



HAL
open science

Dynamique des dislocations coin et dissipation dans les films librement suspendus de cristal liquide smectique

François Caillier

► **To cite this version:**

François Caillier. Dynamique des dislocations coin et dissipation dans les films librement suspendus de cristal liquide smectique. Analyse de données, Statistiques et Probabilités [physics.data-an]. Ecole normale supérieure de lyon - ENS LYON, 2005. Français. NNT: . tel-00011175

HAL Id: tel-00011175

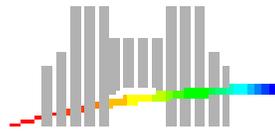
<https://theses.hal.science/tel-00011175>

Submitted on 8 Dec 2005

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.

ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE DE LYON
Laboratoire de Physique



THÈSE

Pour obtenir le titre de :

Docteur de l'École normale supérieure de Lyon
Spécialité : Physique

présentée et soutenue publiquement le 18 novembre 2005 par :

François CAILLIER

**Dynamique des dislocations coin et dissipation dans les
films librement suspendus de cristal liquide smectique**

Directeur de thèse :

Patrick OSWALD

Devant la commission d'examen formée de :

M. Bernard CASTAING	Président
M. Pawel PIERANSKI	Rapporteur
M. François LEQUEUX	Rapporteur
M. Georges DEBRÉGEAS	
M. Patrick OSWALD	

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier vivement Patrick Oswald, mon directeur de thèse, de m'avoir accueilli dans son équipe et de m'avoir fait découvrir l'univers passionnant des cristaux liquides. Il a su me guider au cours de ce travail tout en me laissant une certaine autonomie.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à Pawel Pieranski et à François Lequeux d'avoir accepté de faire un rapport sur mon travail. Je remercie aussi Georges Debrégeas d'avoir participé à ce jury et Bernard Castaing qui m'a fait l'honneur de le présider.

Au début de ce travail, j'ai eu la chance de collaborer avec Jean-Christophe Géminard, il m'a initié à l'utilisation de logiciels comme Igor et Mathematica qui a été importante pour la réalisation de ce travail et je le remercie pour son enthousiasme communicatif. J'adresse aussi mes remerciements à Andrzej Zywocinski avec qui j'ai eu le plaisir de travailler sur la maille élémentaire d'une mousse lorsqu'il a été visiteur au laboratoire. Je n'oublie pas de remercier Frédéric Picano qui m'a transmis son savoir-faire expérimental sur les films smectiques, ainsi que Artem Petrossian pour ses nombreux conseils techniques, Vance Bergeron qui a toujours été présent pour corriger mon anglais, Éric Freyssingeas pour son soutien et Doru Constantin dont les compétences en Latex ont contribué au bon déroulement de ma rédaction.

Je remercie le personnel de l'atelier de mécanique et les secrétaires du laboratoire pour leur compétence et leur gentillesse, et plus particulièrement Marc Moulin qui a dessiné et conçu le dispositif d'étude d'une bulle. J'adresse mes remerciements à tous les membres du laboratoire qui ont participé à créer une ambiance de travail agréable et sympathique. J'en profite pour souhaiter bonne chance aux suivants : Louis, Linda, Mathieu, Pierre, Jalal, Alain...

Je tiens aussi à remercier toute l'équipe enseignante avec qui j'ai eu beaucoup de plaisir à travailler en adressant une mention spéciale à Hervé Gayvallet, notre grand organisateur, pour sa remarquable disponibilité et pour toutes les discussions enrichissantes sur mes travaux de thèse et plein d'autres choses.

Je tiens enfin à saluer tous ceux qui m'ont accompagné au cours de ces trois années, en me soutenant (ou en me supportant) dans les moments difficiles et en partageant mes passions : la voile, les voyages, le ski, le badminton, l'escalade, les bonnes tables... Vous êtes beaucoup dans la réussite de cette thèse, votre amitié m'est précieuse. Pour finir, j'embrasse tendrement toute ma famille.

Table des matières

Introduction	9
I Rappels sur les films libres smectiques	11
1 Présentation des films libres smectiques	13
1.1 Généralités sur les films smectiques	13
1.1.1 La phase smectique A	13
1.1.2 Les films smectiques	15
1.2 Pourquoi étudier les films smectiques ?	16
1.2.1 Transitions de phases	16
1.2.2 Propriétés mécaniques : exemple	17
1.2.3 Étude des défauts : dislocations coin	18
1.3 Techniques et dispositifs expérimentaux	20
1.3.1 Formation et observation des films	20
1.3.2 Mesure d'épaisseur	22
2 Propriétés statiques des films smectiques	27
2.1 Structure et profil du ménisque	28
2.1.1 Structure du ménisque	28
2.1.2 Profil du ménisque et angle de raccordement	29
2.2 Thermodynamique d'un film smectique	31
2.2.1 Étude énergétique	31
2.2.2 Équilibre mécanique	33
2.2.3 Angle de raccordement θ_m	33
2.2.4 Tension du film τ	34
2.3 Origine de la pression de disjonction	35
2.3.1 Théorie	35
2.3.2 Énergie d'interaction $f(H)$	36
2.3.3 Pression de disjonction Π_d	36

3	Dynamiques des films smectiques	39
3.1	Mobilité d'une dislocation coin	39
3.1.1	Écoulement autour d'une dislocation : modélisation	39
3.1.2	Effet de confinement	41
3.1.3	Mobilité d'une dislocation dans un film	42
3.2	Dynamique des boucles de dislocation dans un film	44
3.2.1	Observations dans les films épais	44
3.2.2	Interprétation	44
3.2.3	Ralentissement dans les films fins et effet des surfaces	46
II	Le ménisque : un réservoir dissipatif	49
4	Modélisation de la perméabilité du ménisque	51
4.1	Définition	51
4.1.1	Constante de dissipation $C(N)$	51
4.1.2	Dissipation dans le ménisque Φ_{men}	52
4.2	Modèle du ménisque dans les films épais	52
4.2.1	Description	52
4.2.2	Calcul de la dissipation	53
4.3	Modèle du ménisque dans le cas général	54
4.3.1	Description	54
4.3.2	Calcul de la dissipation	56
5	Mesure de la perméabilité du ménisque	59
5.1	Ralentissement des boucles (films fins)	59
5.1.1	Étude théorique	60
5.1.2	Mesure de $C(N)$	61
5.2	Écoulement entre deux ménisques (films épais)	63
5.2.1	Principe de la mesure et dispositif expérimental	63
5.2.2	Détermination de $C(N)$	65
5.2.3	Résultats expérimentaux	69
5.2.4	Conclusion	74
III	Dynamique d'effondrement d'une bulle smectique	77
6	Étude théorique	79
6.1	Problématique	79
6.2	Présentation du problème	81
6.2.1	Description du système	81

6.2.2	Equation fondamentale	83
6.2.3	Contrôle de la vitesse d'effondrement	85
6.2.4	Dissipation dans le smectique Φ_{Sm}	88
6.3	Résolution du problème	89
6.3.1	Normalisation des équations	89
6.3.2	Résolution des équations	91
6.3.3	Évolution du système	91
6.4	Pression dans le film :	96
6.4.1	Déstabilisation du ménisque	97
6.4.2	Nucléation d'îlots	99
6.5	Discussion des hypothèses du problème	101
6.5.1	Effet de la compressibilité de l'air	102
6.5.2	Effets de l'inertie du film et de l'air	104
6.5.3	Récapitulatif des différents temps caractéristiques	105
7	Étude expérimentale	107
7.1	Description du dispositif expérimental	108
7.1.1	Présentation succincte	108
7.1.2	Préparation de la bulle	108
7.1.3	Visualisation	111
7.1.4	Mesure de la pression à l'intérieur de la bulle	115
7.1.5	Déclenchement : vanne smectique	116
7.2	Première approche : évolution de ΔP_i	117
7.2.1	Données expérimentales	118
7.2.2	Effet volumique du capteur de pression	120
7.2.3	Dissipation en fonction de la vitesse d'effondrement	122
7.3	Deux étapes dans la dynamique d'effondrement	125
7.3.1	Première étape : déstructuration du ménisque	125
7.3.2	Seconde étape : effondrement de la bulle	129
7.3.3	Comportement rhéologique du ménisque	131
7.4	Nucléation et croissance d'îlots	133
7.4.1	Étude en fonction de l'épaisseur du film	133
7.4.2	Dans les films épais : $N > 500$	134
7.4.3	Dans les films fins : $N < 500$	138
	Conclusion	141
	A Effets de bord	145
	B Stabilité des îlots facettés	149

Notations	151
Bibliographie	153
Table de figures	156

Introduction

Dans un cristal liquide smectique, les molécules de formes allongées, assimilables à des bâtonnets, s'arrangent dans des couches qui s'empilent les unes sur les autres. En étirant une goutte de smectique sur un cadre, on obtient facilement un film libre smectique semblable à un film de savon. À l'équilibre, l'épaisseur d'un film smectique est homogène, le nombre de couches est constant sur toute sa surface. Contrairement aux films de savon, il ne sèche pas et son épaisseur n'est pas affectée par le drainage. En effet, dans un film smectique, l'élasticité des couches en volume compense la pression capillaire, empêchant ainsi son amincissement. Sa structure lamellaire lui confère donc une remarquable stabilité : il peut être conservé et manipulé pendant plusieurs jours (voire plusieurs mois). Profitant de ces atouts, les films smectiques ont donc été utilisés comme système modèle.

Chaque film librement suspendu est relié à son cadre par un excédent de matière, appelé ménisque. Celui-ci, de volume bien supérieur au volume du film, peut échanger des molécules avec le film. Le ménisque se comporte par conséquent comme un réservoir de particules et fixe à l'équilibre la pression à l'intérieur du film. De nombreux travaux portant sur la thermodynamique des films smectiques ont montré la nécessité de considérer le système "film + ménisque" dans son ensemble pour mieux comprendre ses propriétés statiques.

Un autre intérêt des films smectiques est qu'ils permettent d'étudier les dislocations coin qui sont leurs défauts topologiques caractéristiques du fait de leur structure lamellaire. Ces défauts forment des boucles que l'on peut facilement isoler dans un film, puis observer au microscope en réflexion. Les expériences ont permis de mesurer leur énergie de ligne et leur mobilité. Lorsqu'une dislocation se déplace, les écoulements de perméation localisés autour du coeur du défaut dissipent de l'énergie et sont à l'origine de sa mobilité finie.

En nous basant sur des travaux précédents, notamment ceux de F. Picano, nous nous sommes intéressés, lors de cette thèse, à la dynamique des films de cristal liquide thermotrope *8CB* en phase smectique, et plus précisément aux problèmes de dissipation lors des échanges de matière entre le film et le ménisque. Les films formant des milieux confinés entre deux surfaces très rapprochées, de quelques nanomètres à quelques micromètres, nous avons aussi toujours gardé à l'esprit que toutes leurs propriétés pouvaient être, a priori, fortement dépendantes de leur épaisseur. Notons, par ailleurs, qu'il s'agit essentiellement de travaux expérimentaux, qui nous ont cependant amenés à proposer quelques modèles théoriques

pour répondre à des questions simples telles que : quelle est l'origine de la dissipation dans le ménisque ? Où est-elle localisée ? Comment dépend elle de la vitesse à laquelle la matière est échangée ? etc ...

