante : une des rangées de pics, parallèle à l'un des côtés de la cuve (ou selon une diagonale de la cuve), commence à glisser sur elle-même. Ce glissement transforme localement la symétrie triangulaire en une symétrie rectangulaire — symétrie carrée sous contrainte (Figure 7.3). Cette symétrie rectangulaire, présente très

près du seuil seulement, va relaxer en symétrie carrée, lorsqu'on augmente le champ magnétique. Cette relaxation s'opère par dilatation du réseau rectangulaire dans la direction sous contrainte, c'est à dire par diminution de  $|\mathbf{k}_1|$ . Quand on augmente le champ et avant la transition, le réseau hexagonal n'évolue pas, ni ses défauts. Son nombre d'onde demeure constant. Le système reste dans la même configuration jusqu'au seuil de la transition hexagones-carrés, pour lequel quelques pics commencent alors à glisser de façon quasistatique. Nous définissons le seuil de la transition comme le champ à partir duquel, on observe les premiers pics glisser dans la cuve.

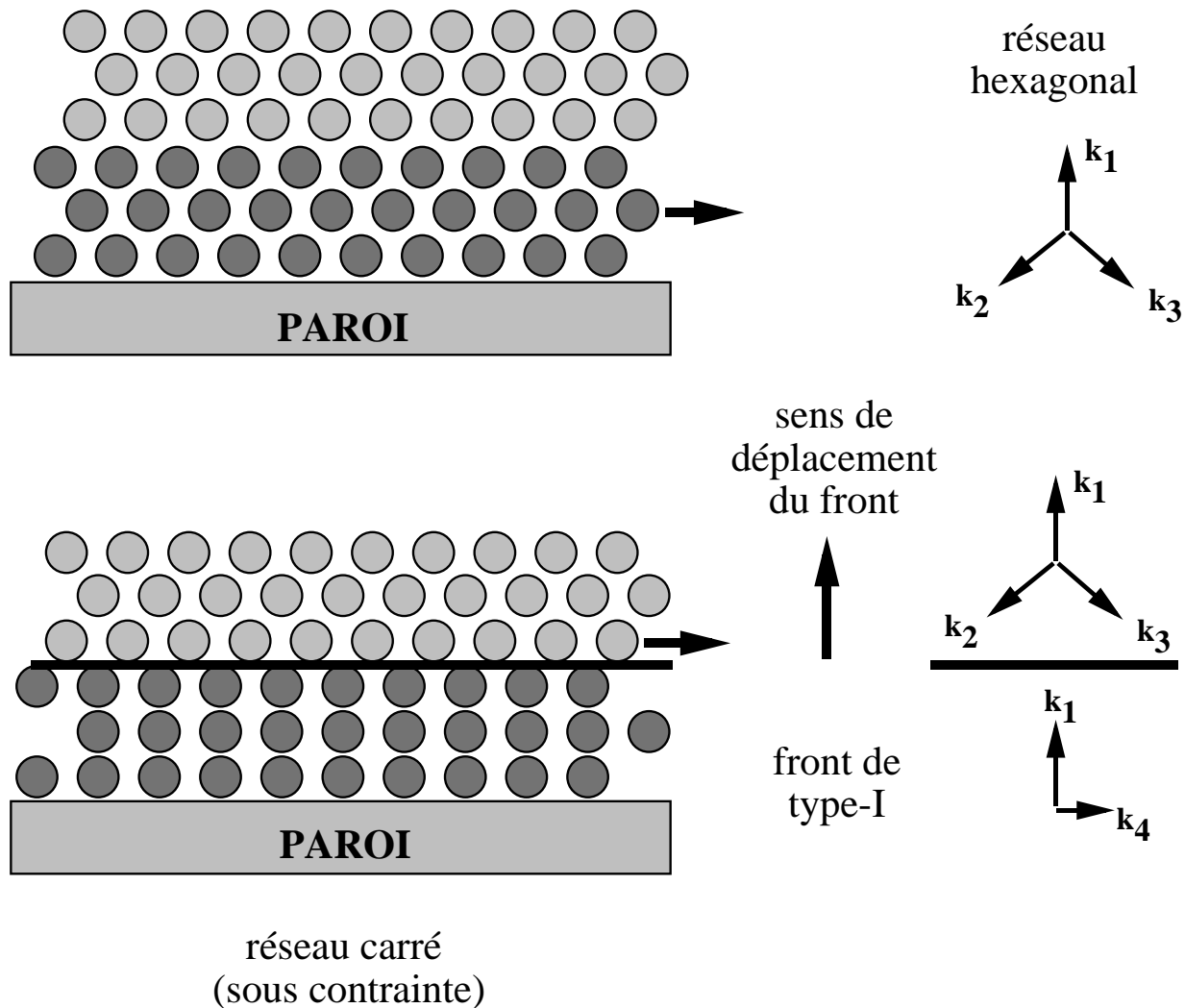


FIG. 7.3: Mouvement d'une rangée de pics par rapport à ses voisins, impliquant localement la transformation de la symétrie triangulaire en une symétrie rectangulaire; sur la droite de la Figure, nous avons représenté les réseaux dans l'espace de Fourier.

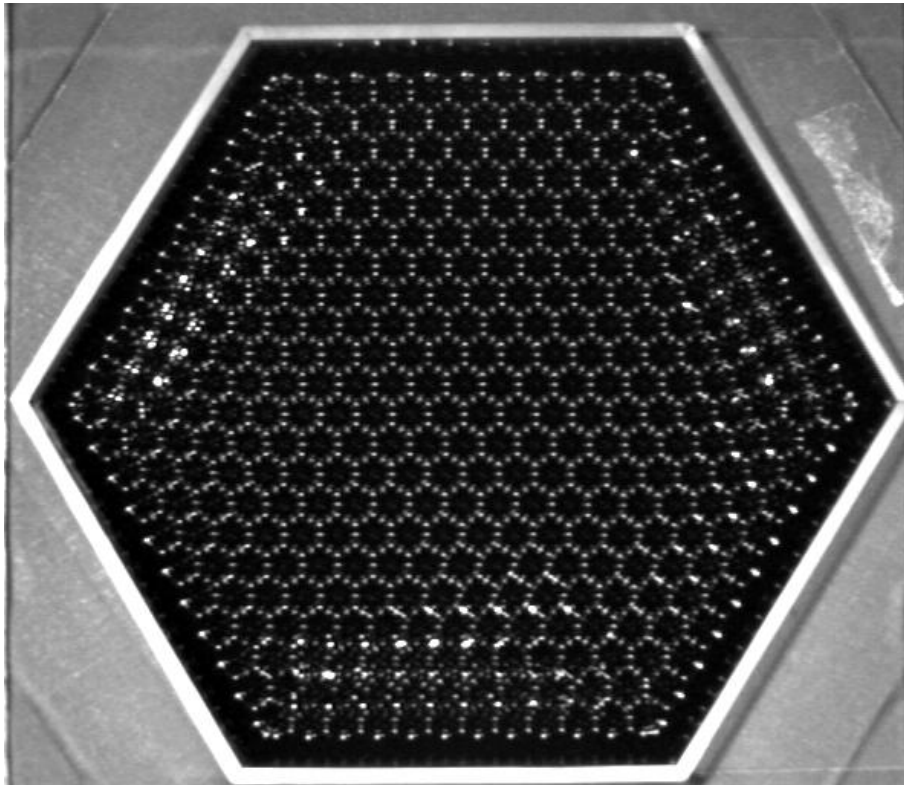


FIG. 7.4: En l'absence de défauts dans le réseau hexagonal, la transition s'amorce au niveau des parois.

### changement de nombre d'onde au seuil

Le mécanisme de la transition implique un changement de nombre d'onde au seuil (Figure 7.5). La longueur d'onde  $\lambda$  du réseau hexagonal représente la distance entre les rangées de pics et, est reliée à la distance interpics  $d$  par la relation  $\lambda = \sqrt{3}/2 d$ . Le nombre d'onde  $k$  est défini par la relation  $k_{hex} = 2\pi/\lambda = 4\pi/(\sqrt{3}d)$ . Pour le réseau carré, la distance interpic coïncide avec la longueur d'onde et le nombre d'onde vérifie  $k_{carré} = 2\pi/d$ . Près du seuil de la transition, les deux symétries coexistent, avec des nombres d'onde différents, vérifiant la relation :

$$k_{carré} = \sqrt{3}/2 k_{hex}$$

Ce fait expérimental n'a pas été pris en compte dans les calculs théoriques ou simulations numériques réalisées jusqu'à présent. Nous verrons au chapitre suivant 8, comment ces nombres d'onde évoluent lorsqu'on s'éloigne significativement du seuil. En particulier, nous verrons que les deux symétries coexistent pour une plage de champ magnétique, avec des nombres d'onde différents.

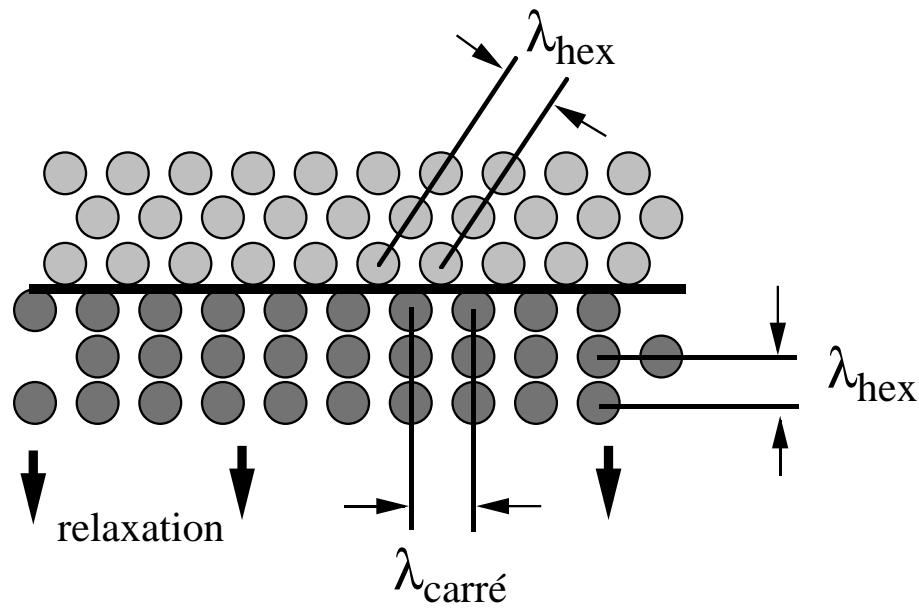


FIG. 7.5: Changement de nombre d'onde au seuil, entre le réseau hexagonal et le réseau carré;  $k_{\text{carré}} = \sqrt{3}/2 k_{\text{hex}}$ .

## Formation des fronts

Un front est la zone qui sépare deux symétries différentes. Dans notre expérience, nous observons des fronts stables entre les deux symétries coexistantes. Kubstrup *et al.* ont analysé théoriquement l'existence de fronts entre hexagones et carrés, dans le cadre de l'équation de Swift-Hohenberg généralisée [49, 48]. Ils ont considéré particulièrement deux types de fronts, les plus probables, pour lesquels un mode du réseau hexagonal est conservé pour former le carré. Sur la Figure 7.6 sont représentés dans l'espace de Fourier ces deux types de fronts : le type I et le type II. Pour un front de type I, c'est le vecteur d'onde du réseau hexagonal, perpendiculaire au front, qui est conservé entre les deux symétries, à la traversée du front. Pour le front de type II, à l'inverse, c'est le vecteur d'onde du réseau hexagonal, parallèle au front, que l'on retrouve pour le réseau carré.

Dans notre expérience, le mécanisme de la transition conduit à la formation de fronts de type I entre les deux symétries (Figure 7.3). Ce résultat expérimental confirme les simulations numériques effectuées par Kubstrup *et al.*, dans le cadre du modèle de Swift-Hohenberg généralisé. Ces simulations indiquent de plus, qu'un front de type I entre hexagones et carrés est stable pour une plage du paramètre de contrôle, fait que nous observons expérimentalement. Par contre, un front de type II apparaît comme instable. En cela, ils retrouvent les résultats de Malomed *et al.* pour qui un front stable impliquant des hexagones ne peut être que perpendiculaire à l'un des vecteurs du réseau hexagonal [47].



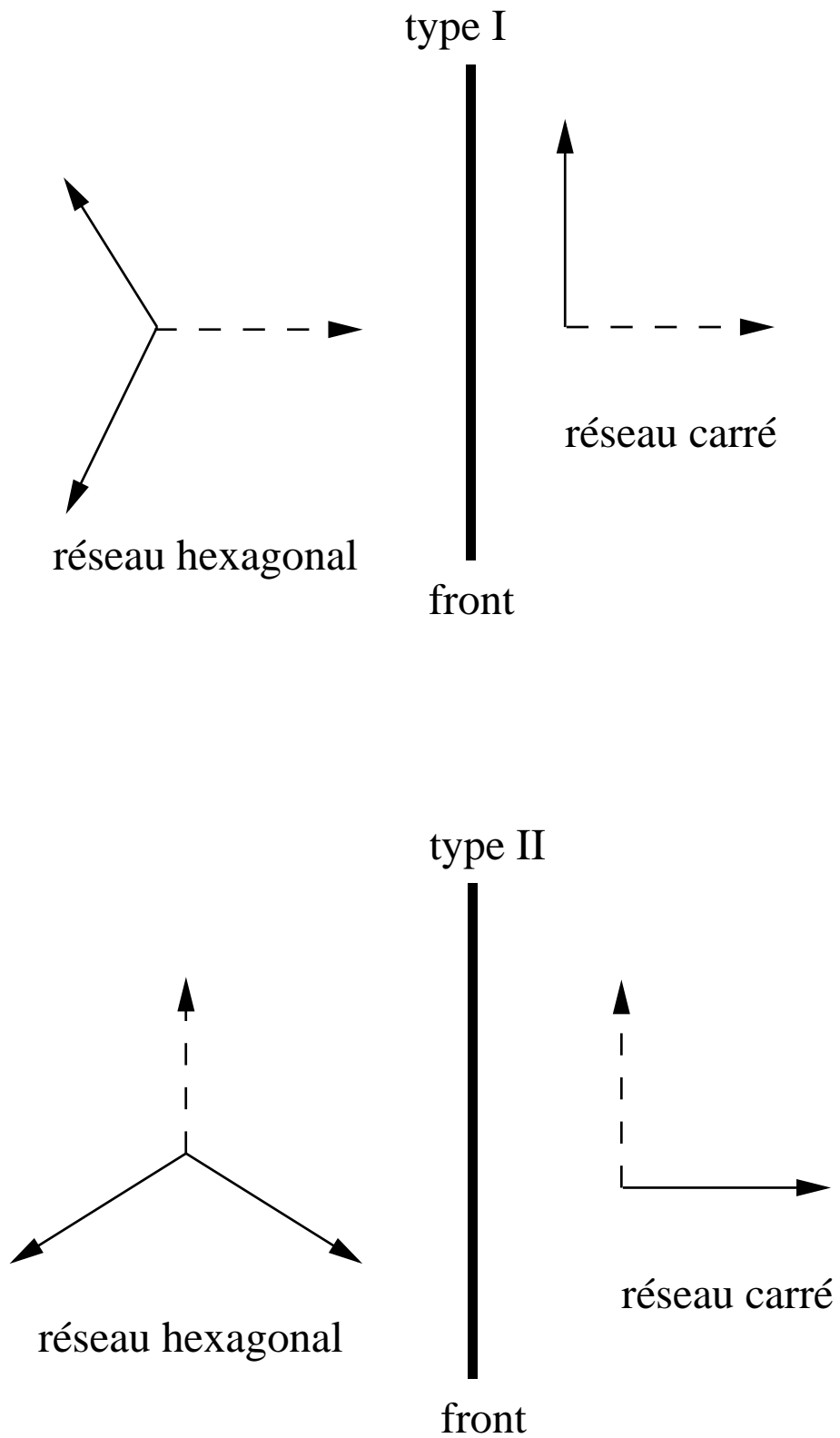


FIG. 7.6: Fronts de type I et II, dans l'espace de Fourier.

## 7.2 Rôle des défauts penta-hepta lors de la transition

Lorsque le réseau hexagonal contient un défaut penta-hepta, le transition s'amorce au niveau du défaut (Figure 7.7(a,b,c,d)). Nous rappelons qu'au niveau d'un défaut penta-hepta, deux directions sur trois, subissent une dislocation, la troisième n'étant pas altérée par le défaut (Chapitre 6). Le glissement des rangées de pics se produit selon la direction non altérée par le défaut, et débute au niveau du pic qui a 5 voisins. Sur la Figure 7.8, on a indiqué par deux flèches le sens de glissement des pics. Quand on augmente le champ, le glissement, au début localisé au niveau du défaut, se propage dans toute la rangée, puis aux rangées voisines (Figure 7.9). Le front se déplace dans la direction du pentagone du défaut penta-hepta. Le mode du réseau hexagonal, non altéré par le défaut devient l'un des modes du réseau carré (Figure 7.10). Le deuxième mode du réseau carré est créé par glissement des rangées et correspond à la direction de la paire pentagone-heptagone. On constate que les caractéristiques de la phase carrée sont présentes au niveau du défaut. À partir d'une image de défaut penta-hepta, on peut prédire comment va se former la phase carrée à cet endroit.

Quantitativement, nous remarquons que le seuil de la transition est inférieur quand celle-ci se produit en présence de défauts (chapitre 8). Ce comportement des défauts est général et se retrouve dans de nombreuses expériences. Ainsi, l'instabilité d'un cristal liquide nématique soumis à un champ électrique alternatif offre la possibilité d'étudier de nombreuses structures convectives de symétries décroissantes. À chaque structure correspond un type de défaut, qui nucléé la phase suivante [65, 66].

Comme nous l'avons vu, la transition hexagones-carrés a été récemment observée dans l'instabilité de Bénard-Marangoni [51, 67]. Dans l'annexe B, nous présentons brièvement les résultats expérimentaux concernant la phénoménologie de la transition dans cette instabilité. Dans les deux expériences, les défauts jouent un rôle important. Dans l'instabilité de Bénard-Marangoni, le processus de formation des carrés à partir des hexagones implique l'émergence de cellules pentagonales transitoires. Bien qu'apparemment différents, nous pensons que les mécanismes sont tout à fait semblables.

### Au delà du seuil

Nous venons de décrire la manière dont la transition vers le réseau carré se produit près du seuil : transformation locale de la symétrie triangulaire en symétrie carrée sous contrainte par glissement des rangées de pics, coexistence des deux symétries séparées par des fronts de type I stables.