Le manuscrit se construit en trois grandes parties.

Dans la première partie, nous poserons les fondements de ce travail en faisant des rappels importants sur les films smectiques. Nous reviendrons entre autres sur les travaux de F. Picano réalisés pendant sa thèse. Plus précisément, nous commencerons par une brève présentation des smectiques, puis nous détaillerons les propriétés statiques des films obtenus en étudiant celles du système global "film + ménisque", ce qui nous permettra d'expliquer leur grande stabilité. Nous nous intéresserons ensuite aux propriétés dynamiques des dislocations coin. Nous définirons leur mobilité et nous détaillerons les expériences de croissance de boucles. Nous verrons qu'elles ralentissent dans les films fins lorsqu'elles grandissent, révélant ainsi une autre source de dissipation.

Dans la seconde partie, nous étudierons le caractère dissipatif du ménisque. Nous montrerons que lorsque le ménisque échange de la matière avec le film, celui-ci ne se comporte plus comme un réservoir parfait fixant la pression dans le film. Nous présenterons d'abord un modèle hydrodynamique du ménisque où les écoulements de perméation autour des dislocations qui composent le ménisque sont à l'origine de sa perméabilité finie. Puis, nous décrirons et analyserons deux expériences complémentaires, la première portant sur le ralentissement des boucles et la seconde sur la relaxation de deux ménisques reliés par un film. Nous verrons qu'elles permettent de caractériser la perméabilité du ménisque en fonction de l'épaisseur du film et de confirmer le modèle.

Enfin, dans la troisième et dernière partie, nous étudierons la dynamique d'effondrement d'une bulle smectique à travers un capillaire plus ou moins long. Cette expérience met en jeu des échanges de matière entre le film et le ménisque beaucoup plus rapides que dans le régime quasi-statique décrit précédemment. Dans un premier temps, nous montrerons théoriquement que la loi de Laplace statique n'est plus vérifiée lors de l'effondrement et que l'écart à cette loi permet de mesurer la dissipation dans le système. Dans un second temps, nous décrirons l'expérience réalisée. Après avoir montré le dispositif expérimental, nous verrons que la dynamique d'effondrement se décompose en deux étapes avec un comportement rhéologique radicalement différent du régime quasi-statique. Finalement, nous analyserons l'influence de la croissance d'îlots en fonction de l'épaisseur du film.

Première partie

Rappels sur les films libres smectiques

Chapitre 1

Présentation des films libres smectiques

Sommaire

1.1 Généralités sur les films smectiques	13
1.1.1 La phase smectique A	13
1.1.2 Les films smectiques	15
1.2 Pourquoi étudier les films smectiques ?	16
1.2.1 Transitions de phases	16
1.2.2 Propriétés mécaniques : exemple	17
1.2.3 Étude des défauts : dislocations coin	18
1.3 Techniques et dispositifs expérimentaux	20
1.3.1 Formation et observation des films	20
1.3.2 Mesure d'épaisseur	22

1.1 Généralités sur les films smectiques

1.1.1 La phase smectique A

Les propriétés spécifiques des phases mésomorphes viennent de l'anisotropie des molécules qui les composent, souvent allongées. Dans les phases smectiques, les molécules conservent une orientation moyenne commune, comme dans la phase nématique, et elles s'organisent de plus en couches parallèles les unes aux autres (Fig. 1.1). Les phases smectiques présentent donc aussi un ordre positionnel dans une direction de l'espace.

Il existe une très grande variété de smectiques. Dans cette thèse, nous nous sommes seulement intéressés aux films de cristal liquide en phase smectique A. Dans cette phase, la direction normale aux couches est la même que la direction moyenne des molécules. La

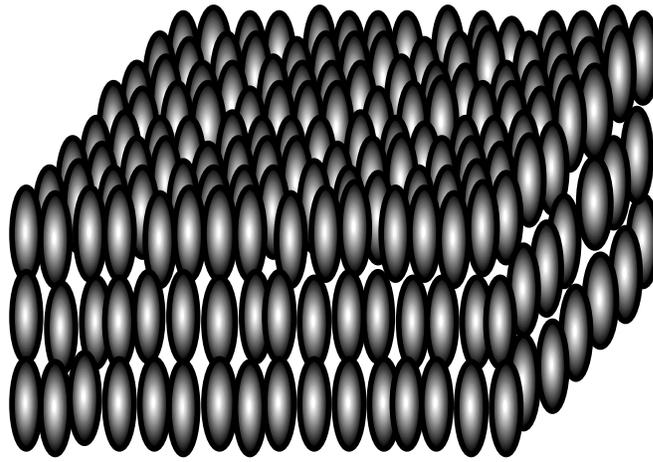


FIG. 1.1 – Représentation schématique de la phase smectique A : les molécules perpendiculaires aux couches, se déplacent dans chaque couche comme dans un liquide [31].

phase smectique A est de plus une phase smectique dite "liquide" : les molécules restent libres de se mouvoir dans les couches comme dans un liquide à deux dimensions. On peut donc parler d'empilement "solide" de couches, elles-mêmes "liquides". Enfin, remarquons que la structure lamellaire confère au smectique A des propriétés remarquables, dont la plus évidente est l'apparition d'un comportement élastique lorsqu'on tente de comprimer ou de dilater les couches.

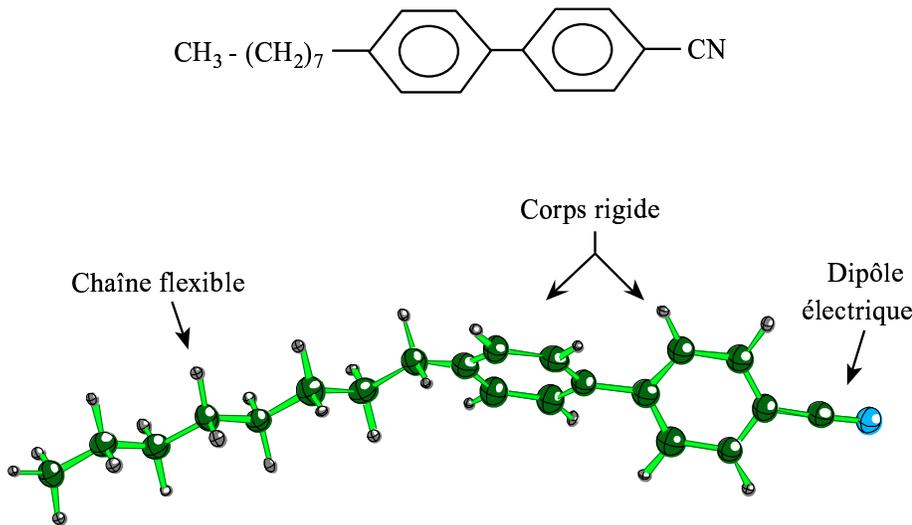
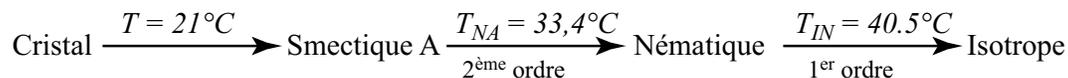


FIG. 1.2 – Formule semi-développée et structure moléculaire de la molécule de 8CB (4-n-octylcyanobiphényle) [31].

Lors de ce travail, toutes les expériences ont été réalisées avec du 8CB (4-n-octylcyanobiphényle) dont nous avons représenté la formule semi-développée et la structure moléculaire sur la figure 1.2. Cette molécule est constituée d'une chaîne aliphatique flexible de 8 carbones, de deux noyaux benzéniques qui forment la partie rigide de l'édifice, et enfin d'un groupement

cyano. Ce produit présente la séquence de phases suivante :



Lorsque la température augmente, chaque transition est caractérisée par une brisure de symétrie à laquelle est associée une diminution de l'ordre de la phase.

1.1.2 Les films smectiques

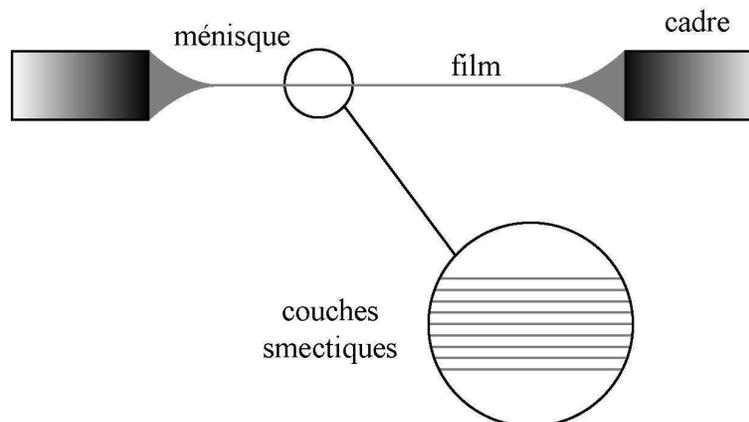


FIG. 1.3 – Représentation schématique d'un film librement suspendu sur son support par l'intermédiaire d'un ménisque. Les couches smectiques sont parallèles aux surfaces libres [34].

La structure lamellaire des phases smectiques permet d'étirer facilement des films libres d'une remarquable stabilité. Grâce à la très faible pression de vapeur saturante des phases de cristaux liquides thermotropes, et particulièrement du *8CB*, un film à l'abri de toute perturbation mécanique et dans une atmosphère sans trop de poussières peut rester stable pendant des mois. On entend par film libre, un film suspendu dans l'air, en général tendu sur un cadre (figure 7.24), tout comme les films qui forment les bulles de savon. Dans un échantillon entre lame et lamelle, l'ancrage du cristal liquide sur les surfaces solides est d'une importance capitale pour obtenir une orientation homogène. Dans les films libres, on ne rencontre pas les effets perturbateurs liés aux substrats, et les couches smectiques sont toujours parfaitement parallèles aux surfaces libres (figure 7.24). De plus, les films libres ont la particularité d'avoir une épaisseur très homogène sur toute leur surface lorsqu'ils sont à l'équilibre. Cette épaisseur peut aller de deux couches (soit environ 6 nm pour le *8CB*) à plusieurs milliers (soit environ quelques micromètres), sachant que l'épaisseur d'une couche est d'environ 3 nm. Tout ceci contribue donc à faire des films libres de smectique A des systèmes sans défauts. Ainsi les films smectiques sont des systèmes très ordonnés et de très petite dimension en ce qui concerne leur épaisseur. Ils sont donc parfaits pour étudier les effets du confinement dans la direction orthogonale aux couches. On peut ainsi observer

dans les films épais des propriétés des phases smectiques très voisines de celles obtenues en échantillon quasi infini, alors que dans les films fins (quelques couches), bon nombre de leurs propriétés physiques deviennent fortement dépendantes de l'épaisseur.

Enfin, il est important de noter que chaque film librement suspendu est relié à son cadre par un excédent de matière, appelé ménisque. Le volume du ménisque étant beaucoup plus important que celui du film lui-même, il se comportera en général comme un réservoir de molécules pour le film. Il paraît donc nécessaire d'étudier le système complet "ménisque + film" comme l'a suggéré P. Pieranski pour la première fois dans la référence [37], plutôt que de considérer le film comme un système isolé. Ce point de vue a permis d'étudier la thermodynamique des films smectiques et de mieux comprendre leurs propriétés statiques. Nous détaillerons d'ailleurs dans le chapitre suivant la structure et les propriétés mécaniques de ces films.