Que se passe-t-il quand on augmente le champ ? Le réseau carré envahit progressivement le réseau hexagonal, à partir des défauts puis des parois. Parallèlement, sa longueur d'onde augmente avec le champ magnétique. On observe dans la cuve plusieurs bouts de réseaux carrés séparés par des joints de grain (Figure 7.11). L'extension du réseau carré est accompagnée de coalescences de pics au niveau des joints de grain. Plus on augmente le champ et plus les pics coalescent jusqu'à une limite de coalescence atteinte lorsque  $H = H_{max} = M_{sat}$ , où  $M_{sat}$  est l'aimantation de saturation du ferrofluide. En effet, lorsque  $H > M_{sat}$ , l'induc-

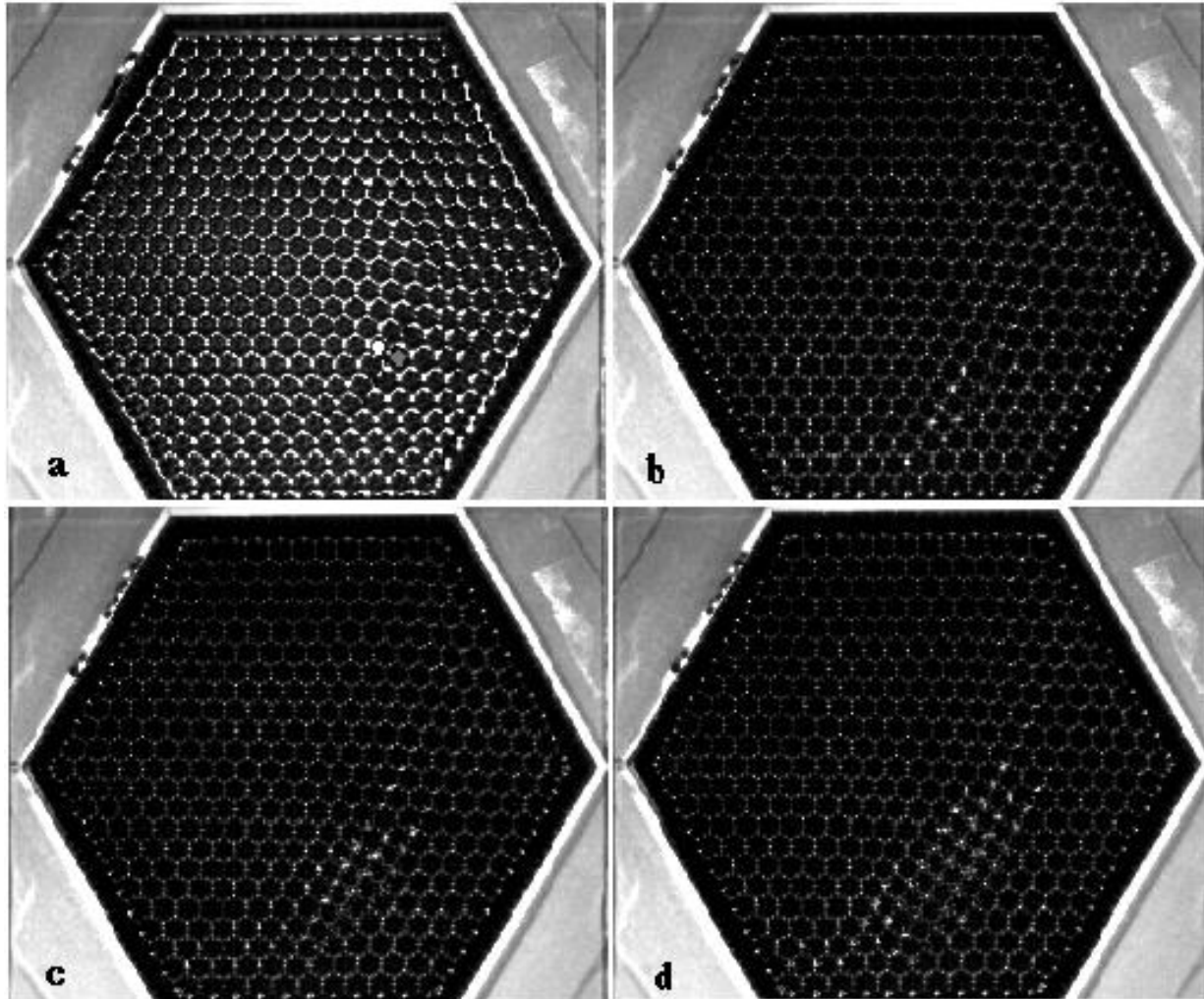


FIG. 7.7: La transition démarre au niveau du défaut penta-hepta; (a) :  $H_{crit} < H < H'_{crit}$ ; (b) :  $H \simeq H'_{crit}$ ; (c) :  $H = 1,04 H'_{crit}$ ; (d) :  $H = 1,06 H'_{crit}$ .

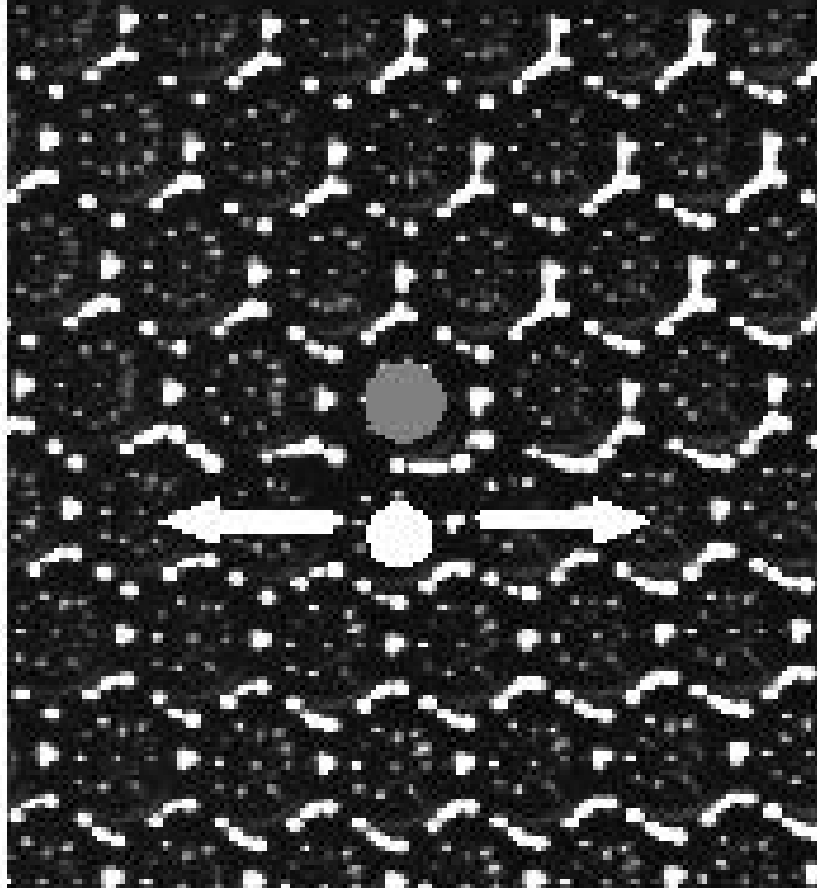


FIG. 7.8: défaut penta-hepta : les deux flèches indiquent dans quels sens vont se mouvoir les pics au dessus du seuil de transition.

tion magnétique n'a plus d'effet sur le ferrofluide et le réseau formé n'évolue plus. Environ 30% des pics ont disparu par coalescences lorsque le champ magnétique maximum est atteint.

Lorsque le champ magnétique décroît à partir du réseau carré, on observe la réapparition progressive du réseau hexagonal avec hystérésis. La phase hexagonale commence à envahir la phase carrée à partir des joints de grain du réseau carré. Le joint de grain est remplacé par deux fronts de type I, qui se propagent en faveur du réseau hexagonal. Le mécanisme de la transition carrés-hexagones est l'inverse de celui de la transition hexagone-carré : la transformation de la symétrie carrée en symétrie triangulaire s'effectue par glissement des rangées de pics.

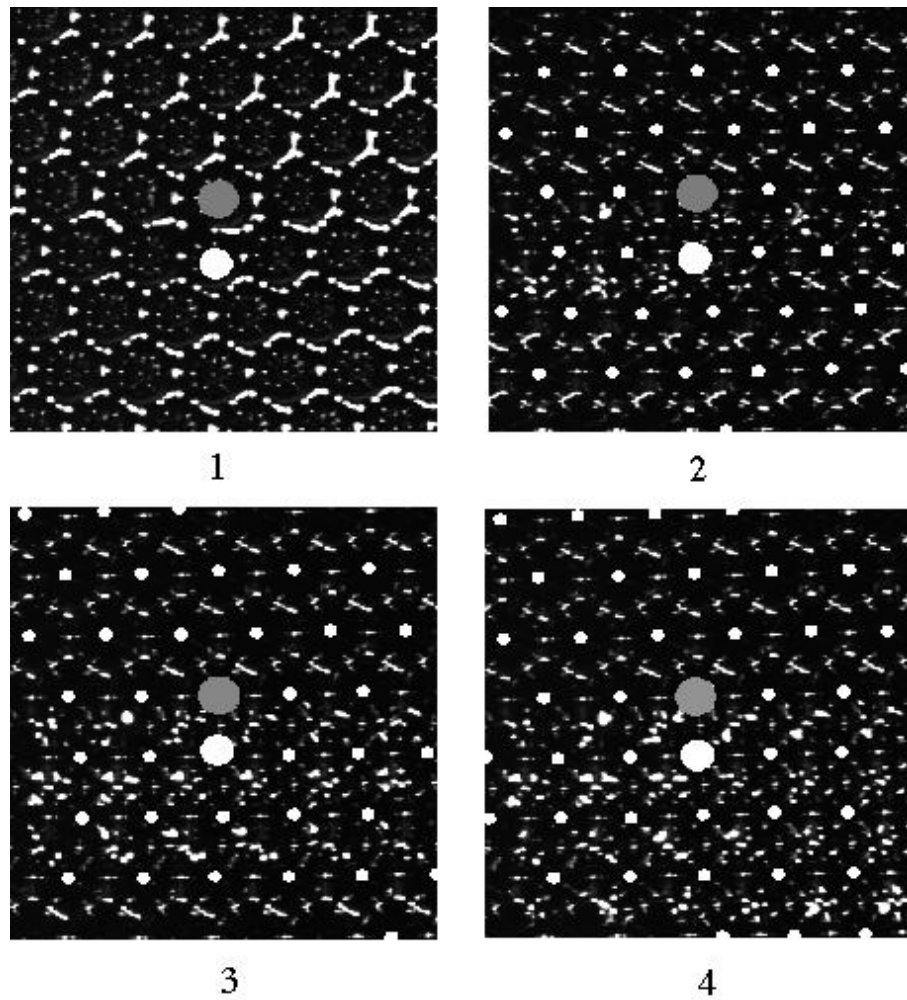


FIG. 7.9: Evolution du défaut penta-hepta lors de la transition; nous avons représenté les sommets des pics par des points blancs. Le mode non altéré par le défaut penta-hepta sert de base au réseau carré. Le deuxième mode du réseau carré est perpendiculaire au premier et correspond à la direction du défaut penta-hepta.

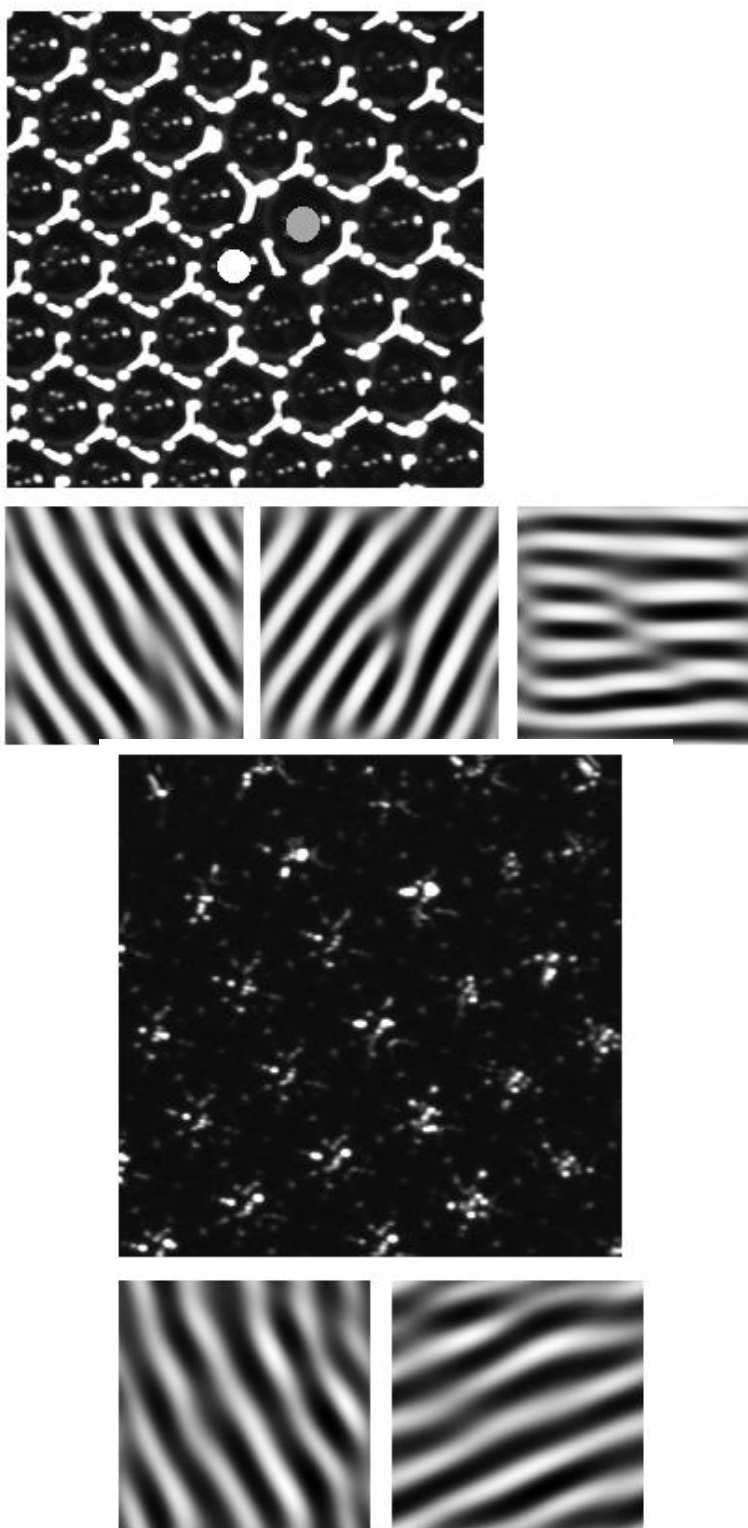


FIG. 7.10: Le réseau hexagonal (en haut) et ses trois modes reconstitués; le réseau carré (en bas) formé par augmentation du champ à partir du réseau hexagonal ci-dessus. Nous constatons que le mode non-altéré par le défaut est conservé lors de la transition.

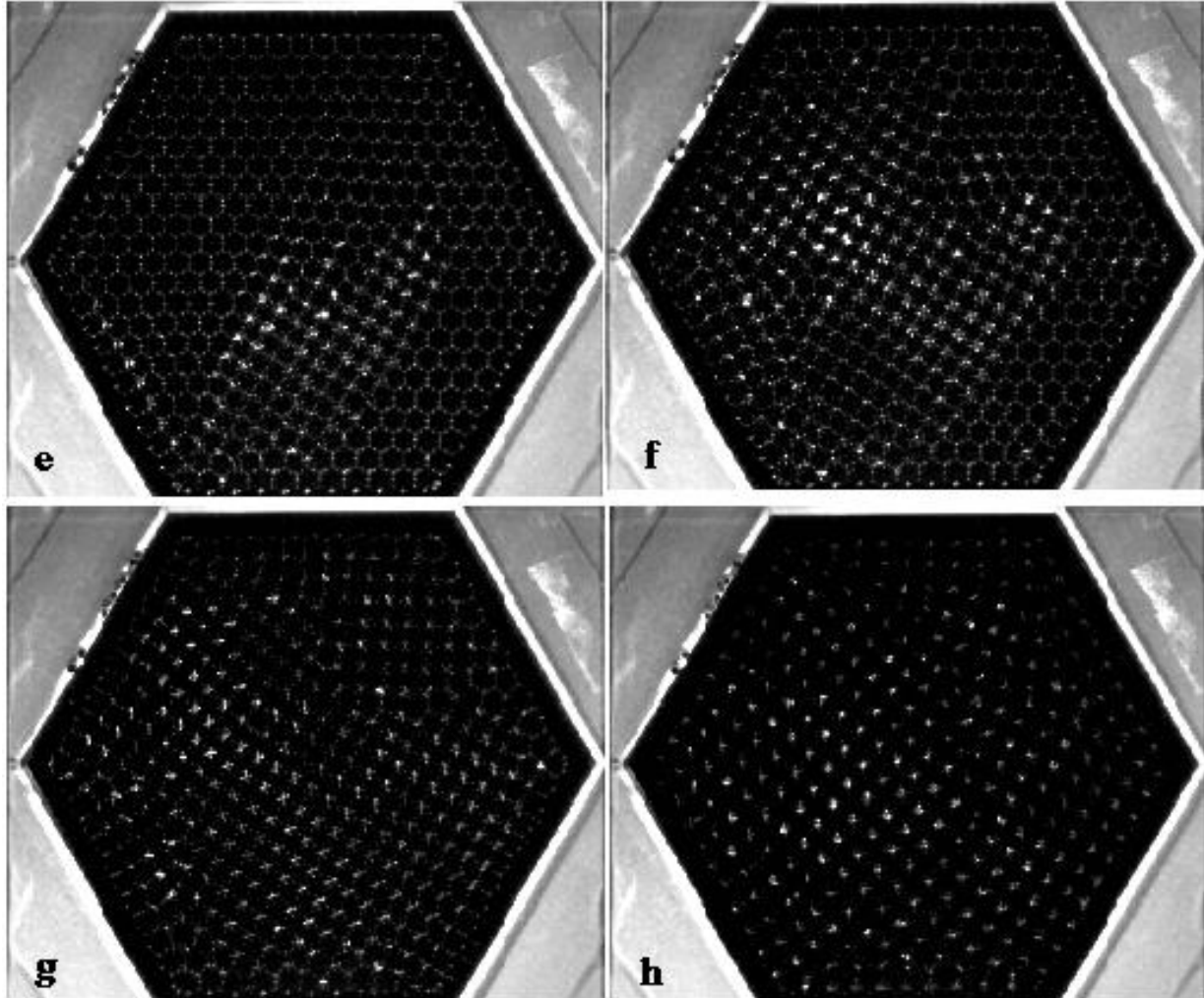


FIG. 7.11: Extension du réseau carré dans la cuve; on note la présence de joints de grain; (e) :  $H = 1,1 H'_{crit}$ ; (f) :  $H = 1,14 H'_{crit}$ ; (g) :  $H = 1,2 H'_{crit}$ ; (h) :  $H = 1,6 H'_{crit} = M_{sat}$ .

## Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié la phénoménologie de la transition hexagones-carrés. Nous avons mis en évidence le mécanisme géométrique de transformation de la symétrie triangulaire en symétrie carrée. Nous avons montré que le mécanisme de la transition implique la formation de fronts de type I, pour lesquels le vecteur d'onde du réseau hexagonal perpendiculaire au front est conservé. Ce résultat confirme ceux des simulations numériques faites sur le sujet. Au seuil de la transition, il y a changement de nombre d'onde : le réseau hexagonal reste à  $k_{crit}$  alors que le nombre d'onde du réseau carré est égal à  $\sqrt{3}/2 k_{crit}$ . Puis, nous avons analysé le rôle des défauts penta-hepta lors de la transition. Nous avons montré que les caractéristiques de la phase carrée étaient présentes au niveau de ces défauts. Ainsi, à partir de l'image du défaut penta-hepta, nous sommes capables de prédire l'orientation de la phase carrée à cet endroit. Dans l'annexe B, nous présentons la phénoménologie de la transition hexagones-carrés dans l'instabilité de Bénard-Marangoni. Bien qu'apparemment différentes, nous pensons cependant que les phénoménologies ne peuvent être que très semblables.

Ici, nous nous sommes surtout intéressés à ce qui se passait près du seuil. Dans le chapitre suivant, nous allons étudier la sélection du nombre d'onde par variation brutale puis quasistatique du champ magnétique. Nous nous intéresserons ainsi à ce qui se passe au delà du seuil.





# Chapitre 8

## Sélection du nombre d'onde

Nous nous sommes intéressés au problème de sélection du nombre d'onde dans le système — réseau hexagonal et réseau carré — dans les deux cas suivants [64] :

- variation quasistatique du champ magnétique;
- variation brutale du champ magnétique.

Dans ces deux cas, nous constatons que les résultats obtenus — nombre d'onde et réseau sélectionnés — sont très différents. L'analyse linéaire du chapitre 4 nous indique que lorsqu'on est très proche du seuil, une bande de nombre d'onde de largeur  $\varepsilon^{1/2}$  — cas inertiel — ou  $\varepsilon$  — cas visqueux — est instable. La question qui se pose est de savoir quel est le nombre d'onde final dans cette bande pour un processus et un  $\varepsilon$  donnés.