1.2 Pourquoi étudier les films smectiques ?

1.2.1 Transitions de phases

L'étude des films de savon, commencée depuis des siècles (stabilité, amincissement...), est encore un sujet très actif [3]. Dans les années 70, cette étude a été transposée aux films de cristaux liquides thermotropes d'abord par J.E. Proust [40, 41], puis par B. Meyer, R. Pindak, N. Clark et C. Young [56]. Depuis, l'intérêt pour ces films n'a pas cessé de se renforcer. Une des raisons de cet engouement est qu'ils permettent d'étudier le rôle du confinement et des effets d'épaisseur sur les diagrammes de phases. Des mesures de microcalorimétrie [7] et de viscoélasticité [18, 1, 38] révèlent, par exemple, que les transitions de phases sont affectées par la présence des surfaces libres. On note généralement une augmentation des températures de transition lorsque l'épaisseur des films diminue. Des effets de cristallisation en surface sont aussi fréquemment observés. Ces propriétés sont dues au fait que les surfaces libres imposent un ordre différent de celui des couches internes.

Plus précisément, les couches de surface ont tendance à être plus ordonnées que les couches internes, ce qui explique les transitions d'amincissement observées dans des matériaux très divers [34]. Les films smectiques restent en effet stables à des températures plus élevées que celles correspondant au domaine d'existence de la phase smectique en volume. En plaçant un film assez fin (typiquement d'une trentaine de couches) dans un four bien régulé, et en augmentant la température lentement, on constate qu'il reste stable jusqu'à une température $T(N)$ qui dépend de son épaisseur N (plus précisément N est le nombre de couches dans le film). À cette température, le film s'amincit spontanément d'une ou plusieurs couches. On obtient alors un film plus fin, de nouveau stable jusqu'à une autre température plus élevée, où le film s'amincit à nouveau. On observe ainsi une succession d'amincissements au fur et à mesure que l'on chauffe. Une approche champ moyen du type Landau–Ginzburg–

de Gennes [42, 39, 36, 10] permet d'expliquer l'apparition de ces transitions d'amincissement successives en chauffant grâce à l'augmentation de l'ordre smectique au niveau des surfaces. Précisons que pendant ce travail de thèse, nous ne nous sommes pas intéressés aux problèmes de transitions de phases ; nous avons travaillé à température fixe, en phase smectique loin de la température de transition smectique-nématique.

1.2.2 Propriétés mécaniques : exemple

Les films smectiques ne constituent pas seulement des systèmes modèle pour étudier le rôle du confinement sur les transitions de phases. Ils sont aussi très stables, ce qui permet de les considérer comme des systèmes mécaniques modèle. De nombreux travaux ont donc porté sur leurs propriétés mécaniques ; tous ont montré la nécessité d'étudier le système complet "ménisque + film". C'est le cas, par exemple, lorsque l'on cherche à mesurer la tension des films smectiques.

Mesure de la tension des films smectiques

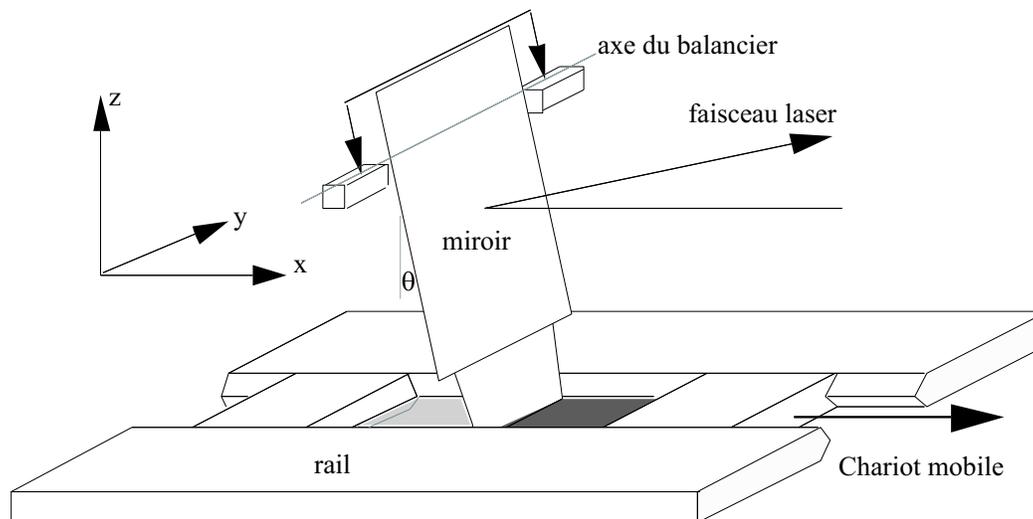


FIG. 1.4 – Dispositif pour mesurer la tension d'un film [37].

P. Pieranski et coll. ont proposé une mesure directe de la tension des films smectiques [37]. Elle consiste à mesurer la force qu'exerce un film sur une lame (figure 1.4) qui est fixée à un pendule et sépare le film en deux régions d'épaisseurs différentes (une des deux régions peut être d'épaisseur nulle, c'est-à-dire sans film). La différence de tension des films écarte le pendule de la position verticale, tandis que son poids exerce une force de rappel. Les auteurs ont d'abord constaté que la tension du film τ était toujours voisine du double de la tension de surface γ entre le smectique et l'air, et qu'elle variait très légèrement avec l'épaisseur du film de façon linéaire :

$$\tau = \tau_0 + aN \quad (1.1)$$

avec $\tau_0 = 57,8 \text{ dyn/cm} \approx 2\gamma$ et $a = 7,61 \cdot 10^{-4} \text{ dyn/cm}$.

Comme nous le verrons plus tard, cette augmentation de la tension est due au ménisque. C'est la raison pour laquelle nous ne parlerons jamais séparément du film et de son ménisque, car les deux sont indissociables, un point de vue que nous défendrons tout au long de ce travail de thèse.

Soulignons que d'autres techniques ont permis de déterminer la tension du film. Il suffit par exemple de mesurer la surpression ΔP à l'intérieur d'une bulle smectique de rayon de courbure R . La tension est cette fois donnée par la Loi de Laplace $\tau = R\Delta P/2$ [28, 49]. Une autre technique consiste à mesurer le rayon de courbure R d'un fil très souple (en soie) tendu par un poids, de tension $\sigma = mg$; l'équilibre mécanique impose alors $\tau = \sigma/R$ [24, 25]. On peut enfin faire vibrer un film et mesurer les fréquences de résonance de ses modes propres [27, 21, 20].

1.2.3 Étude des défauts : dislocations coin

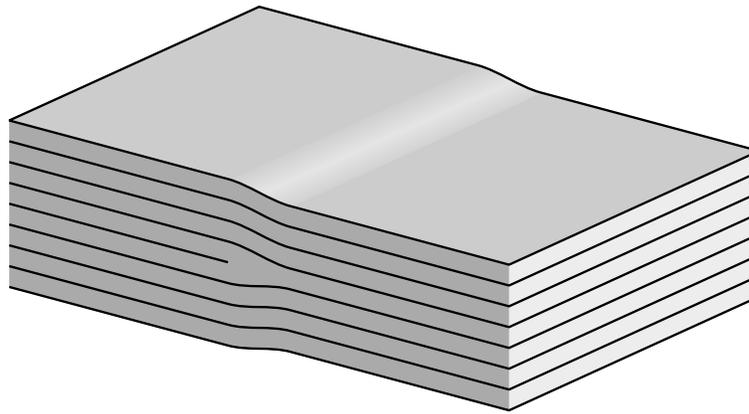


FIG. 1.5 – Schéma d'une dislocation coin élémentaire (de vecteur de Burgers $b = d$) dans un film [34].

Un autre atout des films smectiques qui nous a aussi intéressé pendant cette thèse, est que leur observation en réflexion permet d'étudier facilement les défauts caractéristiques de leur structure lamellaire que sont les dislocations coin. Dans un film libre, une dislocation coin sépare deux régions du film d'épaisseurs différentes (figure 1.5). Le vecteur de Burgers qui la caractérise est normal aux couches. Sa norme, $b = kd$ (où d est l'épaisseur d'une couche), représente la différence d'épaisseur de part et d'autre de la dislocation. Dans les films smectiques, les dislocations sont repoussées par les surfaces libres et sont localisées au centre du film [23, 54].

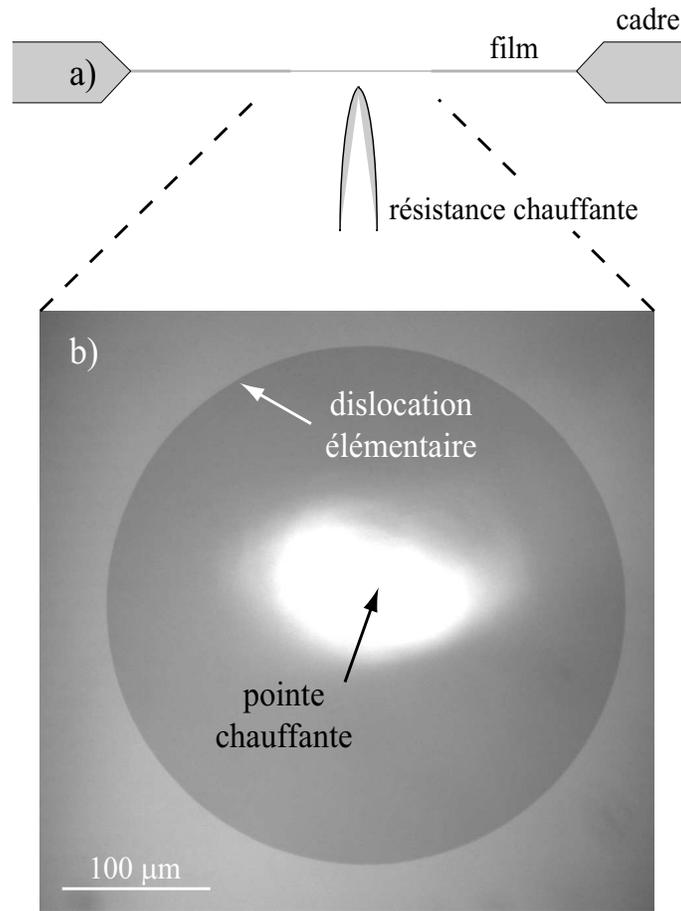


FIG. 1.6 – a) Schéma du dispositif de nucléation d’une boucle de dislocation avec la pointe chauffante. b) Boucle de dislocation nucléée grâce à la pointe chauffante; le film à l’intérieur de la boucle possède une couche de moins que la région à l’extérieur [34].

Une technique développée par Jean-Christophe Gémard et coll. [15], permet de nucléer une boucle de dislocation isolée dans un film d’épaisseur uniforme (photo 1.6b). Cette technique consiste à chauffer localement le film pendant un court instant (quelques ms) juste au dessus de sa température d’amincissement à l’aide d’une pointe chauffante constituée d’un fil conducteur de faible diamètre (schéma 1.6a).