Dans ce chapitre, nous expliquons tout d'abord comment nous avons mesuré les nombres d'onde des deux réseaux — hexagonal et carré. Puis, nous présenterons les résultats de sélection du nombre d'onde, par variation brutale puis quasistatique du paramètre de contrôle. Lorsqu'on fait croître brutalement le champ magnétique d'une valeur nulle à une valeur surcritique, nous sélectionnons toujours le réseau hexagonal. Ceci même si la valeur du champ imposée est supérieure au seuil de la transition hexagones-carrés. Le nombre d'onde du réseau hexagonal est d'autant plus petit que le champ imposé est important. Lorsqu'on fait varier le champ de façon quasistatique, on observe une transition hystérétique entre le réseau hexagonal et le réseau carré. Les deux symétries coexistent dans un intervalle de valeurs du paramètre de contrôle. Nous analysons les domaines de stabilité des différentes symétries que nous comparerons aux prévisions théoriques. Nous verrons que le nombre de pics dans la cuve varie au cours du cycle d'hystérésis. Nous observons la coalescences de pics lorsque  $\varepsilon$  croît, puis leur réapparition lorsque  $\varepsilon$  décroît. Nous avons déterminé le processus de réapparition des pics. Lorsque  $\varepsilon$  décroît, nous pouvons sélectionner pour le réseau hexagonal un nombre d'onde qui dépend de l'amplitude du cycle.

## 8.1 Mesure des nombres d'onde; adimensionnement des paramètres

Afin de calculer le nombre d'onde d'un des réseaux, nous mesurons tout d'abord la distance interpic dans le réseau. Nous rappelons que le nombre d'onde  $k_{hex}$  du réseau hexagonal est relié à la distance interpic  $d$  par la relation  $k_{hex} = 4\pi/(\sqrt{3}d)$ . Pour le réseau carré, cette relation devient  $k_{carré} = 2\pi/d$ . Pour la mesure de la distance interpic  $d$ , nous étalonnons la caméra à l'aide du logiciel de traitement d'image NIH-Image, qui convertit alors une longueur en pixel sur l'écran en une longueur en unités du Système International. Lorsque l'on mesure la distance interpic, deux sources d'incertitudes apparaissent :

1. l'incertitude de mesure évaluée sur l'écran;
2. la dispersion statistique des mesures.

Expérimentalement, nous constatons que le deuxième type d'erreur est négligeable devant le premier et nous nous contenterons d'évaluer l'incertitude due à la mesure sur l'écran et de négliger celle due à la dispersion.

Lorsque l'on fait les mesures dans la cuve hexagonale, le réseau hexagonal est très régulier et contient environ 400 pics. La régularité du réseau dans la cuve hexagonale facilite beaucoup les mesures, par rapport à la cuve cylindrique. La distance interpic est mesurée dans les trois directions du réseau hexagonal et sur une moyenne d'une dizaine de pics, pour chaque mesure. L'incertitude relative sur la mesure de nombre d'onde est de l'ordre de 2% — alors que l'incertitude relative due à la dispersion statistique est de l'ordre de 1%. Par contre, l'incertitude relative sur la mesure de nombre d'onde du réseau carré est de l'ordre de 5%. Cette plus grande incertitude est due, d'une part, à la présence des caustiques de réflexion, d'autre part aux nombreux joints de grain puisque les expériences sont réalisées en cuve hexagonale. Les caustiques de réflexion à la surface du réseau carré rendent la détermination de la position des sommets difficile.

Les expériences sont réalisées dans la cuve hexagonale, contenant une couche de ferrofluide d'épaisseur  $a = 1, 3$  cm. Les résultats de l'analyse linéaire du chapitre 4 nous indiquent que l'on peut considérer que la couche est inertielle et d'épaisseur infinie. Nous rappelons brièvement les résultats de l'analyse linéaire correspondante :

$$\begin{aligned} k_{crit} &= k_c = (\rho g / \gamma)^{1/2} \\ H_{crit} &= \left( \frac{2}{\mu_0} \frac{(\mu_0 / \mu + 1)}{(\mu_0 / \mu - 1)^2} \right)^{1/2} (\rho g \gamma)^{1/4} \\ k_m &= \frac{1}{3} (2(\varepsilon + 1) + (4(\varepsilon + 1)^2 - 3)^{1/2}) \end{aligned}$$

Nous rappelons la définition du paramètre de contrôle de l'instabilité adimensionné, défini comme la distance au seuil où  $H_0$  est l'induction magnétique appliquée et  $H_{crit}$  est la valeur critique de l'induction magnétique  $H$  :

$$\varepsilon = H_0^2 / H_{crit}^2 - 1$$

Au seuil de l'instabilité,  $\varepsilon = 0$ .

Nous évaluons expérimentalement le champ critique  $H_{crit} = 140 \pm 5$  Gauss et  $k_{crit} = 646 \pm 32 \text{ m}^{-1}$ , valeurs qui sont en bon accord avec les résultats de l'analyse linéaire pour laquelle  $k_{crit} = 664 \text{ m}^{-1}$  et  $H_{crit} = 148$  Gauss (cf annexe A pour le calcul de  $H_{crit}$ ). Pour le réseau hexagonal à  $k_{crit}$ , le nombre de pics  $N_{crit}$  dans la cuve hexagonale est d'environ 400 pics. Un calcul simple montre que, pour le réseau hexagonal, le nombre d'onde  $k$  est proportionnel à  $N^{1/2}$ . Nous verrons plus loin qu'il est parfois utile de raisonner en fonction de  $N$ , conjointement à  $k$ .

Les incertitudes sur les mesures de nombres d'onde et de champ magnétique n'ont pas toujours été reportées sur les graphes. Dans ce cas, elles sont de l'ordre de 2% en valeur relative sur les mesures de  $k/k_{crit}$  dans le réseau hexagonal, de l'ordre de 5% dans le réseau carré. L'incertitude sur l'évaluation de  $\varepsilon$  comprend l'incertitude systématique sur la mesure du champ magnétique et aussi l'incertitude sur l'évaluation expérimentale du champ critique. Elle est de l'ordre de 5% en valeur relative.

## 8.2 Sélection brutale du nombre d'onde

Le processus expérimental est le suivant : on règle le champ magnétique à une valeur fixée et supérieure au seuil de l'instabilité, puis on introduit rapidement la cuve de ferrofluide dans le champ. En fait, comme le fait d'introduire la cuve dans le champ prend déjà un certain temps — de l'ordre de quelques secondes, nous remuons vigoureusement la cuve dans le champ afin de détruire tout réseau qui aurait eu le temps de se former durant la phase d'introduction. L'idée qui sous-tend cette procédure est de sélectionner le nombre d'onde et le type de réseau, à partir de la surface libre. Nous observons que le réseau sélectionné est hexagonal, quelque soit la valeur du champ imposée supérieure au seuil d'apparition de l'instabilité  $H \geq H_{crit}$ . Le nombre d'onde est d'autant plus petit que le champ imposé est grand. Nous notons  $k^*$  le nombre d'onde du réseau hexagonal obtenu par ce processus. Sur la Figure 8.1, nous avons représenté les résultats des mesures de nombre d'onde en fonction du champ magnétique imposé, ainsi que la courbe de stabilité marginale théorique pour une couche d'épaisseur infinie et inertielle. Le nombre d'onde sélectionné par un tel procédé décroît jusqu'à  $0,72 k_{crit}$  pour le champ magnétique maximal ( $H = M_{sat}$ ). Ceci correspond à un nombre de pics dans la cuve variant jusqu'à  $0,5 N_{crit}$ . Comme le taux de croissance est nul strictement au seuil de l'instabilité, l'état d'équilibre correspondant n'est pas observé expérimentalement. En effet, il faudrait attendre un temps infini pour l'obtenir. Néanmoins, nous pensons que cet état d'équilibre est le le réseau hexagonal à  $k_{crit} = k_c$ .

Plus le champ magnétique imposé est grand et plus le réseau hexagonal met du temps pour s'établir dans la cuve. Ce temps d'établissement de la structure — à ne pas confondre avec le temps d'établissement de l'instabilité — varie de quelques secondes à quelques minutes. Quand le champ magnétique est important, le système passe par un état transitoire de réseau hexagonal et carré coexistants, avant de se transformer en un réseau hexagonal au bout d'un temps de l'ordre de quelques minutes. Pour fixer les idées, lors d'une expérience pour laquelle le seuil de transition hexagones-carrés est égal à 188 Gauss, le réseau

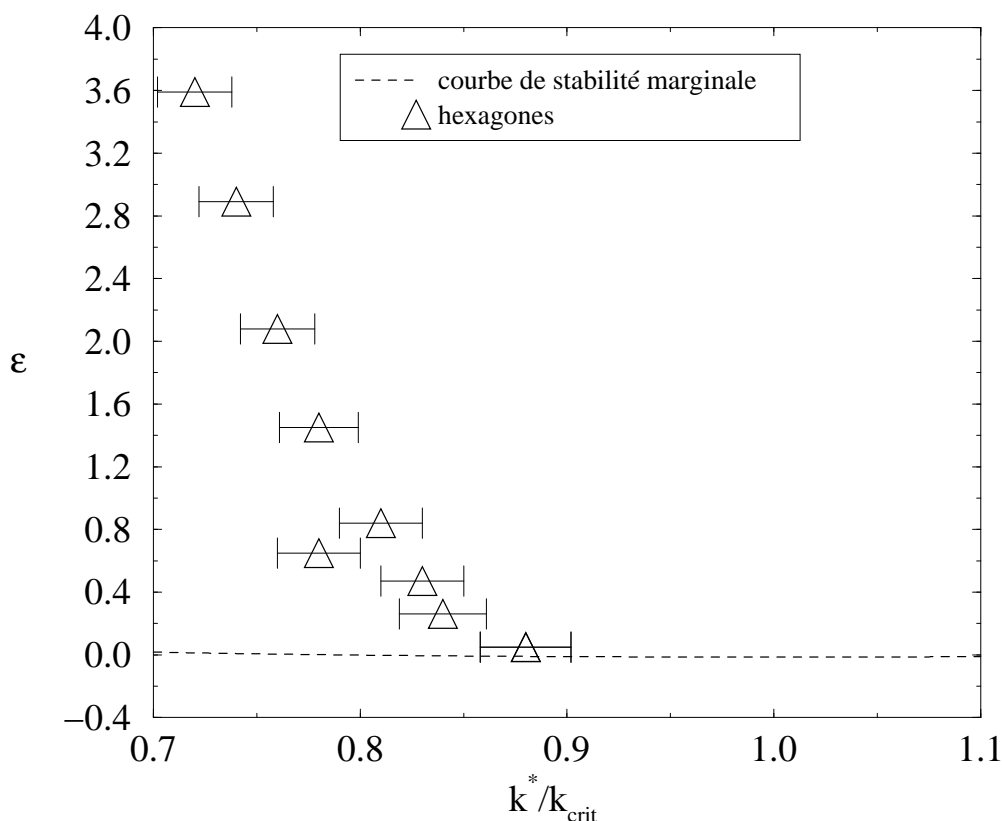


FIG. 8.1: Sélection brutale du nombre d'onde.

hexagonal d'équilibre s'établit très vite — quelques secondes — jusqu'à environ 200 Gauss puis au-delà, le temps d'établissement du réseau hexagonal s'accroît jusqu'à une dizaine de minutes pour un champ imposé de 300 Gauss.

Pour  $\varepsilon$  légèrement positif, nous avons vu qu'il existe un nombre d'onde  $k_m$  dans la bande instable avec un taux d'accroissement des fluctuations linéaire maximal. Les fluctuations avec ce nombre d'onde croissent plus vite que les autres. Une idée naturelle est que le nombre d'onde  $k_m$  est sélectionné pour la structure, quand on utilise des variations brutales de champ. Ce résultat a été validé expérimentalement en couche mince [35, 36]. Quand on fait varier le champ de façon quasistatique, les conditions aux limites — le ménisque, la taille de la cuve — peuvent jouer un rôle supplémentaire dans la sélection du nombre d'onde et le problème s'avère être compliqué. Dans notre expérience, réalisée en couche épaisse, nous pouvons constater que le nombre d'onde sélectionné ne correspond pas au  $k_m$ , puisque ce dernier croît en fonction de  $\varepsilon$ . Nous allons voir qu'il faut cependant manier ce résultat avec précaution.

Pour une couche épaisse, l'analyse linéaire du chapitre 4 nous indique que le temps d'établissement  $\tau$  de l'instabilité est de l'ordre de grandeur du temps capillaire  $\tau_c$  pour une couche inertielle et de  $\tau_c f$  pour une couche visqueuse.

Pour notre ferrofluide APG 512 A,  $f = 0,27$  et  $\tau_c \simeq 10^{-2}$  s. Si l'on considère les résultats de l'analyse linéaire, la couche de ferrofluide a un comportement visqueux très près du seuil, puis inertiel lorsqu'on s'en éloigne (Figure 4.3). En fonction du champ magnétique appliqué, la théorie linéaire prédit que le temps d'établissement de l'instabilité est soit de l'ordre de  $\tau_c \simeq 10^{-2}$  s ou de  $\tau_c f \simeq 2.10^{-3}$  s. Afin de pouvoir sélectionner le  $k_m$ , il faudrait que le temps d'établissement de l'instabilité soit supérieur au temps d'établissement du champ magnétique. Étant donné notre processus expérimental, il est difficile de dire si l'on doit s'attendre à effectivement sélectionner le  $k_m$ . Nous pourrions de plus penser que notre processus expérimental pourrait favoriser la sélection des nombres d'onde excités lorsqu'on remue la cuve. Or, le fait qu'il y ait un régime transitoire durant lequel le système s'établit en changeant totalement sa structure, semble signifier que ce n'est pas le cas.

L'intérêt de cette procédure est qu'elle nous permet de mettre en évidence l'existence d'une nouvelle solution d'équilibre. Nous avons montré que le mécanisme de sélection de cet état d'équilibre n'est pas linéaire.

## 8.3 Sélection quasistatique du nombre d'onde

Les mesures de sélection quasistatique du nombre d'onde, quand le champ magnétique croît puis décroît, sont représentées sur la Figure 8.2. Les réseaux hexagonal et carré coexistent pour une plage de champ magnétique avec des nombres d'onde différents. La transition hexagones-carrés est hystérétique, comme cela a été prévu théoriquement. Néanmoins, les domaines de stabilité des différentes symétries sont en désaccord avec la théorie, comme nous le verrons plus loin. Nous commençons par décrire le cycle d'hystérésis représenté sur la Figure 8.2. Nous avons aussi représenté les résultats de sélection par variation brutale de  $\varepsilon$  du paragraphe précédent ( $\Delta$ ).

### 8.3.1 Description du cycle d'hystérésis

**Le champ magnétique croît :** Au seuil de l'instabilité ( $\varepsilon = 0$ ), le réseau hexagonal se forme avec un nombre d'onde  $k = k_{crit}$ , en accord avec les prédictions de l'analyse linéaire. Lorsqu'on augmente le champ magnétique, le nombre d'onde du réseau hexagonal reste constant et égal à  $k = k_{crit}$ , ceci jusqu'à ce qu'il ait totalement disparu, expulsé par le réseau carré ( $\blacktriangle$ ).

Au seuil de la transition morphologique,  $\varepsilon = 0,84 \pm 0,08$  en présence de défauts pentagone —  $\varepsilon = 1,04 \pm 0,10$  sinon — les rangées de pics commencent à glisser à partir des défauts puis des parois. Le seuil de la transition est défini comme le champ magnétique à partir duquel on observe le glissement de la première rangée de pics. Cette détermination est difficile car les pics commencent à glisser très lentement, de façon quasistatique et réversible. Comme nous l'avons vu au chapitre 7, le nombre d'onde subit une discontinuité à la transition. Par contre, le nombre de pics dans la cuve  $N$  est un paramètre du système ne subissant pas de discontinuité et c'est pourquoi nous l'utiliserons aussi pour décrire le cycle.

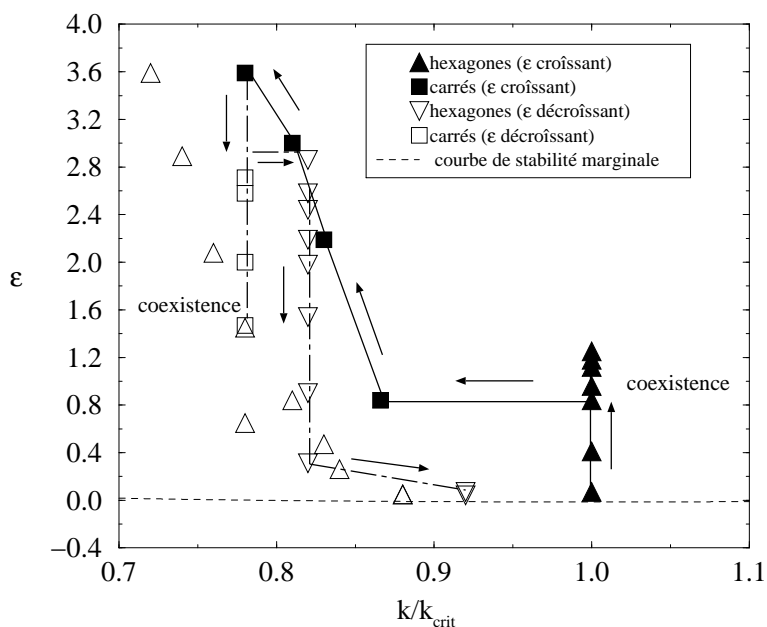


FIG. 8.2: Sélection de nombres d'onde des réseaux hexagonal et carré, par variation quasi-statistique du champ magnétique. Sélection brutale du nombre d'onde ( $\Delta$ ).

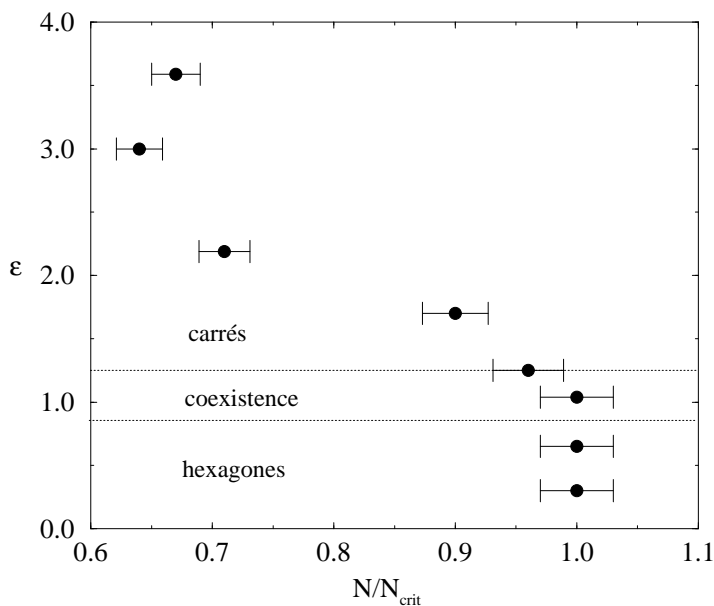


FIG. 8.3: Nombre de pics dans la cuve en fonction du champ à la montée.  $N_{crit}$  correspond au nombre de pics pour le réseau hexagonal à  $k_{crit}$ .

Au seuil de transition et au-dessus, les deux symétries coexistent pour  $0,84 \leq \varepsilon \leq 1,25$ . Les réseaux hexagonal et carré ont des nombres d'onde différents et sont séparés par des fronts de type I stables (voir chapitre 7). Comme nous l'avons vu, le nombre d'onde du réseau hexagonal reste constant et égal à  $k = k_{crit}$ , alors que celui du réseau carré décroît lorsqu'on augmente le champ (■). Par conséquent, nous observons des coalescences de pics au niveau des joints de grain du réseau carré à partir de  $\varepsilon = 1,04 \pm 0,10$ . Plus le champ augmente, plus les pics coalescent. Lorsqu'on atteint le champ maximum ( $\varepsilon = 3,59$  défini par  $M_{sat}$ ), environ 30% des pics ont disparu dans la cuve. Sur la Figure 8.3, nous avons représenté la variation du nombre de pics dans la cuve en fonction de  $\varepsilon$ .

**Le champ magnétique décroît :** En faisant décroître le champ magnétique, le réseau hexagonal réapparaît pour  $\varepsilon = 2,86 \pm 0,31$  et a totalement expulsé la phase carrée pour  $\varepsilon = 1,47 \pm 0,24$ . La transition hexagones-carrés est hystérétique. Les deux symétries coexistent à la descente pour  $1,47 \leq \varepsilon \leq 2,86$ , séparées par des fronts de type I. Le réseau hexagonal, qui réapparaît à la descente, se construit à partir des pics restant dans la cuve. En raison de la disparition de 30% d'entre eux à la montée (Figure 8.3), le nombre d'onde du réseau hexagonal est maintenant inférieur à  $k_{crit}$  et égal à  $0,82 k_{crit}$  (▽). Il reste constant lorsque  $\varepsilon$  décroît, jusqu'à ce qu'on observe la création de nouveaux pics à partir de  $\varepsilon = 0,31 \pm 0,04$  jusqu'à  $\varepsilon = 0,07 \pm 0,01$ . Les nouveaux pics apparaissent selon un processus que nous avons déterminé et décrit plus loin. Le système rejoint pratiquement son état initial, réseau hexagonal à  $0,92 k_{crit}$ , et au terme de la réapparition, il y a 90% du nombre initial de pics dans la cuve.