L’étude de ces boucles de dislocation a permis de caractériser leurs propriétés. La mesure de leur tension de ligne, notée E , a été réalisée en analysant leur forme dans un film vertical [14, 57]; quant à leur mobilité, elle a été obtenue en étudiant la dynamique de croissance des boucles dans les films horizontaux, comme détaillé dans le chapitre 3 de cette partie.

Nous allons maintenant décrire le dispositif expérimental qui a été utilisé au laboratoire avant cette thèse pour étudier les propriétés statiques des films (décrites dans le chapitre 2) puis la dynamique des dislocations (chapitre 3). Ce dispositif est aussi celui que nous avons nous-même utilisé pour caractériser la dissipation dans le ménisque en régime quasi-statique. Cette expérience sera décrite en détail dans la partie II.

1.3 Techniques et dispositifs expérimentaux

1.3.1 Formation et observation des films

Obtention des films smectiques

Un film peut être facilement obtenu par étirement sur un cadre d'une goutte de cristal liquide dans sa phase smectique. Le cadre utilisé est formé d'une très fine lame de métal, d'épaisseur 0,1 mm, percée d'un trou circulaire. Ce type de cadre est utilisé depuis longtemps pour tendre des films smectiques libres [33]. Pour tendre un film sur ce cadre, on utilise une autre plaque métallique enduite d'une petite quantité de cristal liquide dans sa phase smectique. On étale alors lentement le cristal liquide comme "on beurre une tartine" (figure 1.7) sur toute la surface du cadre.

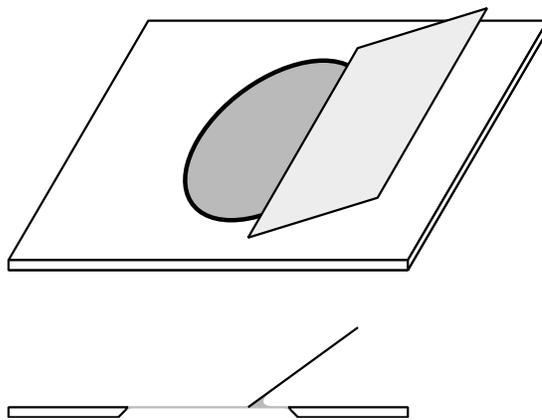


FIG. 1.7 – Étirement d'un film sur un cadre circulaire à l'aide d'une lame enduite de cristal liquide [34].

Le film obtenu immédiatement après l'étirement n'est pas à l'équilibre et son épaisseur n'est pas homogène sur toute sa surface. Il présente souvent de nombreuses dislocations coin séparant des domaines d'épaisseurs différentes. On peut alors observer des "textures en arches" (figure 1.8) qui évoluent très lentement. Cependant toutes les dislocations coin ont tendance à disparaître au cours du temps : certaines boucles de dislocation s'effondrent, d'autres rejoignent le ménisque. Cette phase de stabilisation est de durée très variable, allant de quelques heures dans les films "fins" à plusieurs jours dans certains films très épais. On obtient alors un film d'épaisseur parfaitement homogène sur toute sa surface. Cette épaisseur finale est très difficile à contrôler. Elle dépend de la façon dont on a étiré le film (notamment de la vitesse de tirage) et des caractéristiques du ménisque formé (comme son volume). Ainsi, plus la vitesse de tirage est élevée, plus le film a tendance à être fin. Un gros volume de cristal liquide formera un gros ménisque qui aura plutôt tendance à favoriser les films épais. Mais ces résultats sont empiriques et difficilement reproductibles, d'où la nécessité de mesurer l'épaisseur après chaque tirage. Remarquons que les cadres circulaires

sont formés d'une seule pièce (contrairement au cadre déformable, figure 1.4), ce qui limite les fuites de cristal liquide.

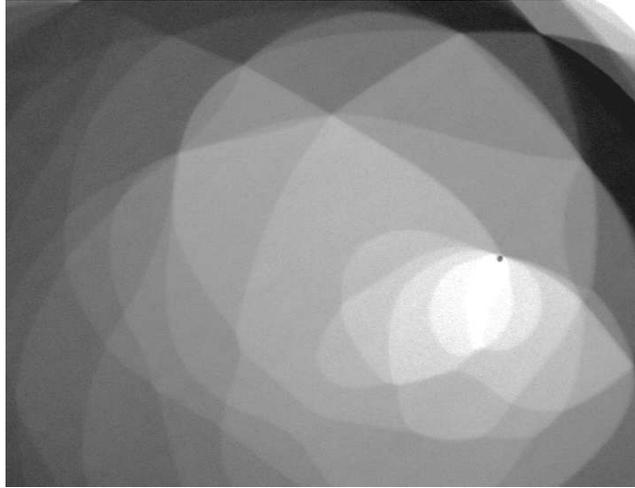


FIG. 1.8 – Photographie d'une "texture en arches". Chaque région définie par un niveau de gris possède une épaisseur différente. Dans la plupart des cas, deux régions adjacentes présentent une différence d'épaisseur d'une seule couche (3nm) [34].

Dispositif expérimental

Le cadre et le film sont placés dans une enceinte en cuivre (figure 1.9) régulée en température à $0,1^\circ\text{C}$ près, par des résistances chauffantes placées dans la masse métallique. Une ouverture sur le dessus est nécessaire pour permettre l'observation. L'objectif du microscope, muni d'un cache adapté, permet de fermer l'enceinte et de limiter la convection, source de gradients thermiques et de courants d'air néfastes pour le film. Le cadre supportant le ménisque est relié à une platine de déplacement X-Y qui permet de déplacer le film à l'intérieur du four. Ainsi, malgré un champ d'observation assez limité, on peut visionner avec un microscope en réflexion n'importe quelle région désirée du film. On peut aussi positionner le film par rapport à la pointe chauffante afin de choisir la région que l'on veut surchauffer localement, dont le fonctionnement a été détaillé dans la section 1.2.3.

L'observation se fait en réflexion ; l'image est formée sur une caméra CCD. La caméra qui est utilisée le plus fréquemment est une caméra numérique refroidie de grande résolution (Hamamatsu Lorca : 1024×1024 pixels et 4096 niveaux de gris). On peut ainsi mesurer précisément l'intensité lumineuse du film en chacun de ses points. Elle est donc parfaite pour les utilisations les plus courantes : observation des dislocations coin, mesure d'épaisseur du film, observation et mesure du profil du ménisque. Enfin, la source de lumière qui est utilisée généralement pour les observations est une lampe halogène basse tension de microscope qui fournit une lumière blanche. On peut ainsi observer la couleur du film. On peut rajouter sur le faisceau un des deux filtres interférentiels de longueur d'onde $\lambda = 546\text{ nm}$

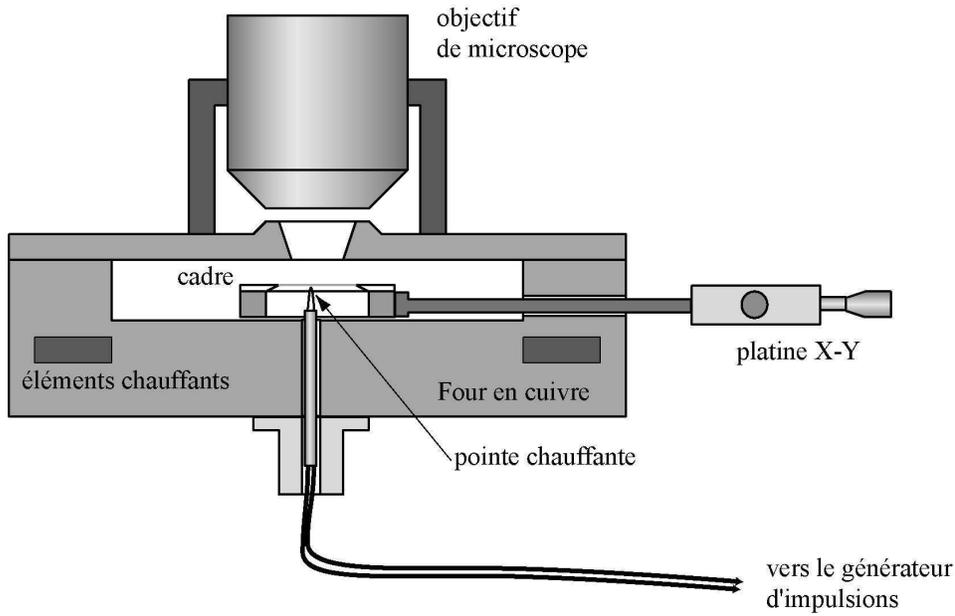


FIG. 1.9 – Schéma du four. Une pointe chauffante, positionnée juste sous le film, peut se déplacer verticalement à l'aide d'une vis. Le cadre supportant le film peut être déplacé à l'intérieur du four grâce à une platine micrométrique x-y [34].

et $\lambda = 632,8 \text{ nm}$, afin d'obtenir une lumière monochromatique. Cela permet d'observer les variations d'épaisseur du film ou du ménisque (surtout dans les films épais).

1.3.2 Mesure d'épaisseur

L'épaisseur est une des caractéristiques primordiales d'un film smectique puisque ses propriétés dépendent du nombre de couches. Il est donc important de pouvoir mesurer précisément l'épaisseur d'un film. Une précision d'environ 1 nm est suffisante car elle permet de connaître exactement le nombre de couches, sans pour autant chercher à mesurer les variations d'épaisseur des couches elles-mêmes. Cette précision s'obtient assez facilement en mesurant la réflectivité d'un film.

Réflectivité d'un film

Un film smectique ayant deux surfaces parallèles séparées par une faible épaisseur (de l'ordre de la longueur d'onde de la lumière), se comporte comme une lame mince. La réflectivité en incidence normale R_n d'un film d'épaisseur H pour une longueur d'onde λ est donnée par :

$$R_n(\lambda) = \frac{I_r(\lambda)}{I_i(\lambda)} = \frac{\sin^2\left(\frac{2\pi nH}{\lambda}\right)}{A + \sin^2\left(\frac{2\pi nH}{\lambda}\right)} \quad (1.2)$$

où I_i est l'intensité lumineuse incidente, I_r l'intensité lumineuse réfléchie par le film, n l'indice de réfraction ordinaire du cristal liquide et A une constante reliée à n :

$$A = \frac{4n^2}{(n^2 - 1)^2} \quad (1.3)$$

La réflectivité du film dépendant de la longueur d'onde, les films d'épaisseur moyenne (entre 30 et environ 300 couches), éclairés en lumière blanche, paraissent colorés. Une comparaison des couleurs obtenues avec les teintes de Newton peut donner une idée assez précise de cette épaisseur. Cependant la seule observation de ces teintes ne permet pas en général d'établir l'ordre d'interférences avec certitude. De plus cela n'est pas applicable pour les films très fins qui sont gris et les films épais qui semblent blanc (blanc d'ordre supérieur). La réalisation du spectre de réflectivité d'un film est donc nécessaire.