### 8.3.2 Sélection du nombre d'onde du réseau hexagonal à la descente

Le cycle décrit précédemment a été réalisé en faisant croître le champ magnétique jusqu'à sa valeur maximale correspondant à l'aimantation de saturation. Si l'on réalise un nouveau cycle en changeant la valeur du champ maximum atteint  $\varepsilon_{max}$ , le nombre d'onde du réseau hexagonal sélectionné pour  $\varepsilon$  décroissant, avant réapparition de nouveaux pics, est différent de celui obtenu précédemment  $0,82 k_{crit}$ . En effet, nous avons vu que le nombre de pics  $N$  à la montée dépend de la valeur de  $\varepsilon_{max}$  (Figure 8.3). Lorsque l'on fait redécroître le champ, le nombre d'onde du réseau hexagonal est fonction de ce nombre de pics dans la cuve. Il dépend donc de  $\varepsilon_{max}$  atteint.

Sur la Figure 8.4, nous avons représenté les mesures du nombre d'onde du réseau hexagonal à la descente en fonction du champ maximum atteint. On peut ainsi sélectionner, par ce processus, un nombre d'onde pour le réseau hexagonal compris entre  $0,82 k_{crit} \leq k \leq k_{crit}$ . Sur la Figure 8.5, nous avons schématisé le cycle d'hystérésis, ainsi que les différents chemins suivis à la descente par le réseau hexagonal en fonction du champ maximum atteint. Nous avons choisi de représenter en fonction du nombre de pics  $N$  dans le système.  $N_{crit}$  représente le nombre de pics dans la cuve pour le réseau hexagonal à  $k_{crit}$ .



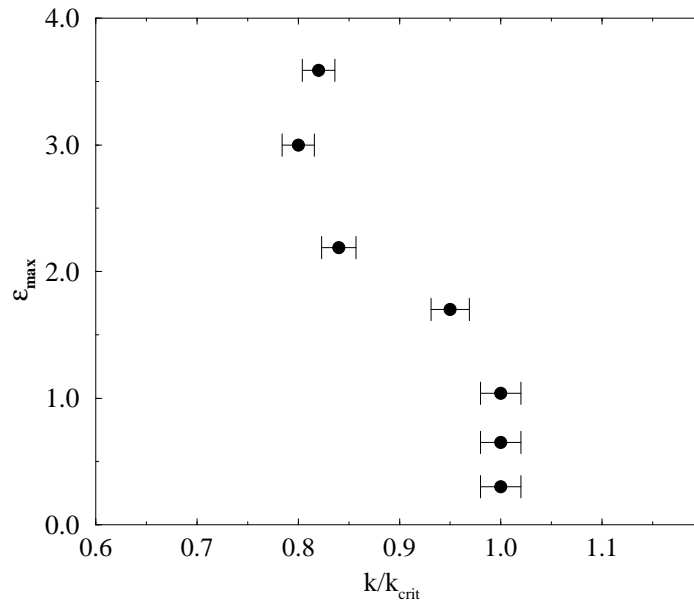


FIG. 8.4: Nombre d'onde du réseau hexagonal sélectionné à la descente en fonction du champ maximal atteint durant le cycle.

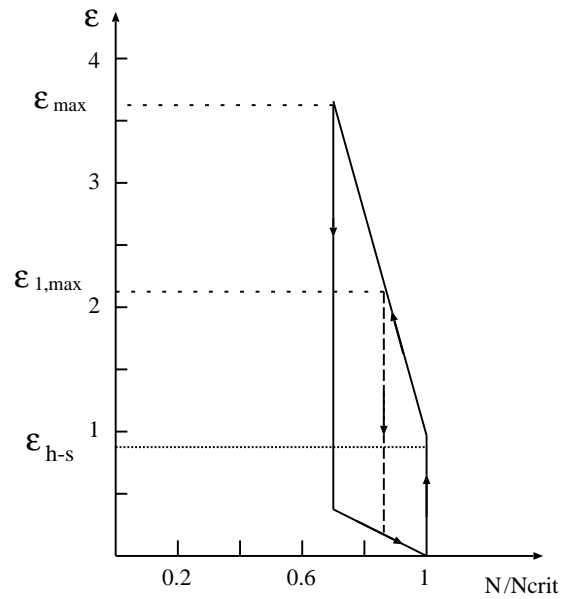


FIG. 8.5: Les différents chemins suivis par le système à la descente en champ magnétique : le nombre d'onde du réseau hexagonal varie en fonction du champ maximum atteint  $\varepsilon_{\max}$ .  $\varepsilon_{h-s}$  représente le seuil de la transition hexagones-carrés.

## 8.4 Seuil de la transition hexagones-carrés

Nous avons regardé la dépendance du seuil de la transition hexagones-carrés en fonction du nombre d'onde du réseau de départ. Les mesures sont représentées sur la Figure 8.6. La transition se produit pour un champ d'autant plus grand que le nombre d'onde du réseau hexagonal est petit. Elle ne se produit plus en deçà d'un certain nombre d'onde minimal du réseau hexagonal. Nous sommes limités en champ par l'aimantation de saturation  $M_{sat}$ . Ce nombre d'onde est égal à environ  $0,66 k_{crit}$ .

## 8.5 Domaines de stabilité des deux symétries

Nous allons comparer les domaines de stabilité expérimentaux avec ceux prévus par la théorie du chapitre 5. Nous reportons ici pour rappel sur la Figure 8.7, le diagramme de bifurcation obtenu théoriquement et sur lequel sont rappelées les définitions des limites inférieures et supérieures des domaines de stabilités des hexagones et des carrés,  $\varepsilon_h$  et  $\varepsilon_s$  [21, 49]. D'après les résultats expérimentaux du paragraphe 8.3,  $\varepsilon_s = 1,47 \pm 0,24$  et  $\varepsilon_h = 1,25 \pm 0,11$ . Ceci ne correspond pas qualitativement à ce qui est prévu théoriquement où  $\varepsilon_s \leq \varepsilon_h$ . Nous expliquons ceci principalement par le fait que les résultats théoriques tiennent compte des domaines de stabilité relatifs entre un réseau hexagonal et un réseau carré, tous les deux à  $k_{crit}$ . Or, dans notre expérience, nous avons vu qu'il y avait changement de nombre d'onde à la transition hexagones-carrés : la transition se fait entre un réseau hexagonal à  $k_{crit}$  et un réseau carré sous contrainte à  $0,866 k_{crit}$ . En ce qui concerne la transition carrés-hexagones, celle-ci se produit entre un réseau carré et un réseau hexagonal de nombres d'onde tels que  $k_{hex} \neq k_{carré}$ ,  $k_{hex} \neq k_{crit}$  et  $k_{carré} \neq k_{crit}$ . Ni à la montée en champ, ni à la descente, nous n'observons la transition entre des réseaux à  $k_{crit}$ .

Afin de comparer nos résultats aux résultats théoriques, nous avons regardé quelle est la tendance quand nous faisons varier le taux de coalescences de pics à la montée. Si l'on permet très peu de coalescences à la montée, nous nous rapprochons de l'hypothèse théorique pour laquelle  $k = k_{crit}$ . Comme nous avons vu que le taux de coalescences dépend de la valeur maximale du champ atteint, nous regardons comment varie  $\varepsilon_s$  par rapport à  $\varepsilon_h$  quand on fait varier  $\varepsilon_{max}$ .

Les résultats sont consignés sur la Figure 8.8. Nous avons représenté la mesure expérimentale de  $\varepsilon_h = 1,25$  qui est la limite supérieure de stabilité des hexagones à  $k_{crit}$ . Puis, nous avons représenté  $\varepsilon_s$ , la limite inférieure du domaine de stabilité des carrés pour  $k_{carré}$  variant entre  $0,78 k_{crit} \leq k_{carré} \leq 0,866 k_{crit}$ . Ces différents nombres d'onde du réseau carré ont été obtenus en faisant varier le champ maximum atteint, c'est à dire le taux de coalescences. Nous constatons que pour  $\varepsilon_{max}$  petit c'est à dire pour un nombre d'onde du réseau carré qui se rapproche le plus de  $k_{crit}$ , nous retrouvons le fait que  $\varepsilon_s \leq \varepsilon_h$ . La grande incertitude sur les mesures de  $\varepsilon_s$  provient de la difficulté à l'évaluer.

Nous avons comparé les valeurs expérimentales de  $\varepsilon_h$ , puis de  $\varepsilon_s$ , aux valeurs théoriques. Les prédictions théoriques pour  $\varepsilon_h$  et  $\varepsilon_s$  dépendent de la valeur de la perméabilité magnétique  $\mu_r$  (cf chapitre 5). Sur la Figure 8.9, nous avons reporté les valeurs des prédictions

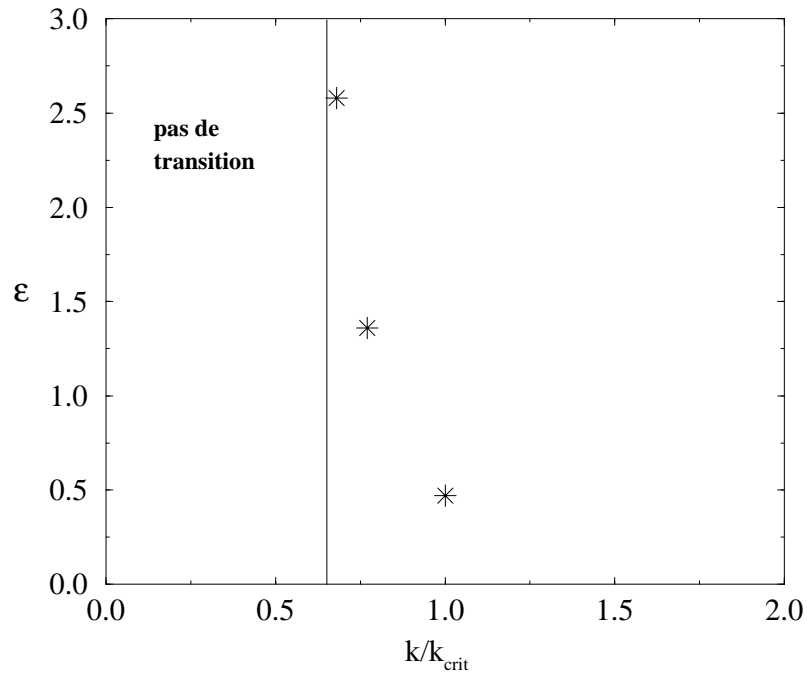


FIG. 8.6: Le seuil de la transition hexagones-carrés dépend du nombre d'onde du réseau hexagonal de départ.

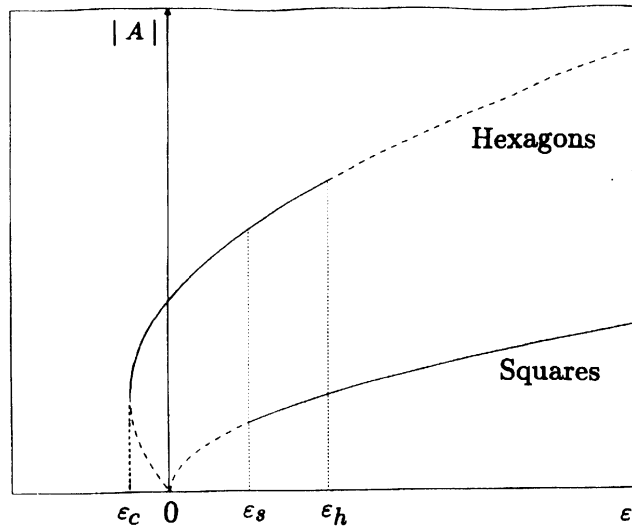


FIG. 8.7: Domaines de stabilité des états stationnaires dans le cas où des rouleaux, carrés, hexagones peuvent apparaître pour  $k = k_{crit}$  [49].

théoriques calculées en fonction de  $\mu_r$ . La perméabilité magnétique dépend du champ et pour notre ferrofluide APG 512 A,  $\mu_r(H \simeq 0) = 2,4$ . Expérimentalement, nous avons vu que  $\varepsilon_h = 1,25 \pm 0,11$  et que les valeurs de  $\varepsilon_s$  varient de  $0,22 \leq \varepsilon_s \leq 1,47$  pour un nombre d'onde du réseau carré variant entre  $0,78 k_{crit} \leq k_{carré} \leq 0,866 k_{crit}$ . Nous constatons que les valeurs théoriques et expérimentales sont en désaccord quantitatif. Là encore, il faudrait résoudre des équations implicites pour obtenir les valeurs théoriques de  $\varepsilon_h$  et  $\varepsilon_s$  puisque  $\mu_r$  dépend du champ. Néanmoins, nous constatons que les ordres de grandeur des valeurs théoriques et expérimentales sont différents et nous nous contentons d'avoir une estimation des valeurs théoriques en résolvant les équations (5.5) et (5.6) du chapitre 5. Les prédictions théoriques ont été établies pour une transition entre réseaux à  $k_{crit}$ . Or, expérimentalement, ce n'est pas le cas. De plus, les prédictions ont été réalisées avec l'hypothèse  $|\mu_r - 1| \ll 1$ , où  $\mu_r$  est la perméabilité magnétique relative du ferrofluide. Pour notre ferrofluide,  $\mu_r$  initial est égal à 2,4. Si l'on considère que celui-ci suit la loi de Langevin pour l'aimantation (ferrofluide peu concentré), alors nous pouvons estimer la loi  $\mu_r(H)$  (voir annexe A). Ceci nous indique qu'aux champs auxquels nous travaillons, l'hypothèse  $|\mu_r - 1| \ll 1$  n'est pas vérifiée.

## 8.6 Création de nouveaux pics

Lors de la descente en champ magnétique sur le cycle d'hystérésis, de nouveaux pics réapparaissent dans le réseau hexagonal. Le système rejoint pratiquement son nombre d'onde initial  $k_{crit}$ . Nous avons identifié le processus de création de pics. Le nouveau pic croît au niveau d'un défaut penta-hepta. Par réarrangement des pics autour du nouveau pic, celui-ci devient le centre du pentagone d'un nouveau défaut, voisin du défaut initial. Le processus équivaut au déplacement du défaut initial selon l'une des deux directions altérées par le défaut (Figure 8.10). Les deux directions de propagation du défaut sont équivalentes. Sur la Figure 8.10, nous avons photographié le déplacement du défaut. La première photographie représente le défaut penta-hepta qui va être le centre de nucléation d'un nouveau pic. Entre la première photographie et la deuxième, un nouveau pic a été créé. Par réarrangement local des pics au niveau du défaut initial, le nouveau pic (en blanc sur la photo 2) fait partie d'un nouveau défaut. Celui-ci, par rapport au défaut initial, s'est déplacé selon l'une des directions altérées par le défaut initial. Entre la photo 2 et la photo 3, nous observons encore la création d'un nouveau pic. Parallèlement, nous avons filtré la direction, dans l'espace réel, selon laquelle le défaut s'est déplacé.

## Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats de sélection de nombre d'onde, par variation brutale puis quasistatique du champ magnétique.

Dans le cas du processus brutal de sélection à partir de la surface libre du ferrofluide, le réseau sélectionné est toujours hexagonal. Son nombre d'onde est d'autant plus petit que

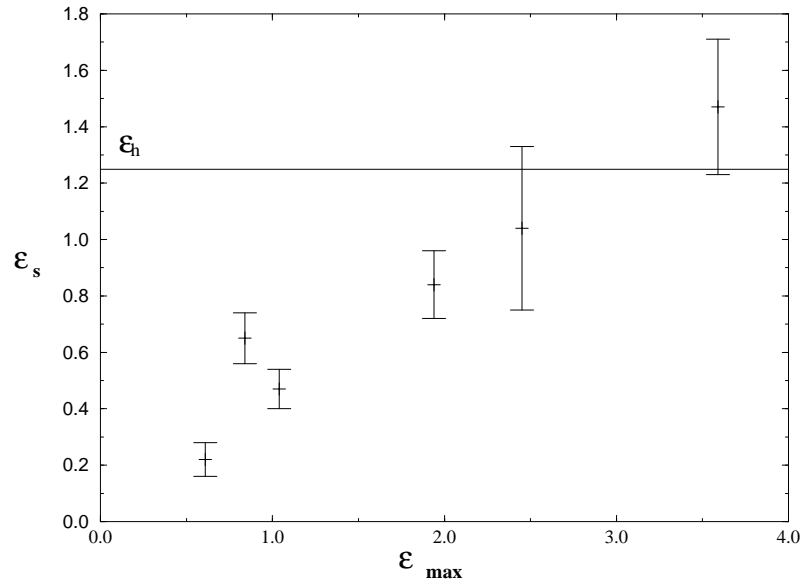


FIG. 8.8: Le seuil de stabilité des deux symétries en fonction de  $\varepsilon_{\max}$ ;  $\varepsilon_h = 1,25$ ;  $\varepsilon_s$  varie en fonction de  $\varepsilon_{\max}$ .

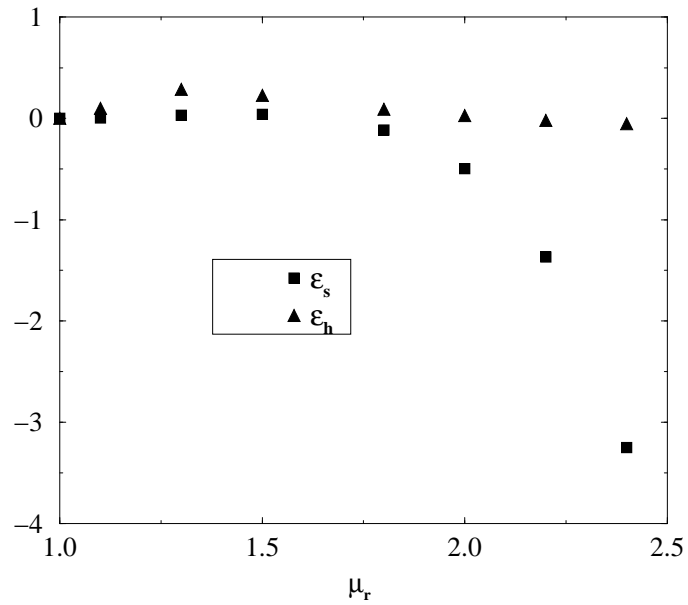


FIG. 8.9: Valeurs des prédictions théoriques des domaines de stabilité pour différentes valeurs de la perméabilité magnétique du ferrofluide.

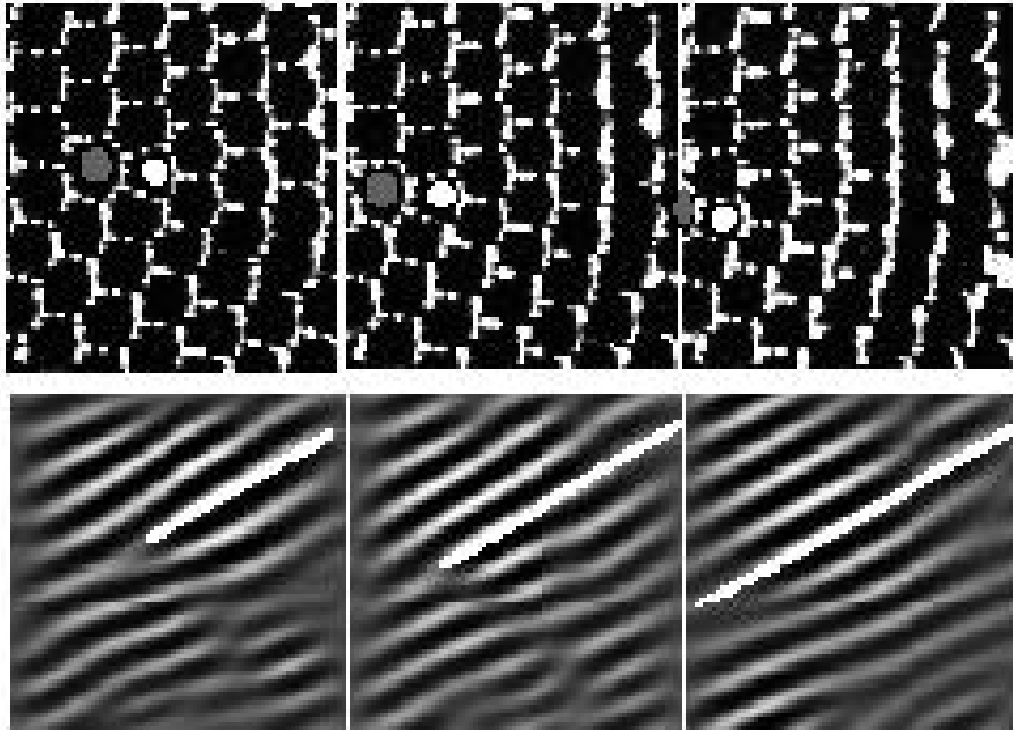


FIG. 8.10: La création de nouveaux pics. Le processus équivaut au déplacement du défaut se déplace selon l'une des deux directions altérées dans le réseau.

le champ imposé est grand et varie entre  $0,72 k_{crit} \leq k \leq k_{crit}$  pour la plage de champ accessible.

Dans le cas de variation quasistatique du champ, le réseau hexagonal à  $k_{crit}$  se transforme en réseau carré pour une valeur seuil du champ magnétique. Nous avons montré que la transition hexagones-carrés est hystérétique. Il y a discontinuité du nombre d'onde au seuil de la transition et coalescences de pics au-delà. À la redescente en champ, nous avons montré que l'on pouvait sélectionner pour le réseau hexagonal un nombre d'onde  $k$  compris entre  $0,82 k_{crit} \leq k \leq k_{crit}$ , en fonction du champ maximum atteint durant le cycle. Nous avons mis en évidence que de nouveaux pics réapparaissent, au niveau des défauts penta-hepta, en fin de descente, ceci permettant au nombre d'onde du réseau hexagonal de tendre vers  $k_{crit}$ . De plus, nous avons vu que le seuil de la transition hexagones-carrés

dépend du nombre d'onde du réseau hexagonal de départ.

Nous avons ensuite précisé les domaines de validité des deux symétries. Nos résultats expérimentaux sont en désaccord quantitatif et qualitatif avec les prédictions théoriques. Nous pensons que ceci est dû aux hypothèses restrictives considérées pour les calculs théoriques. La première hypothèse — qui n'a pas jusque-là subi de rétroaction expérimentale — est qu'il y a transition entre réseaux à  $k = k_{crit}$  et constant. Or, nous avons montré que dès le seuil de la transition, il y a changement de nombre d'onde dans le système. La deuxième hypothèse non vérifiée est que  $|\mu_r - 1| \ll 1$ , où  $\mu_r$  est la perméabilité magnétique relative du ferrofluide. Par contre, nous avons montré que nos résultats expérimentaux tendaient qualitativement vers les prédictions théoriques lorsqu'on permettait peu de coalescences de pics dans le système. Dans ce cas là, nous nous rapprochons le plus de l'hypothèse de la transition entre réseaux à  $k_{crit}$ .

Dans le chapitre suivant, nous donnerons une interprétation des résultats de sélection de nombre d'onde. Cette interprétation sera vérifiée à l'aide d'une expérience additive réalisée dans un entonnoir. Nous montrerons que nous pouvons induire la transition à champ constant et inférieur au seuil de transition.

# Chapitre 9

## La transition induite par compression

Dans ce chapitre, nous discutons les résultats de sélection du nombre d'onde du chapitre précédent. Nous proposons une interprétation du mécanisme de la transition hexagones-carrés. Cette interprétation est confirmée à l'aide d'une expérience, réalisée dans un entonnoir, pour laquelle la transition hexagones-carrés est induite par compression du réseau hexagonal, à champ magnétique constant.

### 9.1 Interprétation des résultats de sélection du nombre d'onde

La comparaison des résultats obtenus par les deux processus de sélection nous indique tout d'abord que, pour un champ donné supérieur au champ critique, l'état du système le plus stable, est le réseau hexagonal, mais avec un nombre d'onde qui est d'autant plus petit que le champ extérieur est grand (Figure 8.1). Nous en déduisons que strictement au dessus du seuil d'instabilité, le réseau hexagonal à  $k_{crit}$  et le réseau carré sont des **états métastables** du système. Gailitis prédit que pour une valeur du champ proche du champ critique, le réseau hexagonal est l'état stable du système. Par contre, pour des valeurs du champ plus élevées, c'est le réseau carré qui est stable. Or, Gailitis étudie la stabilité relative du réseau hexagonal et du réseau carré tous les deux à  $k_{crit}$ . Pour cette raison, nos résultats expérimentaux ne sont pas comparables avec les résultats théoriques.

Nous avons vu que lorsque le champ croît continûment au dessus du seuil, le nombre d'onde du réseau hexagonal reste égal à  $k_{crit}$ . Or, le processus de variation brutale nous indique cependant que ce nombre d'onde devrait diminuer avec le champ pour permettre au système de rejoindre son état le plus stable. Cela nous amène à supposer que ce sont les conditions aux limites — comme l'existence d'un ménisque aux parois — qui rigidifient le système à  $k_{crit}$  et ne lui permettent pas d'ajuster son nombre d'onde.

Nous considérons maintenant le mécanisme d'apparition du réseau carré. Pour un champ supérieur au seuil de l'instabilité, le réseau hexagonal, maintenu à  $k_{crit}$ , est soumis à une compression isotrope, comparé à son état le plus stable. Nous pouvons quantifier cette idée de la manière suivante : Pour un champ inférieur au seuil de transition, nous



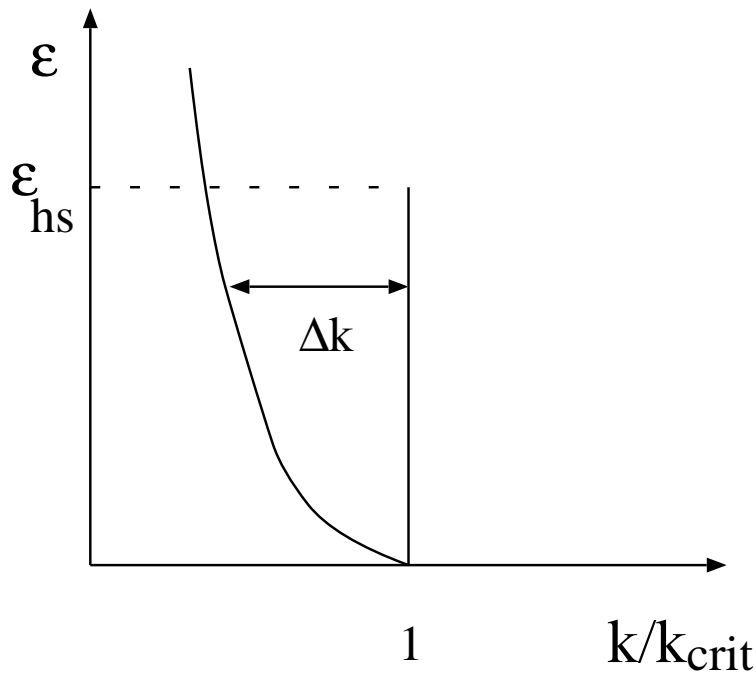


FIG. 9.1: Les résultats de sélection par variation quasistatique et brutale sont représentés sur le schéma. La quantité  $\Delta k$  mesure en quelque sorte le taux de compression du réseau hexagonal à  $k_{crit}$  par rapport à son état d'équilibre.

définissons la quantité  $\Delta k = k_{crit} - k^*(\varepsilon)$  comme la différence du nombre d'onde critique et du nombre d'onde du réseau hexagonal dans son état le plus stable. Cette quantité représente en quelque sorte le taux de compression du réseau hexagonal à champ magnétique donné (Figure 9.1). Au fur et à mesure que le champ croît au dessus du seuil (processus quasistatique), la quantité  $\Delta k$  et par la même, la contrainte qui s'exerce sur le réseau hexagonal à  $k_{crit}$  deviennent de plus en plus importantes. Nous pensons que lorsque  $\Delta k$  dépasse une valeur critique, le réseau hexagonal à  $k_{crit}$  se transforme en réseau carré : le système se libère ainsi partiellement de la contrainte par glissement des lignes et donc réarrangement de sa structure. Nous pensons que la raison pour laquelle il se transforme en réseau carré et non en réseau hexagonal dans son état le plus stable est qu'il est plus facile pour le système de réarranger sa structure par glissement des lignes plutôt que de faire disparaître des pics. Le réseau carré est ainsi un état métastable induit par compression du réseau hexagonal. Afin de confirmer le fait selon lequel la compression du réseau hexagonal par les parois induit la transition hexagones-carrés, nous avons réalisé l'expérience suivante de déformation élastique du réseau hexagonal à champ constant.

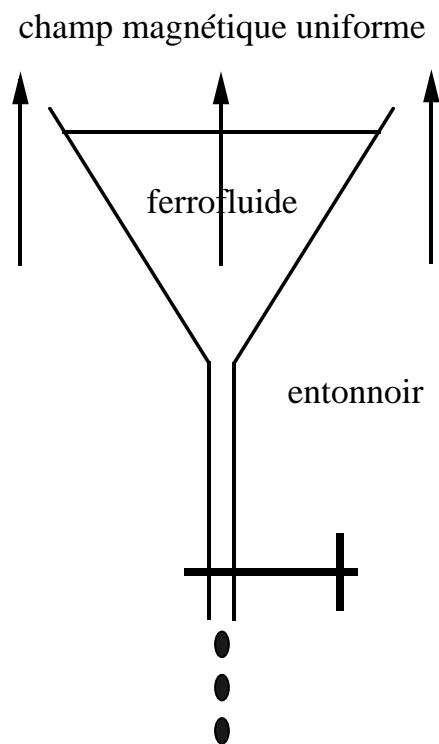


FIG. 9.2: Schéma de l'expérience : ferrofluide sous champ magnétique normal, dans un entonnoir; le champ est choisi inférieur au seuil de transition et reste constant durant l'expérience.

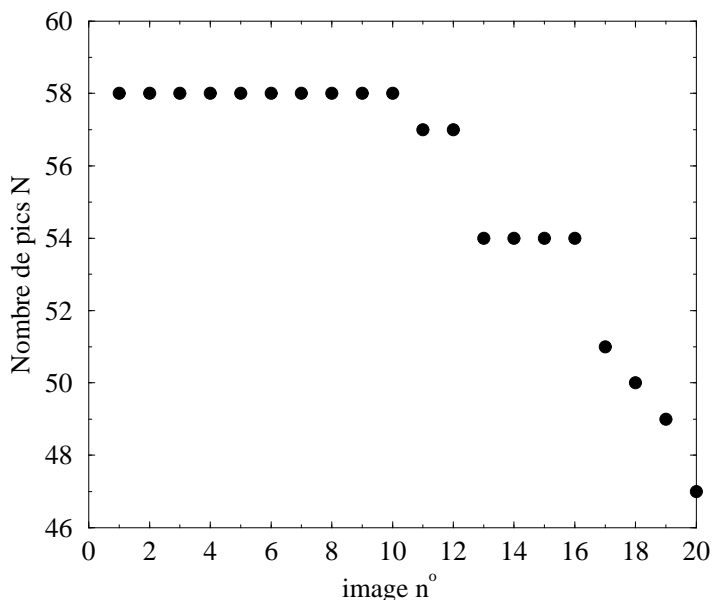


FIG. 9.3: Nombres de pics dans la cuve à différents stades de l'expérience.

## 9.2 La transition induite par compression

L'expérience est schématisée sur la Figure 9.2. Nous mettons du ferrofluide dans un entonnoir et nous faisons croître continûment le champ magnétique jusqu'à une valeur inférieure au seuil de la transition hexagones-carrés et qui restera constante durant l'expérience. Dans l'entonnoir, on a un réseau hexagonal à  $k_{crit}$ . Nous laissons s'écouler le ferrofluide de manière quasistatique (goutte à goutte) : le réseau hexagonal est comprimé de manière isotrope, par le biais des parois de l'entonnoir. Le diamètre initial de la cuve est de l'ordre de douze centimètres et le diamètre final de l'ordre de neuf centimètres. Ceci permet une diminution totale de la surface de l'ordre de 40%. Les montages des Figures 9.7 et 9.8, représentent des photographies prises toutes les 4 minutes et 30 secondes durant l'expérience. La variation de surface est de 10% toutes les 5 images, ce qui correspond à une variation de nombre d'onde du réseau hexagonal de 5%. À partir de l'image 11, des pics disparaissent dans la cuve. Sur la Figure 9.3, nous présentons le nombre de pics  $N$  associé aux différentes images.

Jusqu'à l'image 5 incluse, nous n'observons pas de différences dans la structure du réseau hexagonal. Sur l'image 8, il est clair que des éléments de symétrie carrée ont envahi le réseau hexagonal. Sur les images 13, 14, 15, le glissement des rangées — ainsi que la symétrie carrée — s'est étendu dans la cuve. Enfin, si l'on continue de comprimer la structure (Figure 9.8), ceci provoque la disparition d'un plus grand nombre de pics dans la cuve. Ceci a pour conséquence de faire décroître le taux de compression du réseau hexagonal et provoque

la déstabilisation de la phase carrée en faveur de la phase hexagonale. Si l'on compare l'image 20 à l'image 16, nous observons que la phase carrée est beaucoup moins étendue. Le processus global se passe en deux temps :

1. la compression du réseau hexagonal entraîne sa déstabilisation en faveur du réseau carré;
2. la compression du réseau hexagonal devient trop importante et provoque la disparition d'un plus grand nombre de pics; de ce fait, la structure est moins comprimée et le réseau hexagonal redevient le plus stable.

Nous avons réalisé l'expérience pour différentes valeurs du champ inférieures au seuil de la transition. Sur la Figure 9.4, nous représentons les valeurs du nombre d'onde du réseau hexagonal à atteindre par compression juste avant que la transition ne se produise, ainsi que les résultats de sélection de nombre d'onde par variation brutale de  $\varepsilon$ . Ces valeurs confirment le fait qu'il existe un taux de compression critique qui provoque la transition. En comparant les résultats de cette expérience avec ceux obtenus par variation brutale du champ, nous pouvons en déduire une valeur moyenne de  $\Delta k_{crit} = (0,28 \pm 0,03)k_{crit}$ . À la précision de nos mesures, il n'est pas possible de dire si la valeur de  $\Delta k_{crit}$  dépend effectivement du champ sous lequel est réalisée l'expérience.

Nous avons réalisé le même genre d'expérience avec le dispositif représenté sur la Figure 9.5. Le ferrofluide est placé dans une cuve carrée de 12 cm de côté, sous champ magnétique normal. Un des côtés est une paroi mobile. Le champ est fixé et inférieur au seuil de transition. Dans la cuve, nous avons un réseau hexagonal à  $k_{crit}$ . Lorsqu'on le comprime très lentement, nous observons le passage aux carrés sur une très petite zone de la cuve — ordre de grandeur : 3 rangées de 5 pics, sur un temps très court — quelques secondes. Cette zone carrée disparaît très rapidement par réarrangement des pics en réseau hexagonal, possible après la disparition de pics dans la cuve. La différence avec l'expérience réalisée dans un entonnoir, provient du fait que la compression est uniaxiale. Ceci permet au système de faire disparaître des pics beaucoup plus facilement — et donc de se réarranger — que lorsque la compression est isotrope.

Une autre expérience que nous aurions aimé réaliser est schématisée sur la Figure 9.6. Le ferrofluide est soumis à un champ magnétique uniforme au centre de la cuve et qui décroît très fortement sur les bords, jusqu'à être pratiquement nul. Ceci permettrait d'éliminer l'effet des parois et du ménisque. Lorsque le champ croît, on s'attend à ce que le nombre d'onde du réseau hexagonal, initialement à  $k_{crit}$ , puisse décroître. Ainsi, nous n'observerions pas la transition hexagones-carrés dans la mesure où le réseau hexagonal ne serait pas comprimé par le biais des conditions aux limites. Malheureusement, la réalisation d'une telle expérience nous a posé quelques problèmes. Notamment, réaliser un champ magnétique qui décroît très fortement sur une zone réduite est difficile. Il faut que le champ sur les bords de la cuve soit inférieur au seuil de l'instabilité. Par contre, au centre de la cuve, le champ doit pouvoir atteindre 300 Gauss. De plus, la cuve doit être assez large pour permettre que la zone de champ nul soit elle-aussi large.

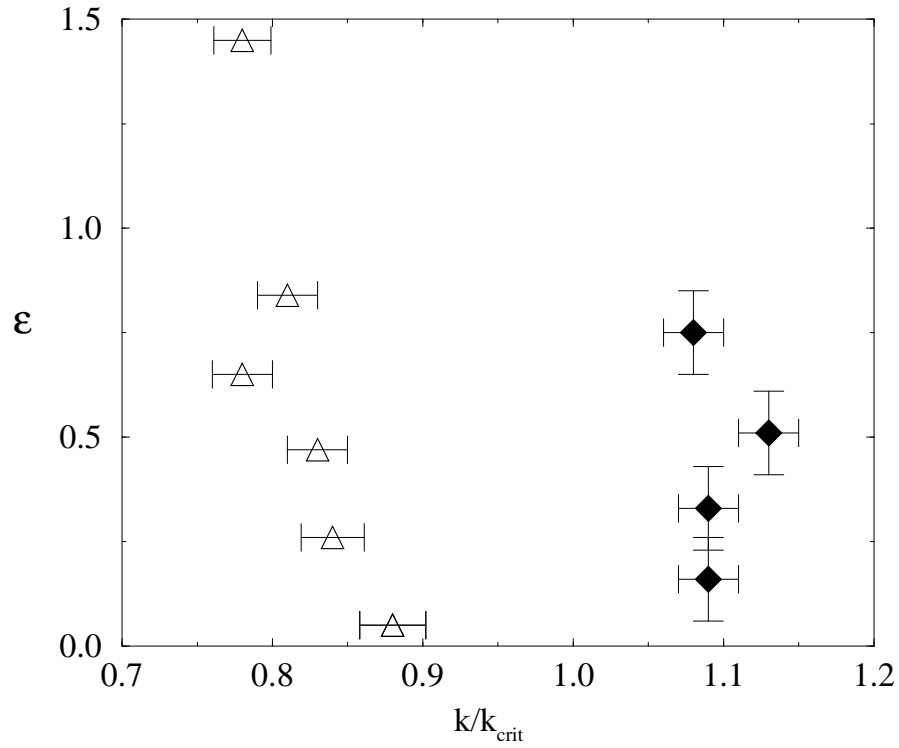


FIG. 9.4:  $\triangle$  : sélection brutale du nombre d'onde;  $\blacklozenge$  : nombre d'onde du réseau hexagonal atteint par compression pour que la transition se produise.

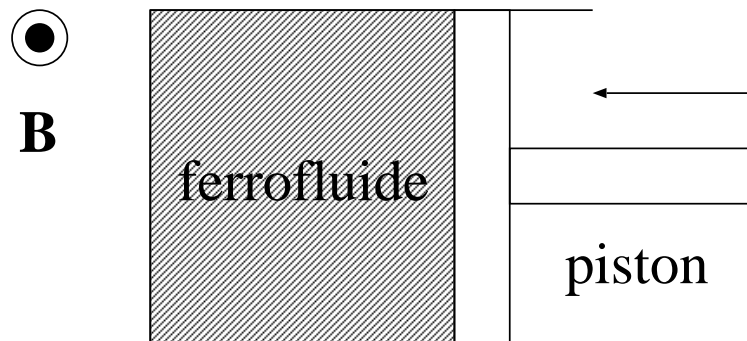


FIG. 9.5: Compression uniaxiale du réseau hexagonal à  $k_{crit}$  dans une cuve-piston.