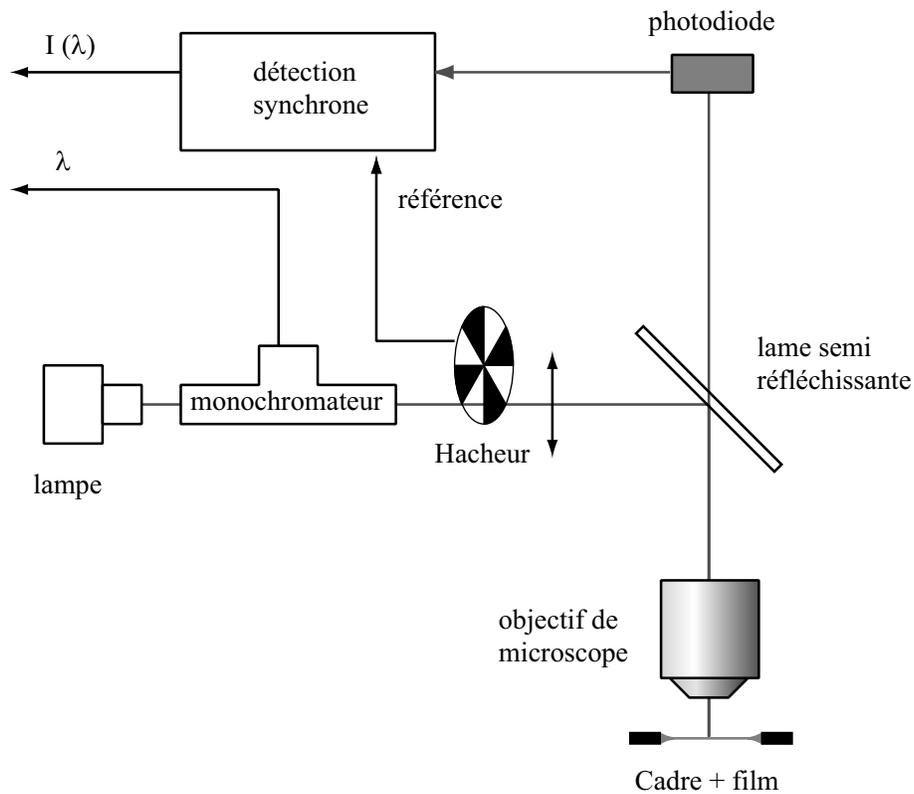


FIG. 1.10 – Schéma du dispositif de mesure d'épaisseur du film. La lumière émise par une lampe halogène est filtrée par un monochromateur et éclaire le film sous incidence normale après avoir traversé un hacheur. L'intensité lumineuse réfléchie par le film est mesurée par une photodiode en liaison avec une détection synchrone qui utilise comme signal de référence la fréquence du hacheur [34].

Spectre de réflectivité

Le dispositif décrit sur la figure 1.10 permet de mesurer précisément l'intensité $I_r(\lambda)$ réfléchi par le film en fonction de la longueur d'onde. La lumière incidente issue d'une lampe halogène traverse un monochromateur, puis un hacheur optique, avant d'arriver sous incidence normale sur le film par l'intermédiaire de l'objectif du microscope. L'intensité de la lumière réfléchi est mesurée par une photodiode au moyen d'une détection synchrone qui a pour référence la fréquence du hacheur.

Pour obtenir le spectre de la lumière incidente, on remplace le film par un miroir étalon de réflectivité connue et on mesure l'intensité lumineuse réfléchi grâce au même dispositif. Le spectre $I_i(\lambda)$ est alors obtenue en divisant le spectre mesuré par la réflectivité du miroir. Le spectre de réflectivité d'un film très épais possède de nombreux maxima, ces valeurs maximales permettent d'obtenir $A(\lambda)$ et de mesurer les faibles variations de l'indice de réfraction n avec la longueur d'onde λ . Une fois l'indice n déterminé avec précision, l'ajustement par la relation 1.2 du spectre de réflectivité (un exemple est donné sur la figure 1.11) permet d'obtenir l'épaisseur H du film avec une grande précision supérieure à 1%. Cela permet donc de déterminer sans ambiguïté le nombre de couches $N \approx H/d$ pour des films fins (jusqu'à 30 couches) en prenant comme épaisseur d'une couche l'épaisseur d'une couche smectique non contrainte $d = 3,18$ nm. Pour les films très épais, des erreurs de quelques couches sont possibles.

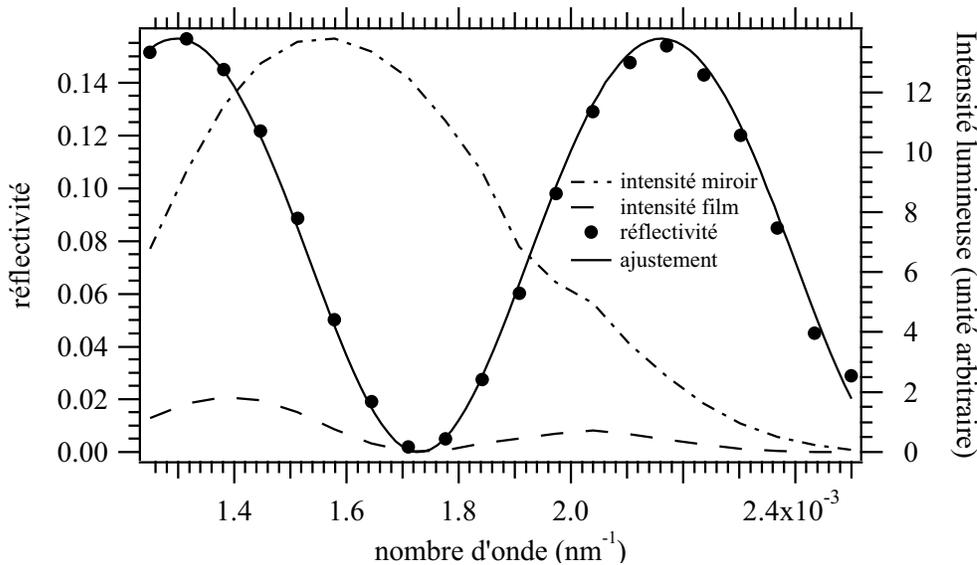


FIG. 1.11 – Courbe de réflectivité d'un film d'épaisseur 380,5 nm soit 127 couches (indice de réfraction $n \sim 1,52$) [34].

Remarquons que cette méthode précise est assez lente à mettre en oeuvre. Pour des films fins d'épaisseur inférieure à 200 couches, une technique plus rapide et de précision suffisante, consiste à mesurer la réflectivité du film pour une certaine longueur d'onde λ , en utilisant un filtre interférentiel et la caméra refroidie de grande dynamique (12 bits). À ce stade,

l'épaisseur est connue à un ordre d'interférence près qui peut être déterminé (dans cette gamme d'épaisseur) en faisant la même mesure à une autre longueur d'onde.

Chapitre 2

Propriétés statiques des films smectiques

Sommaire

2.1	Structure et profil du ménisque	28
2.1.1	Structure du ménisque	28
2.1.2	Profil du ménisque et angle de raccordement	29
2.2	Thermodynamique d'un film smectique	31
2.2.1	Étude énergétique	31
2.2.2	Équilibre mécanique	33
2.2.3	Angle de raccordement θ_m	33
2.2.4	Tension du film τ	34
2.3	Origine de la pression de disjonction	35
2.3.1	Théorie	35
2.3.2	Énergie d'interaction $f(H)$	36
2.3.3	Pression de disjonction Π_d	36

Les études du système global "film + ménisque" réalisés pendant la thèse de Frédéric Picano, ont permis de mieux comprendre la grande stabilité des films smectiques. Ces travaux que nous allons résumer dans ce chapitre ont montré l'importance du ménisque en tant que réservoir de particules qui fixe à l'équilibre la pression à l'intérieur du film.

Le plan du chapitre est donc le suivant. Après avoir décrit la structure et la forme du ménisque [15, 35], nous présenterons les propriétés thermodynamiques des films smectiques. Nous préciserons ensuite la notion de pression de disjonction et nous montrerons que les effets de surface dans les films fins peuvent être décrits par une approche de type Landau-Ginzburg-de Gennes [39, 36].

2.1 Structure et profil du ménisque

2.1.1 Structure du ménisque

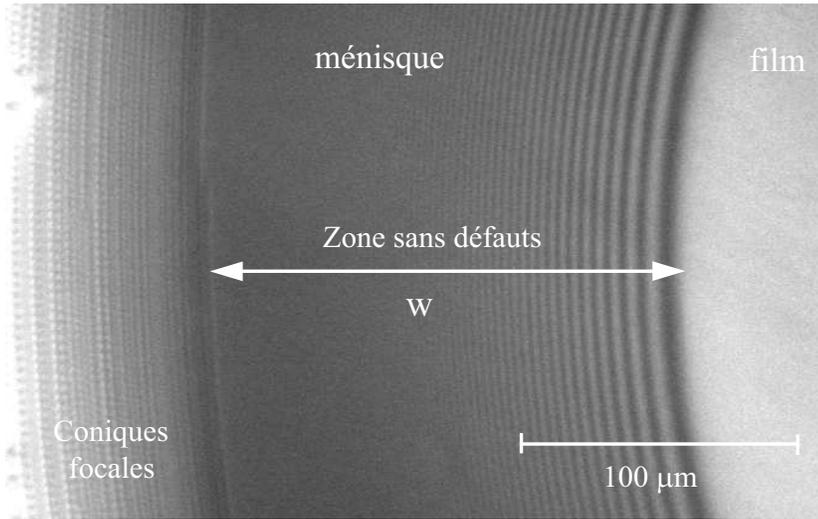


FIG. 2.1 – Photographie du ménisque prise en éclairant le film à la fois en réflexion et en transmission [35, 34]. On distingue trois zones : le film, sur la droite et le ménisque sur la gauche avec une partie fine sans défauts apparents, d’extension w , et une partie épaisse dans laquelle des coniques focales sont visibles. Notons que les franges d’interférence qui apparaissent dans la zone fine peuvent être utilisées pour déterminer le profil du ménisque.

Le ménisque est une zone où le film s’épaissit progressivement : il permet de relier le film plan au cadre. Il contient donc une succession de dislocations. À l’équilibre, deux régions peuvent être distinguées dans le ménisque. Elles apparaissent clairement sur la photographie 2.1.