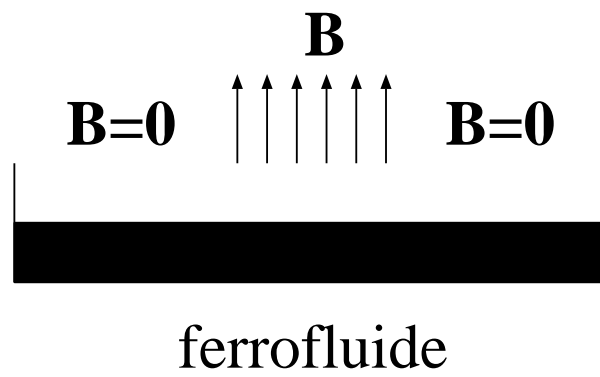


FIG. 9.6: Schéma de l'expérience : ferrofluide soumis à un champ magnétique uniforme au centre de la cuve, et nul sur les bords.

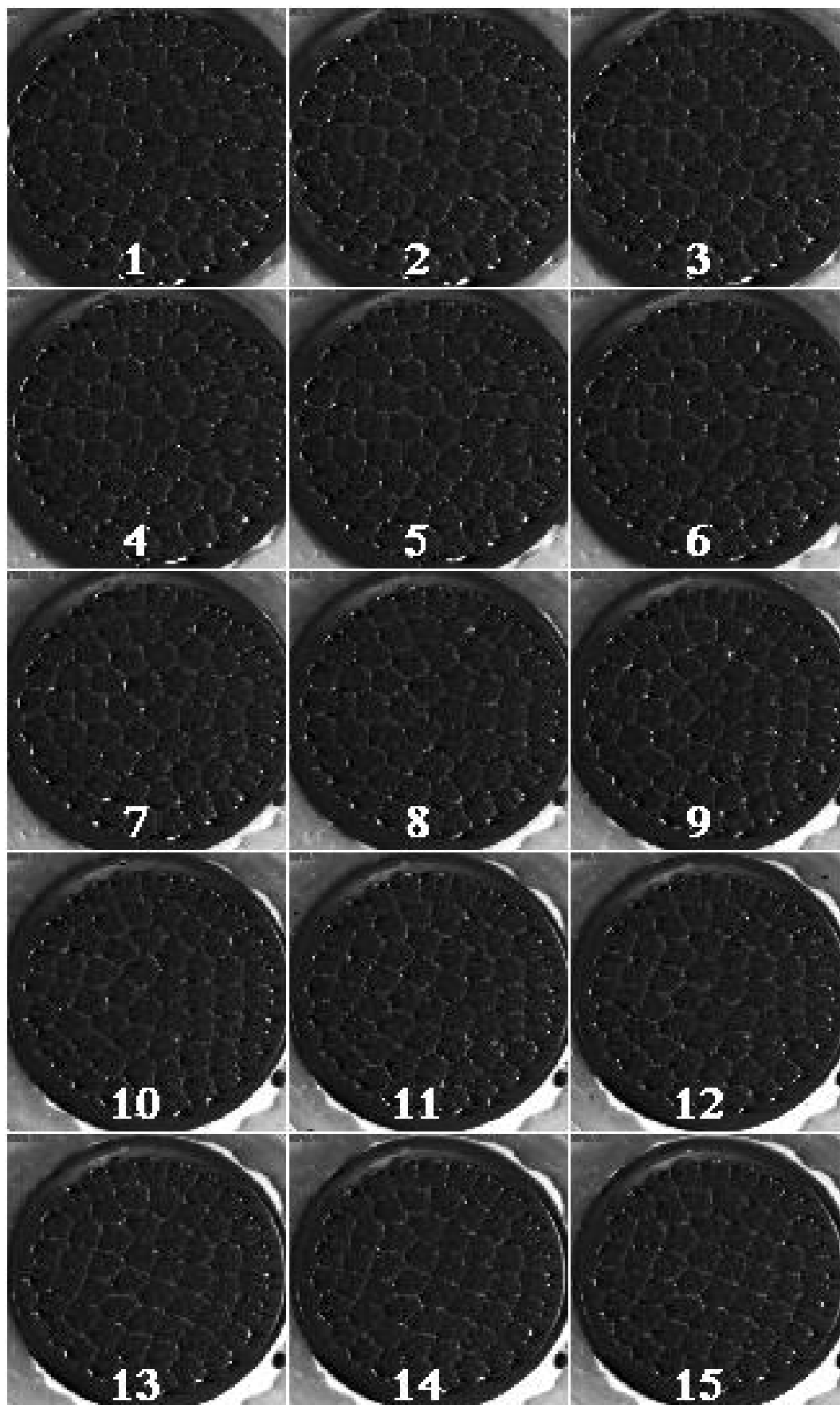


FIG. 9.7: Les différentes étapes de l'expérience; au fur et à mesure que le réseau hexagonal est comprimé, on observe la transition vers le réseau carré.

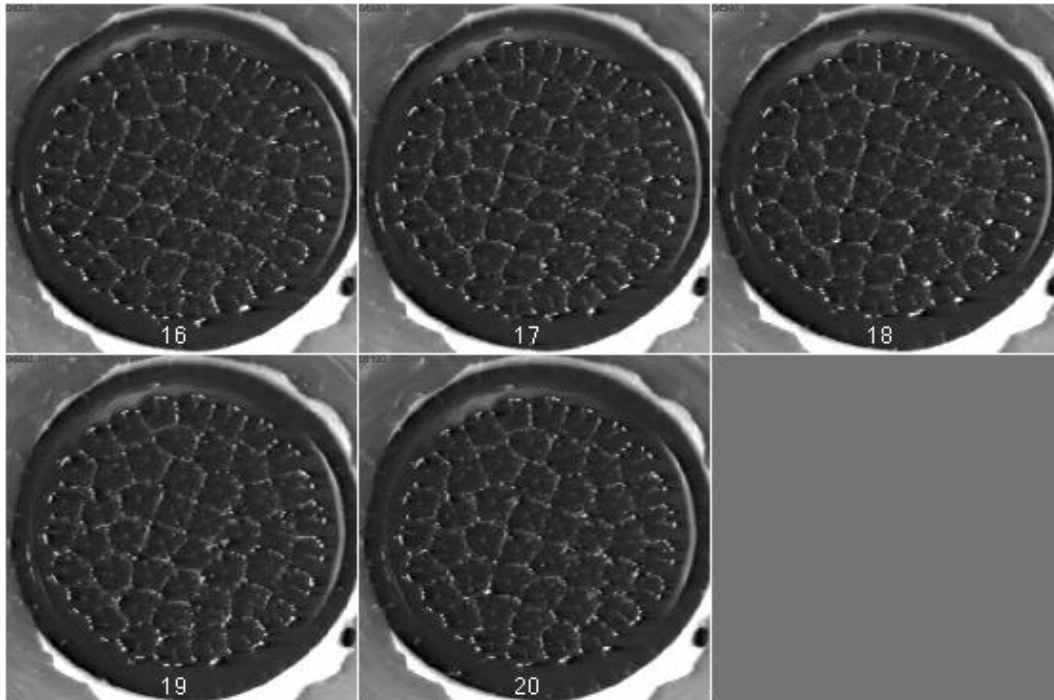


FIG. 9.8: La symétrie carrée se réorganise en symétrie triangulaire à partir de l'image 17.



## Conclusion

La comparaison des résultats de sélection de nombre d'onde nous permet de mettre en évidence qu'au dessus du seuil de l'instabilité, le réseau hexagonal à  $k_{crit}$  et le réseau carré sont des **états métastables** du système.

Nous avons vu que la sélection du nombre d'onde du réseau hexagonal, par augmentation quasistatique du champ, s'effectue au seuil et est ensuite rigidifiée par les conditions aux limites. Quand on augmente encore le champ, le réseau hexagonal, maintenu à  $k_{crit}$ , est soumis à une compression isotrope comparé à sa configuration d'équilibre. Nous suggérons qu'au delà d'un certain seuil de compression, le réseau hexagonal se transforme en réseau carré: le système se libère ainsi dans un premier temps de cette contrainte, par glissement des rangées de pics et donc réarrangement de sa structure en réseau carré. Nous avons vérifié ce fait à l'aide d'une expérience réalisée dans un entonnoir. Le réseau hexagonal est comprimé à champ constant et de manière isotrope : nous observons la transition hexagones-carrés à champ constant, par réduction des conditions aux limites. De nombreuses questions restent cependant ouvertes... Par exemple, pourquoi le nombre d'onde du réseau hexagonal ne peut-il pas diminuer quand on augmente le champ? Nous supposons que ceci est dû au ménisque. Pourtant, une fois le réseau carré formé, son nombre d'onde diminue avec le champ. Apparemment, cela est plus favorable pour le réseau hexagonal de se réarranger par glissement des rangées de pics et ainsi de passer aux carrés, que de faire disparaître des pics afin de faire diminuer le nombre d'onde  $k$ . D'autant plus que la structure du réseau est telle que pour faire diminuer  $k$ , il faudrait éliminer des rangées de pics dans les trois directions du réseau. On comprend que le glissement des rangées de pics est plus favorable énergétiquement. Il faut quand même noter que dans l'instabilité de Bénard-Marangoni, le nombre d'onde du réseau hexagonal cellulaire croît jusqu'à une valeur maximale puis décroît, lorsque  $\varepsilon$  augmente.

Une fois le réseau carré formé, il y a disparition de pics par coalescences, quand  $\varepsilon$  croît. Nous pouvons supposer que le système, de plus en plus sous contrainte, au fur et à mesure que  $\varepsilon$  croît, peut vaincre la barrière d'énergie qui existe pour faire coalescer les pics au niveau des joints de grain.

# Conclusion

Nous avons étudié l'instabilité de pics dans les ferrofluides et tout particulièrement la transition hexagones-carrés. L'intérêt de notre étude est qu'elle s'inscrit dans un cadre général des changements de symétrie et des défauts topologiques, recouvrant un certain nombre de cas. Elle fournit de plus la possibilité d'étudier un système non linéaire conservatif.

Dans un premier temps, nous avons fait l'analyse linéaire d'une couche de ferrofluide d'épaisseur et de viscosité quelconques. La relation de dispersion obtenue nous indique que les valeurs critiques dépendent faiblement de l'épaisseur de la couche de ferrofluide. Nous l'avons ensuite étudiée dans les quatre cas asymptotiques suivants :

- couche épaisse-inertielle;
- couche épaisse-visqueuse;
- couche mince-visqueuse;
- couche mince-inertielle.

L'étude de ces cas limites nous a permis de retrouver les relations de dispersion déjà calculées dans ces cas particuliers, par linéarisation des équations ou par approche semi-phénoménologique. Pour chaque régime asymptotique, nous avons calculé les valeurs critiques, le nombre d'onde de taux de croissance maximal  $k_m$ , la vitesse de croissance de l'instabilité. Nous avons défini les domaines de validité des quatre régimes asymptotiques. Cette étude nous a permis de situer notre expérience, dans le cadre de la théorie linéaire.

Dans un deuxième temps, nous avons étudié la phénoménologie de la transition. Nous avons commencé par étudier les réseaux et leur défaut à l'aide d'une méthode de transformation de Fourier bi-dimensionnelle. Cette méthode nous permet d'obtenir les modes fondamentaux des différentes structures, puis de les isoler et de les reconstruire séparément. Nous avons ainsi montré comment le réseau carré se construit à partir du réseau hexagonal ou du défaut penta-hepta. Nous nous sommes ensuite intéressés au contrôle des défauts penta-hepta dans nos expériences. Ceci a été motivé par le fait qu'au dessus du seuil, le réseau hexagonal apparaît avec de nombreux défauts qui forment des joints de grain. Nous devons donc essayer d'isoler ces défauts et d'en diminuer le nombre afin d'étudier leur comportement lors de la transition. Nous avons tout d'abord changé les conditions aux limites : l'utilisation d'une cuve hexagonale nous a permis de faire de gros progrès dans l'étude du mécanisme de la transition et le rôle des défauts. Le réseau hexagonal est très

régulier et contient peu ou pas de défauts isolés. Puis, nous avons étudié la méthode de recuit, inspirée de la métallurgie où le champ magnétique joue le rôle de la température. Nous avons distingué deux types de recuits. Le premier, le recuit sans coalescences de pics, permet de passer d'une configuration des défauts à l'autre, chacune correspondant à un état métastable du système par rapport au réseau sans défaut. Il peut conduire à une diminution ou une augmentation du nombre des défauts. Le deuxième type de recuit, avec coalescences de pics, comprend une étape supplémentaire par rapport au précédent, qui consiste à laisser repousser les pics qui ont coalescé. Nous montrons, dans le chapitre 8, que le processus de réapparition des pics entraîne l'expulsion des défauts sur les bords de la cuve. L'efficacité d'un tel recuit est ainsi améliorée.

Nous avons mis en évidence le processus de transformation de la symétrie triangulaire en symétrie carrée. Strictement au seuil de transition, nous avons montré qu'il y a changement de nombre d'onde. Le mécanisme de la transition implique la formation de fronts de type I, pour lesquels le vecteur d'onde du réseau hexagonal perpendiculaire au front est conservé. Puis, nous avons analysé le rôle des défauts penta-hepta lors de la transition. Nous avons vu qu'ils agissent comme des centres de nucléation, en ce sens que la transition débute au niveau de ces défauts. De plus, nous avons montré que la phase carrée se construisait à partir du mode du réseau hexagonal non-altéré par le défaut. Ainsi, à partir de l'image du défaut penta-hepta, nous sommes capables de prédire l'orientation de la phase carrée à cet endroit. Nous faisons le parallèle avec l'instabilité de Bénard-Marangoni, où la transition hexagones-carrés vient d'être étudiée très récemment. Dans les deux expériences, les défauts jouent un rôle important lors de la transition. Dans l'instabilité de Bénard-Marangoni, le processus de formation des carrés à partir des hexagones implique l'émergence de cellules pentagonales transitoires. Bien qu'apparemment différentes, nous pensons cependant que les phénoménologies ne peuvent être que très semblables. Il semble ainsi très important de faire le parallèle entre ces deux expériences, afin de bien comprendre ce qui est commun.

Nous avons ensuite étudié le problème de sélection de nombre d'onde par variation brutale et quasistatique du champ magnétique. Par variation quasistatique du paramètre de contrôle, le réseau hexagonal se transforme en réseau carré au dessus d'une valeur critique du champ magnétique. Nous trouvons que la transition est hystérétique, ce qui confirme les prédictions théoriques. Durant le cycle d'hystérésis, le nombre d'onde du système diminue à la montée : ceci s'accompagne de coalescences de pics au niveau des joints de grain du réseau carré. Lorsque le champ décroît, de nouveaux pics réapparaissent dans la phase hexagonale à  $k \leq k_{crit}$ , ceci permettant au système de pratiquement rejoindre son état initial — réseau hexagonal à  $k_{crit}$ . Nous avons déterminé le processus de réapparition des pics. Ceux-ci croissent au niveau des défauts penta-hepta, ce qui conduit par réarrangement des pics au déplacement du défaut initial selon une des deux directions non-altérées. Les défauts se trouvent ainsi être expulsés sur les bords de la cuve.

Nous avons déterminé les domaines de stabilité des différentes symétries dans notre expérience. Il existe un désaccord quantitatif et qualitatif entre les résultats théoriques et expérimentaux. Nous interprétons cela par le fait que les calculs théoriques sont réalisés dans l'hypothèse où on observe la transition entre réseaux à  $k_{crit}$ . Or, expérimentalement, ce n'est pas ce que nous observons. La deuxième hypothèse non vérifiée est que  $|\mu_r - 1| \ll 1$ ,

où  $\mu_r$  est la perméabilité magnétique relative du ferrofluide. Par contre, nous avons montré que nos résultats expérimentaux tendaient qualitativement vers les prédictions théoriques lorsque la transition se produisait entre le réseau hexagonal à  $k_{crit}$  et le réseau carré dont le nombre d'onde tendait vers  $k_{crit}$ . Une des perspectives de ce travail serait de réaliser une analyse plus fortement non-linéaire à  $k$  variable.

Le procédé qui consiste à imposer une valeur du champ à la surface initialement plane du ferrofluide conduit à la sélection d'un réseau hexagonal, dont le nombre d'onde est d'autant plus petit que la valeur du champ imposée augmente. Ce réseau hexagonal est un état d'équilibre, obtenu après relaxation du système composé de réseaux hexagonal et carré co-existants. Nous en déduisons qu'à champ fixé supérieur au champ critique de l'instabilité, c'est l'état du système le plus stable et que par conséquent, le réseau hexagonal à  $k_{crit}$  et le réseau carré sont des états métastables pour ces valeurs du champ. Nous avons émis l'hypothèse que les conditions aux limites rigidifient le réseau hexagonal à  $k_{crit}$  et ne lui permettent pas d'ajuster son nombre d'onde quand on augmente continûment le champ.

Nous pensons que le réseau hexagonal, rigidifié à  $k_{crit}$ , est soumis à une contrainte isotrope, lorsqu'on augmente le champ. Cette contrainte existe du fait que, pour atteindre l'état le plus stable, la distance entre pics devrait augmenter avec le champ mais ne le peut pas. De ce fait, nous avons interprété la transition hexagones-carrés comme un moyen de relâcher la contrainte exercée sur le réseau hexagonal par augmentation du champ. Nous avons vérifié cette hypothèse avec l'expérience suivante : nous comprimons le réseau hexagonal par le biais d'un entonnoir, à champ magnétique constant. Cette compression isotrope provoque le passage vers la symétrie carrée. Nous avons montré que l'on pouvait induire la transition à champ constant, en comprimant le réseau hexagonal.

Ce travail constitue la première étude expérimentale systématique de la transition hexagones-carrés dans les ferrofluides. L'intérêt de cette étude est qu'elle s'inscrit dans le cadre général des transitions entre réseaux à symétries décroissantes. Nous avons montré que les défauts agissent comme centres de nucléation de la nouvelle phase dans l'ancienne. Ce comportement est général et est observé dans de nombreuses instabilités. Une des perspectives réside dans la comparaison des phénoménologies de la transition hexagones-carrés dans les différents systèmes physiques. Ce travail fournit de plus une rétroaction expérimentale aux différentes études théoriques ou numériques sur la transition.