- Une première zone qui borde le film sans défauts apparents. Dans cette zone d’extension w , les couches sont parfaitement organisées et forment une série de dislocations élémentaires localisées dans le plan médian [35]. Dans cette zone, les champs de déformation des dislocations se recouvrent et la surface libre du ménisque peut donc être considérée comme ”lisse”. Cette zone peut ainsi être vue comme une lame en coin d’indice n ; lorsqu’elle est éclairée en réflexion, on observe des franges d’interférences (figure 2.1). Les franges se resserrent au fur et à mesure que l’on s’éloigne du film, ce qui signifie que l’angle que font les surfaces libres du ménisque avec l’horizontale augmente de plus en plus lorsqu’on se rapproche du cadre.
- La seconde zone commence à l’endroit où les dislocations se groupent pour former des dislocations géantes. Ces dernières sont favorables du point de vue énergétique quand l’angle entre les surfaces libres devient important [35]. L’expérience, comme la théorie, montrent [4] que ces dislocations géantes sont instables par rapport à la formation de domaines focaux [5]. Ces derniers sont d’ailleurs parfaitement visibles sur la photo

2.1. Dans cette région épaisse du ménisque, les couches smectiques sont fortement désorientées en volume.

2.1.2 Profil du ménisque et angle de raccordement

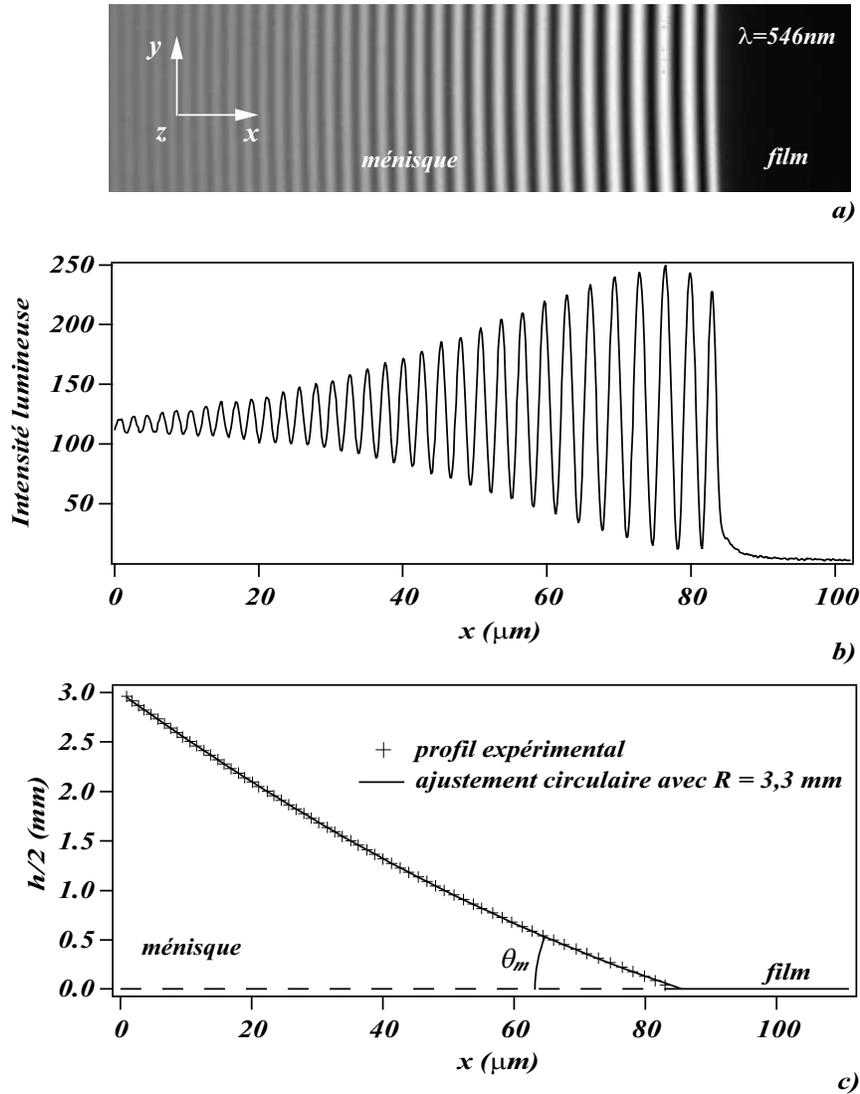


FIG. 2.2 – a) Photo du ménisque observé en réflexion en lumière monochromatique b) Intensité lumineuse des franges d'interférences c) Profil du ménisque. Lorsque l'épaisseur augmente les franges se resserrent et le contraste diminue [34, 36].

Comme nous venons de le souligner, des franges d'interférence sont visibles sur les observations avec un éclairage monochromatique en réflexion de la zone orientée du ménisque au bord du film (photo 2.2a). Le repérage de ces franges permet de déterminer le profil du ménisque. Deux extrema successifs du profil d'intensité (graphique 2.2b) correspondent en effet à une différence d'épaisseur de $\lambda/4n$, d'après l'équation 1.2. Cette analyse a mis en évidence deux propriétés importantes du ménisque :

- Le ménisque a un **profil circulaire**. Les expériences montrent en effet que le profil du ménisque est parfaitement ajusté (graphique 2.2c) par un cercle de rayon R [15, 36]. La valeur de R est identique dans tout le ménisque, mais dépend de la préparation du film et particulièrement du volume du ménisque. La courbure de l'interface avec l'air est aussi différente entre le ménisque (où elle vaut $1/R$) et le film plan (où elle s'annule). Nous verrons dans la suite que cette discontinuité est particulière au smectique. Elle engendre en effet une différence de pression entre le film et l'air que seule l'élasticité des couches du film peut équilibrer. Dans une couche d'eau horizontale qui mouille une paroi verticale [10], une telle discontinuité serait impossible et le profil serait exponentiel, fixé par la gravité. Remarquons d'ailleurs que la force de gravité est négligeable dans les films smectiques horizontaux vis-à-vis des forces capillaires. L'épaisseur du ménisque est en effet très petite devant la longueur capillaire, $l_g = (\gamma/\rho g)^{1/2}$, qui vaut 1,6 mm.
- Dans les films très minces, le ménisque et le film ne se raccordent plus tangentielle-ment. L'angle de raccordement "macroscopique" θ_m est obtenu en extrapolant le profil circulaire du ménisque jusqu'à la surface du film (graphique 2.2c). **Cet angle diffère de zéro dans les films très fins**, d'une dizaine de couches ou moins et il augmente lorsque l'épaisseur du film diminue (figure 2.3). Nous verrons plus loin que cet angle provient des interactions attractives entre les surfaces libres du film ; il a aussi été observé dans les films de savon [52].

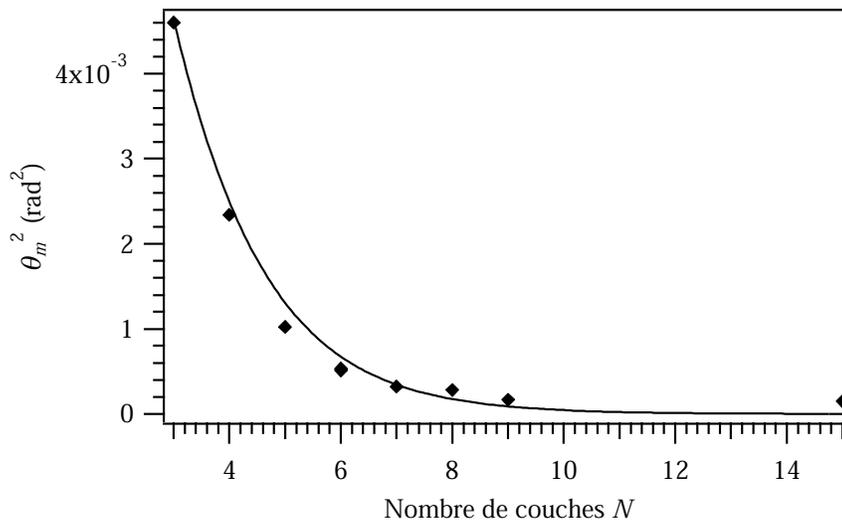


FIG. 2.3 – Mesure de l'angle macroscopique de raccordement θ_m en fonction du nombre de couches N . La courbe en trait plein correspond à l'angle de raccordement calculé à partir du modèle décrit dans la section 2.3 [34].

2.2 Thermodynamique d'un film smectique

Une étude thermodynamique du ménisque a permis de comprendre les propriétés mentionnées précédemment [36].

2.2.1 Étude énergétique

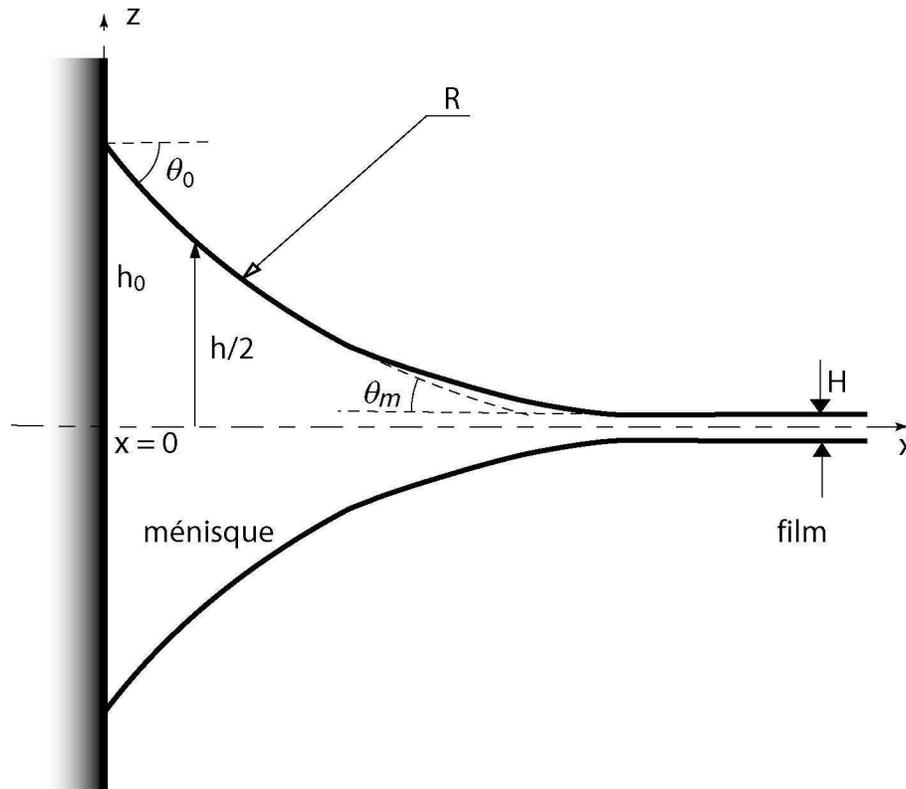


FIG. 2.4 – Schéma du ménisque et notations. Au niveau du raccordement avec le film, le profil du ménisque réel s'éloigne du profil circulaire représenté en pointillé. L'intersection du profil circulaire (extrapolé) avec le plan de la surface du film (en $z = H/2$) permet de définir l'angle de raccordement θ_m [34].

Pour trouver le profil du ménisque et les conditions d'équilibre mécanique du film, il faut minimiser l'énergie totale du système "film + ménisque". Les caractéristiques de ce système sont représentées sur la figure 2.4. Le plan du film est repéré par les axes x et y ; z représente la normale au film. h est l'épaisseur du ménisque et H celle du film. h_0 est la valeur de h au niveau du cadre et θ_0 est l'angle que fait la surface du ménisque avec l'horizontale au niveau du cadre. Le film est supposé infini dans la direction y .

Considérons comme système une bande de longueur unité dans la direction y , de volume V . Par la suite, toutes les grandeurs énergétiques seront calculées par unité de longueur dans cette direction, en prenant comme référence l'énergie de la même quantité de smectique, sans défauts, contenue dans un échantillon infini non contraint et à la pression atmosphérique

P_{air} . L'énergie totale du système "film + ménisque", qui peut se décomposer en plusieurs parties, s'écrit alors :

$$F[h(x)] = \int dx \left[2\gamma \sqrt{1 + \left(\frac{d(h/2)}{dx}\right)^2} + \Delta P h(x) + f[h(x)] - E[h(x)] \frac{1}{b} \frac{dh}{dx} \right] \quad (2.1)$$

où nous reconnaissons, dans l'ordre, les termes suivants :

- l'énergie des surfaces smectique-air, proportionnelle à la tension de surface γ et à l'aire de la surface ;
- un terme correspondant au travail de la pression, où $\Delta P = P_{air} - P_{smectique}$ est la différence de pression entre l'air et la phase smectique. Notons que ΔP peut s'interpréter comme le coefficient de Lagrange qu'il faut introduire lorsqu'on minimise l'énergie libre à volume total du cristal liquide constant. Remarquons aussi qu'à l'équilibre, la pression est la même dans le ménisque et dans le film (car rien ne les sépare). En revanche le système "film + ménisque" n'a, a priori, aucune raison d'être à la pression atmosphérique ;
- un excès d'énergie par unité de surface $f(h)$ due à l'épaisseur finie du système h et aux interactions entre les surfaces libres. Avec notre choix de la référence d'énergie, $f(h)$ tend vers zéro quand h tend vers l'infini dans un système non contraint ;
- l'énergie des dislocations présentes dans le ménisque (les dislocations sont supposées élémentaires $b = d$). Elle est égale au produit de l'énergie de ligne d'une dislocation $E(h)$ par leur densité.

La minimisation de cette fonctionnelle par rapport à h donne immédiatement :

$$\Delta P + \frac{df}{dh} - \gamma \frac{\frac{d^2(h/2)}{dx^2}}{\left[1 + \left(\frac{d(h/2)}{dx}\right)^2\right]^{3/2}} = 0 \quad (2.2)$$

Soulignons que l'énergie des dislocations n'intervient pas dans cette équation qui peut encore s'écrire sous la forme équivalente :

$$\Delta P - \Pi_d - \gamma/R = 0 \quad (2.3)$$

où R est le rayon de courbure local de la surface et Π_d une quantité homogène à une pression, nommée pression de disjonction [3, 44] :

$$\Pi_d = -\frac{df}{dh} \quad (2.4)$$

2.2.2 Équilibre mécanique

L'équation 2.3 est valable à la fois dans le ménisque et dans le film. Puisque $f(h)$ décroît très rapidement lorsque l'épaisseur h augmente, $f(h)$ est donc quasiment nul dans cette région. Cette équation n'est alors rien d'autre que la loi de Laplace qui s'écrit comme dans les liquides ordinaires :

$$\Delta P = \gamma/R \quad (\text{dans le ménisque}) \quad (2.5)$$

Ce comportement du smectique dans le ménisque est dû à la présence de dislocations coin "mobiles" qui permettent de relaxer les contraintes élastiques. Dans cette partie du ménisque, le rayon de courbure R est constant, le profil du ménisque est donc circulaire, ce qui est observé expérimentalement.

En revanche, dans le film, le rayon de courbure R est infini d'où :

$$\Delta P = \Pi_d \quad (\text{dans le film}) \quad (2.6)$$

Cette équation traduit l'équilibre mécanique du film. La pression de disjonction compense la pression capillaire ΔP qui est fixée par le ménisque. D'après la relation 2.5, le film est en dépression par rapport à l'extérieur. Nous verrons dans la suite que l'élasticité des couches smectiques en volume est l'origine principale de cette pression de disjonction. Remarquons que dans les films de savon épais, il n'existe pas d'élasticité en volume (en général) pour compenser la pression capillaire, et le film s'amincit continûment jusqu'au moment où il devient assez mince pour que les interactions électrostatiques répulsives entre les deux monocouches de surface permettent d'équilibrer la différence de pression ("film noir" de Newton). Nous verrons aussi que dans les films smectiques fins, il faut tenir compte, en plus de l'élasticité des couches en volume, des interactions répulsives entre les surfaces libres.

2.2.3 Angle de raccordement θ_m

Il est clair que le profil réel $h(x)$ n'a pas de point anguleux, le raccordement entre le film et le ménisque se faisant tangentiellement à l'échelle des couches. Cependant cette zone de raccordement est trop petite pour être résolue au microscope. L'angle θ_m que nous mesurons expérimentalement est donc en réalité l'angle que fait l'extrapolation du profil circulaire du ménisque avec le plan du film. Il peut donc être obtenu en intégrant une fois l'équation 2.2

$$\Delta P h(x) + f[h(x)] + 2\gamma \cos \theta = c \quad (\text{dans le ménisque}) \quad (2.7)$$

où $\theta(x)$, défini par $\tan \theta(x) = d(h/2)/dx$, représente l'angle que fait la surface libre avec l'horizontale au point d'abscisse x et c une constante (dont on verra plus tard qu'elle est égale à la tension du film).

Loin dans le ménisque, $f(h) = 0$ et cette équation définit un profil circulaire.

En revanche, dans le film, $\theta = 0$ et cette équation devient :

$$\Delta PH + f(H) + 2\gamma = c \quad (\text{dans le film}) \quad (2.8)$$

En extrapolant le profil circulaire jusqu'à la surface du film (en $h = H$), on obtient par définition de θ_m :

$$\Delta PH + 2\gamma \cos \theta_m = c \quad (2.9)$$

En regroupant ces deux équations, on élimine la constante d'intégration c , et on en déduit :

$$f(H) = 2\gamma(\cos \theta_m - 1) \approx -\gamma\theta_m^2 \quad (2.10)$$

La mesure de l'angle de raccordement θ_m permet donc de d'obtenir directement l'énergie d'interaction entre les surfaces $f(h)$. Les données expérimentales montrent que θ_m est toujours très petit (figure 2.3).

2.2.4 Tension du film τ

Considérons un élément de surface du film. La tension du film est, par définition, la force par unité de longueur qu'il faut exercer sur le bord de cet élément de surface pour le maintenir à l'équilibre. C'est aussi la force qu'exerce cet élément sur l'élément de surface voisin. Enfin, c'est encore la force par unité de longueur qu'il faut exercer sur le bord du cadre pour le maintenir à l'équilibre. Avec les notations de la figure 2.4, cette force vaut :

$$\tau(H) = 2\gamma \cos \theta_0 + \Delta Ph_0 \quad (2.11)$$

Le profil du ménisque (extrapolé jusqu'au plan du film) étant circulaire, de rayon de courbure $R = \gamma/\Delta P$, on a par construction $h_0 = H + 2R(\cos \theta_m - \cos \theta_0)$, ce qui donne après substitution dans l'équation précédente et en utilisant l'équation 2.10 :

$$\tau(H) = 2\gamma + \Delta PH + f(H) \quad (2.12)$$

La tension du film n'est donc rien d'autre que la constante c de l'intégrale première 2.7. Cette formule montre que la tension du film est légèrement différente de 2γ . Elle dépend en particulier de $f(H)$ (donc de l'angle de raccordement θ_m) et contient un terme de pression proportionnel à l'épaisseur du film. Ces dernières contributions restent cependant petites devant l'énergie de surface, à l'équilibre. En effet $2\gamma \sim 60$ dyn/cm alors que $\Delta PH \sim 0,025$ dyn/cm en prenant $H = 1 \mu\text{m}$ et $\Delta P \sim 250$ dyn/cm² (correspondant à $R \sim 1$ mm). Il en est de même pour $f(H)$, qui représente au plus 0,2% de la tension totale du film (lorsque $N = 3$, voir figure 2.3). Remarquons que c'est d'ailleurs le terme proportionnel à l'épaisseur du film ΔPH qui est mis en évidence dans l'expérience du balancier décrite dans la section 1.2.2, car dans ces conditions le terme $f(H)$ est complètement négligeable.

2.3 Origine de la pression de disjonction

2.3.1 Théorie

Une approche de type Landau-Ginzburg-de Gennes [36, 10, 42] montre que la pression de disjonction Π_d (qui permet d'équilibrer la différence de pression ΔP entre l'intérieur et l'extérieur du film) est principalement fixée par l'élasticité des couches, tandis que l'angle de raccordement θ_m résulte d'un renforcement de l'ordre smectique en surface. Nous allons présenter quelques éléments de cette théorie [36] où les interactions de van der Waals entre les surfaces peuvent être négligées.

L'ordre smectique dans le film est décrit par le paramètre d'ordre complexe $\Psi e^{i\phi}$ où le module Ψ décrit la modulation de densité dans la direction normale aux couches (z) tandis que la phase ϕ décrit le déplacement des couches avec u leur position : $\phi = 2\pi u/d$. Dans le formalisme de Landau-Ginzburg-de Gennes, l'excès d'énergie $f(H)$ d'un film d'épaisseur H s'écrit [36] :

$$f(H) = \int_{-H/2}^{H/2} \left[-\alpha\psi^2 + \dots + \frac{1}{2}L \left(\frac{d\psi}{dz} \right)^2 + \frac{1}{2}B \left(\frac{du}{dz} \right)^2 \right] dz \quad (2.13)$$

où $\psi = \Psi - \Psi_b$ est l'écart à la valeur moyenne Ψ_b du paramètre d'ordre à l'équilibre en milieu infini pour une température T inférieure à la température de transition T_{NA} smectique - nématique et $\alpha = \alpha_0(T - T_{NA})$ (où $\alpha_0 > 0$). Le dernier terme décrit l'élasticité des couches où B est le module de compressibilité des couches ; et les coefficients α et L permettent de définir une longueur de corrélation de l'ordre smectique ξ :

$$\xi = \sqrt{\frac{L}{-\alpha}} = \xi_0 \sqrt{\frac{T_{NA}}{T_{NA} - T}} \quad (2.14)$$

Pour obtenir l'expression de $f(H)$, il faut d'abord minimiser cette fonctionnelle $f[\psi, u]$:

– La minimisation par rapport à ψ donne l'équation différentielle :

$$\xi^2 \frac{d^2\psi}{dz^2} = 2\psi \quad (2.15)$$

En supposant que l'excès de paramètre d'ordre smectique est fixé à la surface libre : $\psi(-H/2) = \psi(H/2) = \psi_S$ (ψ_S est positif), la solution s'écrit :

$$\psi(z) = \frac{\psi_H}{\cosh(H/\sqrt{2}\xi)} \cosh(z/\sqrt{2}\xi) \quad (2.16)$$

Le paramètre d'ordre décroît donc exponentiellement sur une distance de l'ordre de ξ .

– La minimisation par rapport au déplacement des couches u conduit à une équation bien connue de l'élasticité :

$$B \frac{d^2u}{dz^2} = 0 \quad (2.17)$$

dont l'intégrale donne la contrainte élastique normale aux couches $\sigma_N(H)$ dans un film de N couches d'épaisseur H :

$$B \frac{du}{dz} = B \frac{H - Nd}{Nd} = \sigma_N(H) \quad (2.18)$$

2.3.2 Énergie d'interaction $f(H)$

En tenant compte de ces résultats dans l'expression 2.13, $f(H)$ est obtenue par intégration sachant que f s'annule dans un échantillon infini non contraint :

$$f(H) = \frac{\alpha\xi\psi_S^2}{\sqrt{2}} \left[1 - \tanh\left(\frac{H}{\sqrt{2\xi}}\right) \right] + \frac{\sigma_N(H)^2}{2B} H \quad (2.19)$$

Le premier terme provient des variations spatiales du paramètre d'ordre dans l'épaisseur du film. Il conduit à une interaction attractive entre les deux surfaces. Le second terme correspond à l'énergie élastique de déformation des couches. Comme la phase smectique est très rigide : $B \sim 10^8$ erg/cm², ce terme est négligeable devant l'autre. Ainsi, d'après l'équation 2.10, l'angle de raccordement θ_m ne dépend que des effets de surface :

$$\theta_m^2 = \frac{\alpha\xi\psi_S^2}{\sqrt{2}\gamma} \left[1 - \tanh\left(\frac{H}{\sqrt{2\xi}}\right) \right] \quad (2.20)$$

ce qui est vérifié expérimentalement (figure 2.3).