# Table des figures

1.1	Colloïde magnétique sous champ normal. . . . .	17
1.2	Particule magnétique de taille 100 Å, enrobée d'une monocouche de 20 Å de surfactant [3]. . . . .	20
1.3	Courbes d'aimantation calculées pour différents ferrofluides à partir de la loi de Langevin; $D$ est la taille des particules et $\phi M_d = M_{sat}$ est l'aimantation de saturation [3]. . . . .	22
1.4	Lévitiation d'un objet non magnétique dans un ferrofluide [3]. . . . .	24
2.1	Le réseau hexagonal de pics; vue de dessus. La distance entre pics est de l'ordre du centimètre, ainsi que la hauteur des pics. . . . .	28
2.2	Le réseau hexagonal de pics; vue de côté. . . . .	29
2.3	Couche de ferrofluide soumise à un champ magnétique extérieur; déformation de l'interface. . . . .	30
2.4	Les lignes de champ se concentrent sur les crêtes de l'interface [3]. . . . .	31
2.5	Courbes de stabilité marginale pour différentes valeurs du paramètre de contrôle $H_0$ ; cas d'une couche épaisse-inertielle. . . . .	34
2.6	Mesures d'hystérésis de la hauteur des pics en faisant croître puis décroître le champ magnétique [25]. . . . .	36
2.7	Dispositif expérimental permettant l'étude de l'instabilité interfaciale de pics dans les ferrofluides. . . . .	37
2.8	Schéma de l'instabilité de Rayleigh-Taylor : le fluide le plus dense est placé sur le fluide le moins dense, $\rho_1 > \rho_2$ . . . . .	39
2.9	Instabilité de Kelvin-Helmoltz : schéma de l'écoulement. . . . .	40
2.10	Instabilité d'une interface chargée sous champ électrique. . . . .	41
3.1	Couche de ferrofluide dans le vide, soumise à une induction magnétique $\mathbf{H}_0$ . . . . .	44
3.2	Dépendance du champ magnétique et du nombre d'onde critiques en fonction de l'épaisseur de la couche. . . . .	52
4.1	Taux de croissance maximal $s_m$ et nombre d'onde associé $k_m$ en fonction du champ $\Phi$ , pour une couche épaisse-inertielle. . . . .	56
4.2	Vitesse de croissance de l'instabilité pour différentes valeurs de la viscosité à $\Phi = 1, 1$ . . . . .	59
4.3	Cross-over entre les régimes visqueux et inertiel pour une couche épaisse. . . . .	59

4.4	Le nombre d'onde de taux de croissance maximale $k_m$ pour les différents régimes. . . . .	62
4.5	Les régimes visqueux et inertiels, couche mince; $f = (l_v/l_c)^{3/2}$ , $\varepsilon = \Phi c - 1$ et $a$ est l'épaisseur de la couche. . . . .	63
4.6	Les relations de dispersion : (a) : $k_m$ dépend de $\Phi$ ; $k_{crit} = 1$ ; $\Phi_{crit} = 1$ . (b) : $k_m = k_{crit} = 1$ ; $\Phi_{crit} = 1$ . (c,d) : $k_m$ dépend de $\Phi$ ; $k_{crit} = 1$ ; $\Phi_{crit} = 1/c = \frac{2}{1+\mu}$ . . . . .	64
5.1	Les trois configurations possibles de l'interface [21]. . . . .	74
5.2	Les six modes considérés pour permettre l'existence de rouleaux, carrés et hexagones, $ \mathbf{k}_j  =  k_{crit} $ [49]. . . . .	76
5.3	Domaines de stabilité des états stationnaires dans le cas où des rouleaux, carrés, hexagones à $k_{crit}$ peuvent apparaître [49]. . . . .	77
6.1	Le réseau hexagonal contient des lignes de défauts appelés joints de grain. Nous observons plusieurs réseaux hexagonaux d'orientations différentes dans la cuve. Les défauts penta-hepta du réseau hexagonal sont représentés par un rond blanc pour le pic qui a cinq voisins, un rond gris pour le pic qui en a sept. . . . .	80
6.2	Analyse de Fourier du réseau hexagonal . . . . .	82
6.3	Les trois modes du réseau hexagonal dans l'espace de Fourier; $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3$ correspondent respectivement aux modes de la figure 6.2 - (c,d,e). . . . .	83
6.4	Analyse de Fourier du défaut penta-hepta . . . . .	84
6.5	Les défauts penta-hepta sont proches les uns des autres et forment un joint de grain dans le réseau hexagonal, séparant deux réseaux hexagonaux d'orientations différentes. . . . .	85
6.6	Analyse de Fourier du réseau carré . . . . .	86
6.7	Joint de grain qui sépare deux réseaux carrés d'orientations différentes; (b) : module de la transformée de Fourier; (c,d,e,f) : les quatre modes reconstitués. . . . .	87
6.8	Deux dislocations dans le réseau carré. . . . .	88
6.9	Formation de rouleaux sous-critiques parallèlement aux parois, avant apparition de l'instabilité. . . . .	90
6.10	Réseau hexagonal sans défaut (haut) ou avec des défauts penta-hepta isolés (bas). . . . .	91
6.11	Principe de la technique de recuit : obtenir une succession de réseaux hexagonaux en faisant croître et décroître le champ magnétique, tout en passant par l'état carré. . . . .	92
6.12	Technique de recuit sans coalescences : diminution des défauts penta-hepta. . . . .	94
6.13	Technique de recuit sans coalescences : les défauts penta-hepta diminuent dès la 2ème étape; la structure reste stable lors des étapes suivantes. . . . .	95
6.14	Technique de recuit sans coalescences : succession d'états métastables du système, qui passe d'une configuration de défauts à l'autre. . . . .	96
6.15	Technique de recuit avec coalescences : après réapparition des pics sur l'image 3, on constate que les défauts ont été expulsés sur les bords. . . . .	97

7.1	Les réseaux hexagonal et carré de pics. . . . .	99
7.2	Le réseau hexagonal (a) et les trois modes fondamentaux qui le constituent (c,d,e). . . . .	100
7.3	Mouvement d'une rangée de pics par rapport à ses voisines, impliquant localement la transformation de la symétrie triangulaire en une symétrie rectangulaire; sur la droite de la Figure, nous avons représenté les réseaux dans l'espace de Fourier. . . . .	101
7.4	En l'absence de défauts dans le réseau hexagonal, la transition s'amorce au niveau des parois. . . . .	102
7.5	Changement de nombre d'onde au seuil, entre le réseau hexagonal et le réseau carré; $k_{\text{carré}} = \sqrt{3}/2 k_{\text{hex}}$ . . . . .	103
7.6	Fronts de type I et II, dans l'espace de Fourier. . . . .	104
7.7	La transition démarre au niveau du défaut penta-hepta; (a) : $H_{\text{crit}} < H < H'_{\text{crit}}$ ; (b) : $H \simeq H'_{\text{crit}}$ ; (c) : $H = 1,04 H'_{\text{crit}}$ ; (d) : $H = 1,06 H'_{\text{crit}}$ . . . . .	106
7.8	défaut penta-hepta : les deux flèches indiquent dans quels sens vont se mouvoir les pics au dessus du seuil de transition. . . . .	107
7.9	Evolution du défaut penta-hepta lors de la transition; nous avons représenté les sommets des pics par des points blancs. Le mode non altéré par le défaut penta-hepta sert de base au réseau carré. Le deuxième mode du réseau carré est perpendiculaire au premier et correspond à la direction du défaut penta-hepta. . . . .	108
7.10	Le réseau hexagonal (en haut) et ses trois modes reconstitués; le réseau carré (en bas) formé par augmentation du champ à partir du réseau hexagonal ci-dessus. Nous constatons que le mode non-altéré par le défaut est conservé lors de la transition. . . . .	109
7.11	Extension du réseau carré dans la cuve; on note la présence de joints de grain; (e) : $H = 1,1 H'_{\text{crit}}$ ; (f) : $H = 1,14 H'_{\text{crit}}$ ; (g) : $H = 1,2 H'_{\text{crit}}$ ; (h) : $H = 1,6 H'_{\text{crit}} = M_{\text{sat}}$ . . . . .	110
8.1	Sélection brutale du nombre d'onde. . . . .	116
8.2	Sélection de nombres d'onde des réseaux hexagonal et carré, par variation quasistatique du champ magnétique. Sélection brutale du nombre d'onde ( $\Delta$ ). . . . .	118
8.3	Nombre de pics dans la cuve en fonction du champ à la montée. $N_{\text{crit}}$ correspond au nombre de pics pour le réseau hexagonal à $k_{\text{crit}}$ . . . . .	118
8.4	Nombre d'onde du réseau hexagonal sélectionné à la descente en fonction du champ maximal atteint durant le cycle. . . . .	120
8.5	Les différents chemins suivis par le système à la descente en champ magnétique : le nombre d'onde du réseau hexagonal varie en fonction du champ maximum atteint $\varepsilon_{\text{max}}$ . $\varepsilon_{h-s}$ représente le seuil de la transition hexagones-carrés. . . . .	120
8.6	Le seuil de la transition hexagones-carrés dépend du nombre d'onde du réseau hexagonal de départ. . . . .	122



8.7	Domaines de stabilité des états stationnaires dans le cas où des rouleaux, carrés, hexagones peuvent apparaître pour $k = k_{crit}$ [49]. . . . .	122
8.8	Le seuil de stabilité des deux symétries en fonction de $\varepsilon_{max}$ ; $\varepsilon_h = 1, 25$ ; $\varepsilon_s$ varie en fonction de $\varepsilon_{max}$ . . . . .	124
8.9	Valeurs des prédictions théoriques des domaines de stabilité pour différentes valeurs de la perméabilité magnétique du ferrofluide. . . . .	124
8.10	La création de nouveaux pics. Le processus équivaut au déplacement du défaut se déplace selon l'une des deux directions altérées dans le réseau. . .	125
9.1	Les résultats de sélection par variation quasistatique et brutale sont représentés sur le schéma. La quantité $\Delta k$ mesure en quelque sorte le taux de compression du réseau hexagonal à $k_{crit}$ par rapport à son état d'équilibre. . . . .	128
9.2	Schéma de l'expérience : ferrofluide sous champ magnétique normal, dans un entonnoir; le champ est choisi inférieur au seuil de transition et reste constant durant l'expérience. . . . .	129
9.3	Nombres de pics dans la cuve à différents stades de l'expérience. . . . .	130
9.4	$\triangle$ : sélection brutale du nombre d'onde; $\blacklozenge$ : nombre d'onde du réseau hexagonal atteint par compression pour que la transition se produise. . . . .	132
9.5	Compression uniaxiale du réseau hexagonal à $k_{crit}$ dans une cuve-piston. . .	132
9.6	Schéma de l'expérience : ferrofluide soumis à un champ magnétique uniforme au centre de la cuve, et nul sur les bords. . . . .	133
9.7	Les différentes étapes de l'expérience; au fur et à mesure que le réseau hexagonal est comprimé, on observe la transition vers le réseau carré. . . . .	134
9.8	La symétrie carrée se réorganise en symétrie triangulaire à partir de l'image 17. . . . .	135
A.1	La fonction $f(\mu_r)$ . . . . .	148
B.1	L'instabilité de Bénard-Marangoni (à gauche); L'instabilité de Rosensweig (à droite); dans les deux cas, on remarque la structure hexagonale (a) puis la structure en étoile du réseau carré (b, c) dûe au mécanisme de la transition. . . . .	152
B.2	Le mécanisme de transition [51]. . . . .	153
B.3	Dépendance du nombre d' hexagones, pentagones et carrés en fonction du paramètre de contrôle $\varepsilon$ [51]. . . . .	154

# Liste des tableaux

1.1	Paramètres d'un système typique. . . . .	17
1.2	Ferrofluide typique. . . . .	21
2.1	Paramètres du ferrofluide APG 512 A. . . . .	38
3.1	Grandeurs capillaires. . . . .	49
3.2	Valeurs numériques des grandeurs capillaires pour le ferrofluide APG 512 A. . . . .	49
4.1	Les différents régimes de la couche de ferrofluide. . . . .	54
4.2	Amplitude du régime visqueux pour divers ferrofluides; les paramètres de ces ferrofluides sont présentés dans l'annexe C. . . . .	60
C.1	Quelques ferrofluides commercialisés par <i>Ferrofluidics Corporation</i> . . . . .	155



# Annexe A

## Calcul du champ critique

Dans cette annexe, nous expliquons comment nous calculons la valeur théorique du champ critique. Nous tenons de plus à signaler l'erreur qui s'est glissée dans l'article [39], à propos du calcul de  $\mu(H)$ , dans le tout dernier paragraphe. Puisque la perméabilité magnétique  $\mu$  du ferrofluide dépend du champ magnétique, la valeur du champ critique vérifie une équation implicite. Pour le cas qui nous intéresse — couche épaisse, le seuil est donné par la relation suivante :

$$H_{crit} = \left( \frac{2}{\mu_0} \frac{(\mu_0/\mu + 1)}{(\mu_0/\mu - 1)^2} \right)^{1/2} (\rho g \gamma)^{1/4}$$

L'équation implicite à résoudre s'écrit alors :

$$\begin{aligned} H_{crit} &= f(\mu_r(H_{crit})) \sqrt{2/\mu_0} (\rho g \gamma)^{1/4} \\ f(\mu_r) &= \frac{\sqrt{1 + 1/\mu_r}}{\mu_r - 1} \end{aligned} \tag{A.1}$$

Nous remarquons que la fonction  $f(\mu_r)$  (représentée sur la Figure A.1), et par conséquent  $H_{crit}$ , varie rapidement en fonction de  $\mu_r$  pour  $1 \leq \mu_r \leq 2$ . Ceci signifie qu'il est important de résoudre une équation implicite pour avoir une bonne estimation de  $H_{crit}$ .

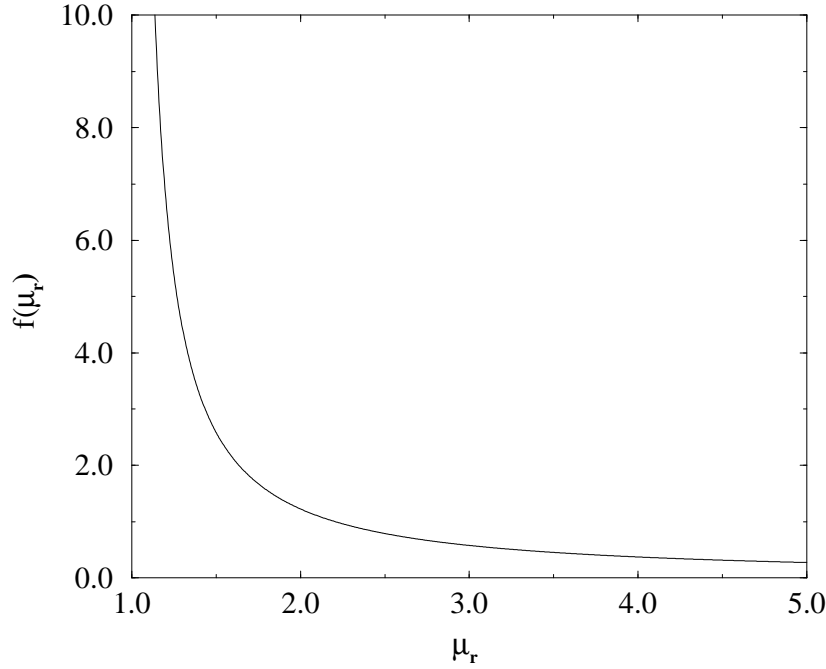
Nous allons évaluer la fonction  $\mu/\mu_0 = \mu_r(H)$ . Notre ferrofluide étant peu concentré, nous pouvons utiliser la loi de Langevin comme une bonne approximation de l'aimantation du ferrofluide en fonction du champ magnétique (cf chapitre 1):

$$M/M_{sat} = \left( \coth(\alpha) - \frac{1}{\alpha} \right) \equiv L(\alpha)$$

où  $\alpha = mH_0/kT$ ,  $m$  étant l'aimantation par particule,  $M_{sat}$  l'aimantation de saturation,  $H_0$  le champ extérieur appliqué,  $L$  la fonction de Langevin,  $k$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température.

Sachant que l'aimantation  $M$  du ferrofluide est reliée au champ extérieur  $H_0$  par la relation :

$$M = (1 - 1/\mu_r)H_0$$

FIG. A.1: La fonction  $f(\mu_r)$ .

Il s'ensuit que :

$$\mu_r(H_0) = 1/(1 - M/H_0)$$

Et en remplaçant l'aimantation par l'expression de Langevin, nous obtenons :

$$\mu_r(H_0) = 1/\left(1 - \frac{M_{sat}}{H_0} L(\alpha)\right) \quad (\text{A.2})$$

Afin d'évaluer pour notre ferrofluide la constante  $m/kT$ , nous remarquons que :

$$\lim_{\alpha \rightarrow 0} L(\alpha) = \alpha/3$$

Ceci nous permet de calculer  $m/kT$ , à partir de l'équation A.2 :

$$m/kT = \frac{3\chi_i}{M_{sat}(1 + \chi_i)}$$

où  $\chi_i = \mu_r(H = 0) - 1$  est la susceptibilité magnétique initiale.  
d'où la relation qui relie  $\mu_r$  à  $H_0$  :

$$\mu_r(H_0) = 1/\left(1 - \frac{M_{sat}}{H_0} L\left(\frac{3H_0\chi_i}{M_{sat}(1 + \chi_i)}\right)\right) \quad (\text{A.3})$$

En remplaçant l'expression précédente dans l'équation A.1, nous pouvons maintenant évaluer le champ critique à l'aide du logiciel *Mathematica*. Il suffit de connaître les grandeurs suivantes :  $\chi_i$ ,  $M_{sat}$  ainsi que  $\rho$  et  $\gamma$ , qui sont des caractéristiques du ferrofluide.

## Les unités magnétiques

La difficulté majeure avec les unités magnétiques provient du fait qu'on jongle entre deux systèmes d'unités.

Dans le système MKSA, l'induction magnétique  $H$  et l'aimantation  $M$  s'expriment en Ampères/mètre. Le champ magnétique  $B$  s'exprime en Tesla.  $\mu_0 = 4\pi 10^{-7}$  H m<sup>-1</sup>, où H désigne un Henry.

Dans le système cgs,  $H$  et  $M$  s'expriment en Oersted et  $B$  s'exprime en Gauss.  $\mu_0$  n'apparaît pas dans les formules. Dans le vide,  $B$  (Gauss) est numériquement égal à  $H$  (Oersted).

La relation entre ces unités est la suivante :

$$1 \text{ Tesla} = 10^4 \text{ Gauss}$$

$$1 \text{ A m}^{-1} \simeq 0,0126 \text{ Gauss}$$



# Annexe B

## L'instabilité de Bénard-Marangoni

L'instabilité de Bénard-Marangoni se présente comme une variante de l'instabilité de Rayleigh-Bénard. C'est l'instabilité d'une couche fluide chauffée par le bas et dont la face supérieure est libre. Le mécanisme de cette instabilité, dite *thermo-capillaire*, est lié à la variation de la tension interfaciale avec la température : de petites hétérogénéités de température engendrent des gradients de tension interfaciale, lesquels engendrent des courants de surface. On observe alors des cellules de convection hexagonales au dessus d'une température critique. Très récemment, il a été mis en évidence expérimentalement que ces cellules hexagonales deviennent instables en faveur de cellules de convection carrées, au dessus d'un second seuil en température [52, 51, 67]. Les photographies de l'expérience sont très semblables à celles que nous obtenons avec notre instabilité (Figure B.1).

Le mécanisme de transition est décrit de la manière suivante [51] : le réseau hexagonal contient des défauts penta-hepta. Quand on augmente  $\varepsilon$ , le nombre de pentagones non contenus dans les défauts penta-hepta croît. Les pentagones contenus dans les défauts agissent comme des centre de nucléation de ces pentagones libres.

Ces pentagones libres sont organisés en double lignes que les auteurs nomment "ligne penta". Le processus de transformation des hexagones en carré est détaillé sur la Figure B.2. Deux nœuds adjacents d'une cellule hexagonale se rapprochent l'un de l'autre selon l'une des trois directions du réseau hexagonal. Ils fusionnent et un des côtés de la cellule hexagonale disparaît, conduisant ainsi à la formation d'une cellule pentagonale. Quand on augmente encore  $\varepsilon$ , ces cellules pentagonales se transforment en cellules carrées à l'intérieur de la ligne penta, par disparition d'un des côtés orienté vers les cellules hexagonales. La composition du système en terme de cellules est représenté sur la Figure B.3.  $p_i = N_i/N$  représente le nombre de cellules d'une symétrie donnée rapporté au nombre total de cellules.

Le mécanisme de transition, bien qu'expliqué très différemment, semble très semblable. Quand les rangées de pics glissent sur elles-mêmes on a le même phénomène : les cellules hexagonales, définies par la base de chaque pic, se transforment en cellules pentagonales puis en cellules carrées. Nous avons vu de même que le glissement des rangées débute à partir des défauts et selon l'une des trois directions du réseau hexagonal.



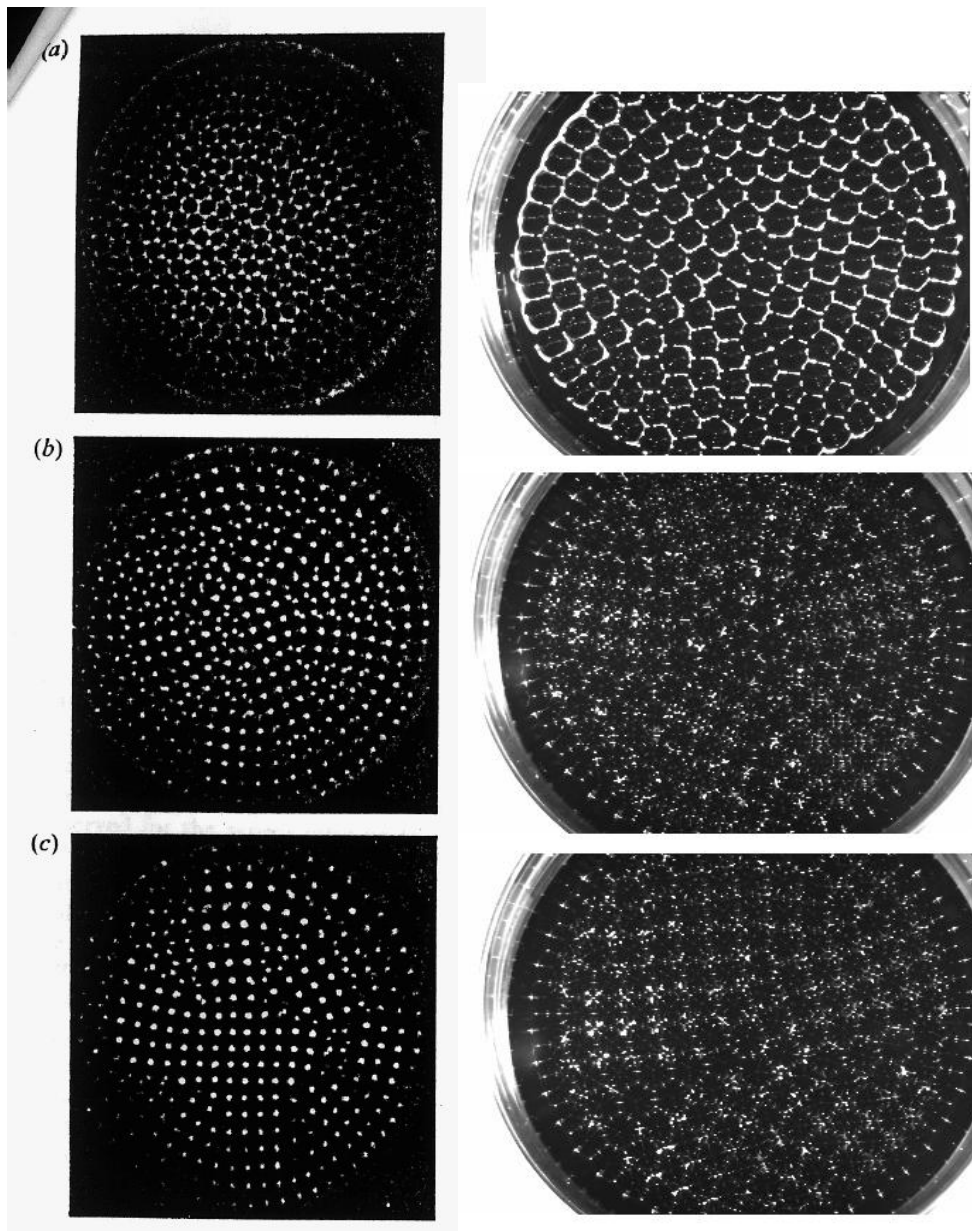


FIG. B.1: L'instabilité de Bénard-Marangoni (à gauche); L'instabilité de Rosensweig (à droite); dans les deux cas, on remarque la structure hexagonale (a) puis la structure en étoile du réseau carré (b, c) dûe au mécanisme de la transition.

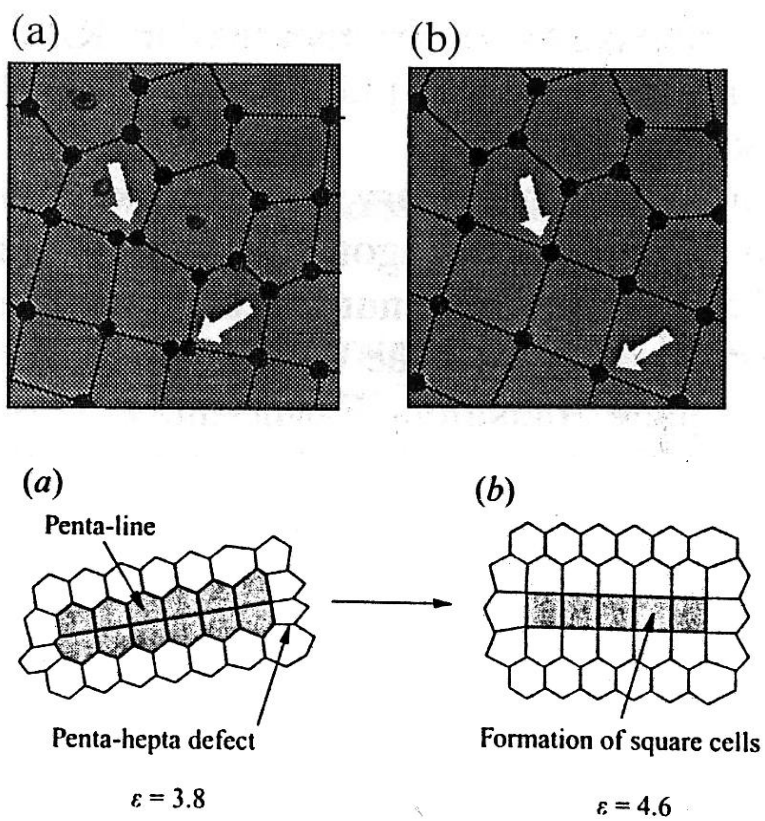


FIG. B.2: Le mécanisme de transition [51].

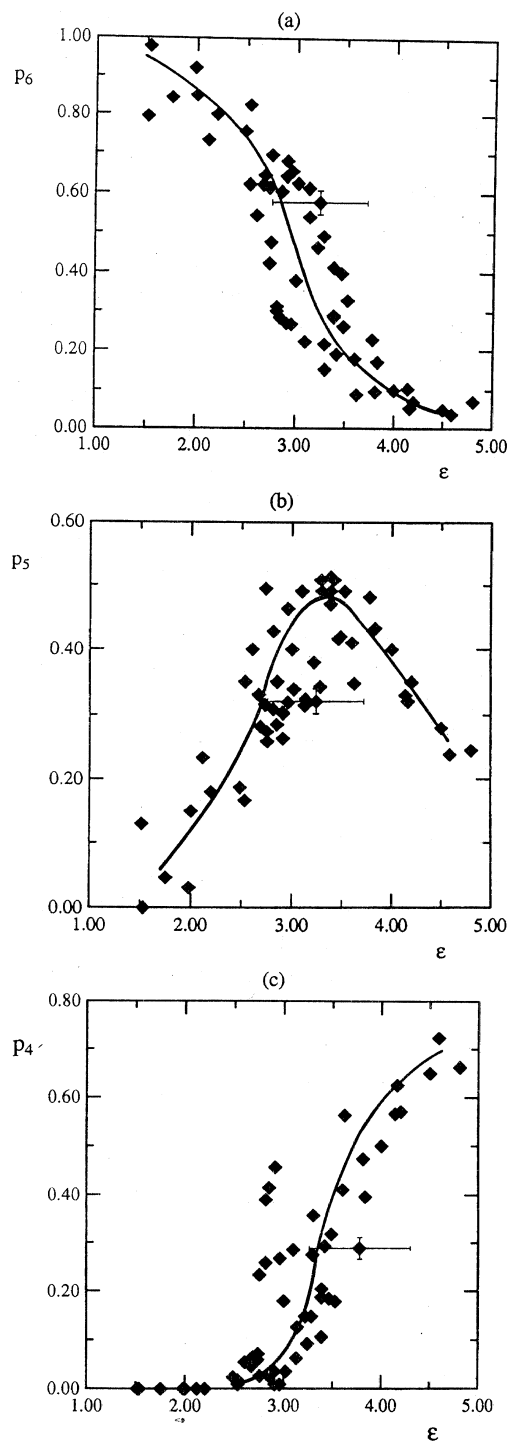


FIG. B.3: Dépendance du nombre d' hexagones, pentagones et carrés en fonction du paramètre de contrôle  $\varepsilon$  [51].

# Annexe C

## Paramètres physiques de quelques ferrofluides

Voici résumés dans le tableau C.1 les paramètres physiques de quelques ferrofluides commercialisés par *Ferrofluidics Corporation* :

ferrofluide	$\rho$ (g cm <sup>-3</sup> )	$\gamma$ (dyn cm <sup>-1</sup> )	$\eta$ (g s <sup>-1</sup> cm <sup>-1</sup> )	$\chi_i$
EMG 507	1,15	~ 33	0,02	0,4
EMG 900	1,74	25	0,6	4,2
EMG 308	1,05	~ 40	0,05	0,3
EMG 901	1,53	29,5	0,1	3
APG 512 A	1,26	35	0,75	1,4
APG 314	~ 1,2	25	1,5	1,2
APG 067	1,32	34	3,5	1,4

TAB. C.1: Quelques ferrofluides commercialisés par *Ferrofluidics Corporation*.



# Bibliographie

- [1] Rosensweig R. E. Les fluides magnétiques. *Pour la Science*, page 105, Décembre 1982.
- [2] Papell S. Low viscosity magnetic fluid obtained by the colloidal suspension of magnetic particles, 1963. Brevet U. S. 3.215.572.
- [3] Rosensweig R. E. *Ferrohydrodynamics*. Cambridge Univ. Press, 1985.
- [4] Sambuccetti C. J. *I.E.E.E. Trans. Mag.*, **MAG-16**:364, 1980.
- [5] Massart R. Préparation de ferrofluides aqueux en l'absence de surfactant; comportement en fonction du pH et de la nature des ions présents en solution. *C.R. Hebd. Séan. Acad. Sci.Paris*, **291**, 1980.
- [6] Massart R. Preparation of aqueous magnetic liquids in alkaline and acidic media. *I.E.E.E. Trans.on Magnetics*, **17**:1241, 1981.
- [7] Jolivet J. P., Massart R., and Fruchart J.-M. Synthèse et étude physico-chimique de colloïdes magnétiques non surfactés en milieux aqueux. *Nouveau Journal de Chimie*, **7**:325, 1983.
- [8] Rosensweig R. E., Nestor J. W., and Timmins R. S. Ferrohydrodynamic fluids for direct conversion of heat energy. *Mater Assoc. Direct Energy Convers. Proc. Symp. AIChE-I Chem. Eng. Ser.5*, page 104, 1965.
- [9] Khalafalla S. E. and Reimers G. W. Separating non-ferrous fluid metals in incinerator residue using magnetic fluids. *Separation Sci.*, **8**:161, 1973.
- [10] Bean C. P. and Livingston J. D. Superparamagnetism. *J. Appl. Phys*, **30**(4):120S, 1959.
- [11] Kaiser R. and Miskolczy G. Magnetic properties of stable dispersions of subdomain magnetite particles. *J. Appl. Phys*, **41**(3):1064, 1970.
- [12] Cotae C., Strateanu P., and Rosca V. Anticorrosive protection of magnetic peinture. In Anton I., Vékás L., and Sofonea V., editors, *Proc. ICMF8*, page 398. Timisoara (Romania), 1998.

- [13] Chan D. C. F., Kirpotin D. B., and Bunn P. A. Synthesis and evaluation of colloidal magnetic iron oxides for the site-specific radiofrequency-induced hyperthermia of cancer. *J. Magn. Mat.*, **122**:374, 1993.
- [14] Jordan A., Wust P., Scholz R., Tesche B., Föhling H., Mitrovics T., Vogl T., Cervós-Navarro J., and Felix R. Cellular uptake of magnetic fluid particles and their effects on human adenocarcinoma cells exposed to AC magnetic fields in vitro. *International Journal of Hyperthermia*, **12**:705, 1996.
- [15] Roath S. Biological and biomedical aspects of magnetic fluid technology. *J. Magn. Mat.*, **122**:329, 1993.
- [16] Cowley M. D. and Rosensweig R. E. The interfacial stability of a ferromagnetic fluid. *J. Fluid Mech.*, **30**:671, 1967.
- [17] Nozieres P. *Cours du Collège de France*, 1990.
- [18] Lighthill J. *Waves in Fluids*. Cambridge University Press, 1978.
- [19] Zaitsev V. M. and Shliomis M. I. Nature of the instability of the interface between two liquids in a constant field. *Soviet. Phys.-Dokl*, **14**:1001, 1970.
- [20] Kuznetsov E. A. and Spektor M. D. Existence of a hexagonal relief on the surface of a dielectric fluid in an external electrical field. *Sov. Phys. JETP*, **44**:136, 1976.
- [21] Gailitis A. Formation of the hexagonal pattern on the surface of a ferromagnetic fluid in an applied magnetic field. *J. Fluid Mech.*, **82**:401, 1977.
- [22] Brancher J.-P. Waves and instabilities on a plane interface between ferrofluids and nonmagnetic fluids. In B. Berkovsky, editor, *Thermo-mechanics s<sup>s</sup> of Magnetic Fluids*, page 181. Hemisphere Publishing Corporation, 1977.
- [23] Twombly E. and Thomas J. W. Mathematical theory of non-linear waves on the surface of a magnetic fluid. *IEEE Trans. on Magn.*, **MAG-16**(2):214, 1980.
- [24] Allais D. and Wesfreid J.-E. *Bull. Soc. Fr. Phys. Suppl.*, **57**:20, 1985.
- [25] Boudouvis A. G., Puchalla J. L., Scriven L. E., and Rosensweig R. E. Normal field instability and patterns in pools of ferrofluid. *J. Magn. Mat.*, **65**:307, 1987.
- [26] Bacri J.-C. and Salin D. First-order transition in the instability of a magnetic fluid interface. *J. Phys. Lett.*, **45**:L-559, 1984.
- [27] Chandrasekhar S. *Hydrodynamic and hydromagnetic stability*. Dover, 1981.
- [28] Fermigier M., Limat L., Wesfreid J.-E., Boudinet P., Petitjean P., Quilliet C., and Valet T. Gravitational and magnetic instabilities of thin fluid layers. *Phys. Fluids A*, **2**:1518, 1990.

- [29] Taylor G. I. and McEwan A. D. The stability of a horizontal fluid interface in a vertical electric field. *J. Fluid Mech.*, **22**:1, 1965.
- [30] Néron de Surgy G. *Etude des instabilités électrocapillaires; Application aux sources d'ions et d'électrons*. PhD thesis, Université Paris VI, 1995.
- [31] Giannetta R. W. and Ikezi H. Nonlinear deformation of the electron-charged surface of liquid helium. *Phys. Rev. Lett.*, **47**:849, 1981.
- [32] Zelazo R. E. and Melcher J. R. Dynamics and stability of ferrofluids : surface interactions. *J. Fluid Mech.*, **39**(1):1, 1969.
- [33] Brancher J.-P. Interfacial instability in viscous ferrofluids. *IEEE Transactions on Magnetism.*, **MAG-16**:1331, 1980.
- [34] Salin D. Wave vector selection in the instability of an interface in a magnetic or electric field. *Europhys. Lett.*, **21**(6):667, 1993.
- [35] Bacri J.-C., Perzynski R., and Salin D. Instabilité d'un film de ferrofluide. *cras*, **307**(II):699, 1988.
- [36] Valet T. and Wesfreid J.-E. Experiments and an improved model of the instabilities of thin viscous layers of magnetic liquids. In Crighton D. G. and Mainardi F., editors, *Dispersive waves in dissipative fluids*, page 62, Bologna, Italy, 1988.
- [37] Weillepp J. and Brand R. Competition between the Bénard-Marangoni and the Rosensweig instability in magnetic fluids. *J. Phys. II (Paris)*, **6**:419, 1996.
- [38] Browaeys J., Bacri J.-C., Flament C., and Perzynski R. Surface waves in ferrofluids under vertical magnetic field. *European Phys. Journal B*, 1998. à paraître.
- [39] Abou B., Néron de Surgy G., and Wesfreid J.-E. Dispersion relation in a ferrofluid layer of any thickness and viscosity. *J. Phys. II (Paris)*, **7**:1159, 1997.
- [40] Néron de Surgy G., Chabrerie J.-P., Denoux O., and Wesfreid J.-E. Linear growth of instabilities on a liquid metal under normal electric field. *J. Phys. II (Paris)*, **3**:1201, 1993.
- [41] Landau L. et Lifchitz E. *Mécanique des fluides*, volume **6**. Editions Mir, 1989.
- [42] Hynes T. P. *Stability of thin films*. PhD thesis, Churchill College, Cambridge, 1978.
- [43] Limat L. Instabilité d'un liquide suspendu sous un surplomb solide: influence de l'épaisseur de la couche. *C. R. Acad. Sci. Paris*, **317**(2):563, 1993.
- [44] Larmor J. *Proc. Cambridge Philos. Soc.*, **7**(69):69, 1890.
- [45] Rayleigh L. *Phil. Mag.*, (14):184, 1882.



- [46] Wesfreid J.-E. and Zaleski S., editors. *Cellular Structures in Instabilities*, volume 210 of *Lecture notes in physics*. Springer-Verlag, 1983.
- [47] Malomed B. A., Nepomnyashchy A. A., and Tribelsky M. I. Domain boundaries in convection patterns. *Phys. Rev. A*, **42**(1):7244, 1990.
- [48] Herrero H., Perez-García C., and Bestehorn M. Stability of fronts separating domains with different symmetries in hydrodynamical instabilities. *Chaos*, **4**:15, 1994.
- [49] Kubstrup C., Herrero H., and Pérez-García C. Fronts between hexagons and squares in a generalized Swift-Hohenberg equation. *Phys. Rev. E*, **54**(2):1560, 1996.
- [50] Bestehorn M. Square patterns in Bénard-Marangoni convection. *Phys. Rev. Lett.*, **76**:46, 1996.
- [51] Eckert K., Bestehorn M., and Thess A. Square cells in surface-tension-driven Bénard convection : experiment and theory. *J. Fluid Mech.*, **356**:155, 1998.
- [52] Nitschke-Eckert K. and Thess A. Secondary instability in surface-tension-driven Bénard convection. *Phys. Rev. E*, **52**(6):R5772, 1995.
- [53] Melo F., Umbanhowar P. B., and Swinney H. Hexagons, kinks, and disorder in oscillated granular media. *Phys. Rev. Lett.*, **75**(21):3838, 1995.
- [54] Swift J. and Hohenberg P. C. Hydrodynamic fluctuations at the convective instability. *Phys. Rev. A*, **15**(1):319, 1977.
- [55] Bestehorn M. and Haken H. *Z. Phys. B*, **57**:329, 1984.
- [56] Pampaloni E., Pérez-García C., L. Albavetti, and S. Ciliberto. Transition from hexagons to rolls in convection in fluids under non-Boussinesq conditions. *J. Fluid Mech.*, **234**:393, 1992.
- [57] Ciliberto S., Coulet P., Lega J., Pampaloni E., and Perez-Garcia C. Defects in roll-hexagon competition. *Phys. Rev. Lett.*, **65**:2370, 1990.
- [58] de Bruyn J. R., Bodenschatz E., Morris S. W., Trainoff S. P., Hu Y., Cannel D. S., and Alhers G. Apparatus for the study of Rayleigh-Bénard convection in gases under pressure. *Rev. Scientific Instruments*, **67**(6):2043, 1996.
- [59] Coulet P., Emilson K. P., and Plaza F. Qualitative theory of defects in non-equilibrium systems. In E. Tirapegui and W. Zeller, editors, *Instabilities and nonequilibrium structures*, volume III. Kluwer Academic Publishers, 1991.
- [60] Manneville J. B. Transition entre réseaux à symétries carrée et hexagonale dans les ferrofluides. Technical report, E. S. P. C. I, 1993.

- [61] Pantaloni J. and Cerisier C. Structure defects in Bénard-Marangoni instability. In J. E. Wesfreid and S. Zaleski, editors, *Cellular structures in instabilities*. Springer-Verlag, 1983.
- [62] Bashtovoy V. G., Berkovski B. M., and Vislovich A. N. *Introduction to thermomechanics of magnetic fluids*. Hemisphere Publishing Corporation, 1988.
- [63] Zaleski S. Wavelength selection through boundaries in 1-d cellular structures. In J. E. Wesfreid and S. Zaleski, editors, *Cellular Structures in Instabilities*, volume 210 of *Lecture notes in physics*. Springer-Verlag, 1983.
- [64] Abou B., Wesfreid J.-E., and Roux S. The normal field instability in ferrofluids : hexagon-square transition mechanism and wavenumber selection. *submitted to J. Fluid Mech.*
- [65] Ribotta R. and Joets A. Defects and interactions with the structures in ehd convection in nematic liquid crystals. In J. E. Wesfreid and S. Zaleski, editors, *Cellular structures in instabilities*, volume **210** of *Lecture notes in Physics*, page 249. Springer-Verlag, 1983.
- [66] Joets A. and Ribotta R. EHD convective structures and transition to chaos in a liquid crystal. In J. E. Wesfreid and S. Zaleski, editors, *Cellular structures in instabilities*, volume **210** of *Lecture notes in Physics*, page 298. Springer-Verlag, 1983.
- [67] Eckert K. and Thess A. Nonbound dislocations in hexagonal patterns : on the pentagon-lines in surface-tension-driven Bénard convection. *submitted.*