Remarquons que ces résultats ont été confirmés récemment par Jacquet et Schneider [19, 45] qui ont obtenu la fonction $f(H)$ en mesurant directement la tension du film $\tau(H)$ pour différentes épaisseur du film H . La fonction $f(H)$ est déduite de la relation 2.12 en soustrayant à $\tau(H)$ le terme linéaire $2\gamma + \Delta PH$ obtenu par extrapolation des mesures dans les films épais où $f(H) \approx 0$. Rappelons que toutes les données de Jacquet et Schneider, réalisées avec du 8CB en dessous de 30 °C, peuvent être ajustées par la fonction :

$$f(Nd) = -\frac{K}{(T - T_{NA})^\kappa} \exp\left(-\frac{Nd}{\sqrt{2\xi}}\right) \quad (2.21)$$

avec $K = 2,936$ CGS, $\kappa = 0,316$ et $d/\sqrt{2\xi} = 1,007$. Cette fonction est tracée en pointillé sur la figure 2.5 pour $T = 28$ °C (température utilisée par F. Picano pour les mesures d'angle de contact correspondant aux points expérimentaux indiqués par des croix). Ces deux courbes sont assez proches bien que les techniques utilisées soient très différentes.

2.3.3 Pression de disjonction Π_d

Par définition (équ. 2.4), la pression de disjonction est (au signe près) la dérivée de $f(h)$ par rapport à h . Ce calcul donne en tenant compte du terme élastique qui ne peut pas être négligé :

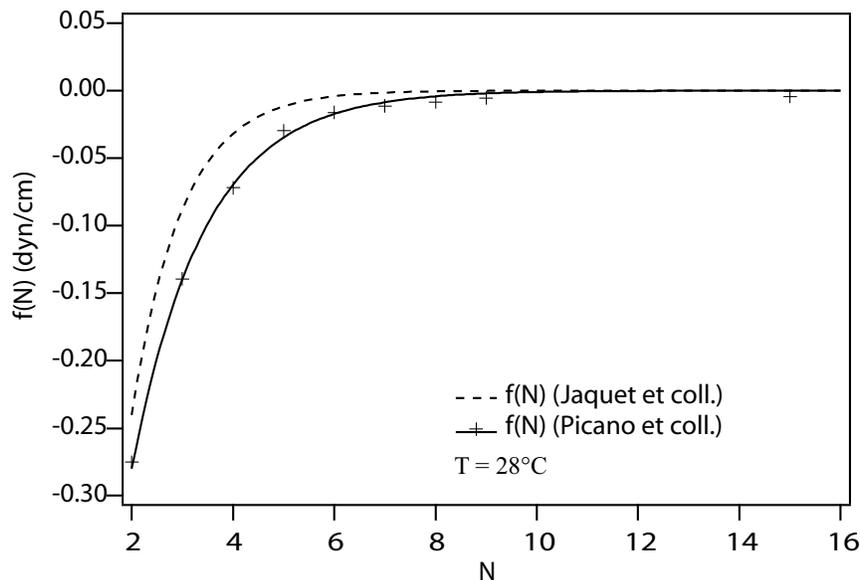


FIG. 2.5 – Énergie d'interaction $f(H)$ en fonction de l'épaisseur du film exprimée en nombres de couches N . La courbe en pointillé correspond aux mesures réalisées par Jaquet et Schneider [19]. Les croix sont les points expérimentaux obtenus par F. Picano et coll. en appliquant la relation 2.10 aux données de la figure 2.3. La courbe en trait plein a été calculée à l'aide de l'équation 2.20. Les paramètres utilisés sont les mêmes que ceux utilisés pour ajuster les données expérimentales de la figure 2.3 [30].

$$\Pi_d = \frac{\alpha\psi_S^2}{2} \left[1 - \tanh^2 \left(\frac{H}{\sqrt{2}\xi} \right) \right] - \sigma_N - \frac{\sigma_N^2}{2B} \quad (2.22)$$

Notons que le terme quadratique en σ_N^2 est négligeable car le système est très rigide (déformation des couches très petite car $\sigma_N \ll B$).

Enfin, l'équilibre mécanique au niveau du film (éq. 2.6) $\Delta P = \Pi_d$, fixe la contrainte élastique $\sigma_N(H)$:

$$\sigma_N = -\Delta P + \frac{\alpha\psi_S^2}{2} \left[1 - \tanh^2 \left(\frac{H}{\sqrt{2}\xi} \right) \right] \quad (2.23)$$

C'est donc la compression élastique des couches ($\sigma_N < 0$) qui permet d'équilibrer la différence de pression imposée par le ménisque, ainsi que les interactions attractives entre les surfaces libres (négligeables dans les films épais). L'élasticité des couches est donc à l'origine de la grande stabilité des films smectiques. Comme nous l'avons déjà remarqué, les films de savon épais n'ont pas cette propriété, c'est la raison pour laquelle la compression capillaire entraîne leur amincissement (équilibrée par les contraintes visqueuses en régime dynamique).

Chapitre 3

Dynamiques des films smectiques

Sommaire

3.1	Mobilité d'une dislocation coin	39
3.1.1	Écoulement autour d'une dislocation : modélisation	39
3.1.2	Effet de confinement	41
3.1.3	Mobilité d'une dislocation dans un film	42
3.2	Dynamique des boucles de dislocation dans un film	44
3.2.1	Observations dans les films épais	44
3.2.2	Interprétation	44
3.2.3	Ralentissement dans les films fins et effet des surfaces	46

3.1 Mobilité d'une dislocation coin

3.1.1 Écoulement autour d'une dislocation : modélisation

Lorsqu'une dislocation de vecteur de Burgers $b = kd$ se déplace à la vitesse v parallèlement aux couches (montée), des molécules qui se déplacent facilement dans une couche sont obligées de changer de couches. Ces écoulements de perméation, surtout localisés au niveau du coeur de la dislocation (qui peut être vu comme un obstacle) dissipent de l'énergie [9]. Ils dépendent du coefficient de perméation λ_p et de la viscosité de cisaillement parallèle aux couches η . Une force de friction visqueuse F_v s'exerce donc sur la dislocation. Elle est a priori proportionnelle à la vitesse v et à la taille de l'obstacle b . Pour cette raison, on a l'habitude de l'écrire sous la forme :

$$F_v = \frac{b}{m}v \quad (3.1)$$

où m est un coefficient caractérisant la mobilité finie d'une dislocation coin en montée. Cette mobilité peut être estimée en résolvant le problème hydrodynamique de l'écoulement

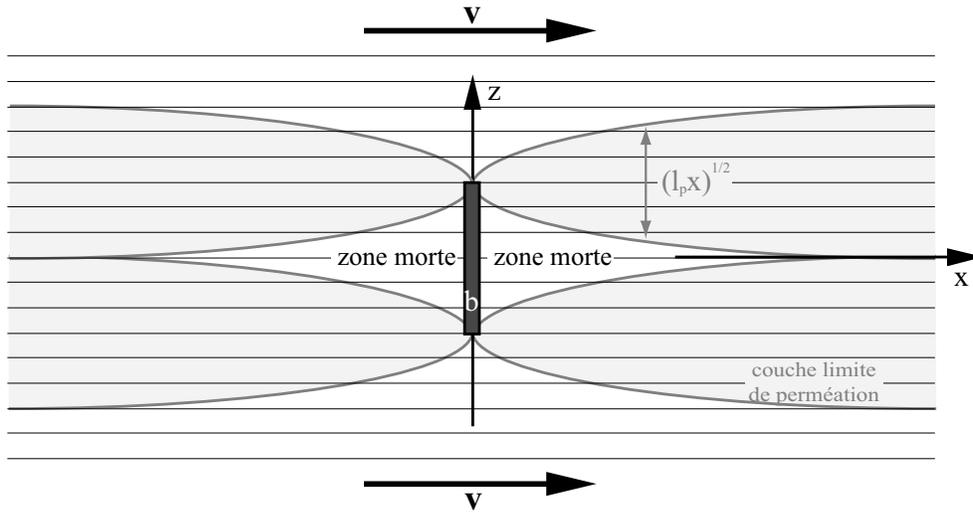


FIG. 3.1 – Modèle hydrodynamique utilisé pour calculer de façon approchée la mobilité en milieu infini d’une dislocation, remplacée ici par un ruban de largeur b . v est la vitesse à l’infini supposée parallèle aux couches perpendiculaire à l’obstacle [31].

de perméation autour de la dislocation. Ce problème complexe n’a pas encore été résolu exactement. Il est par contre correctement modélisé en remplaçant la dislocation par un ruban de largeur b perpendiculaire aux couches [31]. Ce modèle est illustré sur la figure 3.1 où l’on s’est placé dans le référentiel de l’obstacle, avec v la vitesse à l’infini parallèle aux couches. La résolution des équations hydrodynamiques donne deux résultats importants, à savoir que :

1. La perméation est localisée à l’intérieur de 4 couches limites de perméation qui s’étendent de part et d’autre de l’obstacle (figure 3.1). Leur largeur augmente avec la distance x par rapport à l’obstacle en $\sqrt{l_p x}$ où l_p est la longueur de perméation qui s’écrit, de définition :

$$l_p = \sqrt{\eta \lambda_p} \quad (3.2)$$

Cette dépendance est caractéristique d’une compétition entre la diffusion et l’advection de la vorticit .   l’ext rieur de ces r gions, la vitesse de perm eation v_z est quasiment nulle. Il en r sulte que la vitesse dans le plan des couches v_x est proche de la vitesse   l’infini, sauf dans les zones mortes de chaque c t  de l’obstacle o  elle s’annule.

2. La dissipation est essentiellement localis e de chaque c t  de l’obstacle sur une distance de l’ordre de la taille de la zone morte. De plus, la mobilit  m (en milieu infini) de la dislocation est ind pendante de sa vitesse v , mais aussi de son vecteur de Burgers b , une propri t  inhabituelle qui d coule de la fluidit  des couches. Elle vaut en ordre de grandeur :

$$m = \beta \sqrt{\frac{\lambda_p}{\eta}} \quad (3.3)$$

où β est un coefficient numérique proche de l'unité.

Dans le *8CB*, $\eta \sim 5$ poise et $\lambda_p \sim 10^{-13}$ cm²/poise, la longueur de perméation fait donc quelques couches et la mobilité m est de l'ordre de $4 \cdot 10^{-7}$ cm²s/g.

3.1.2 Effet de confinement

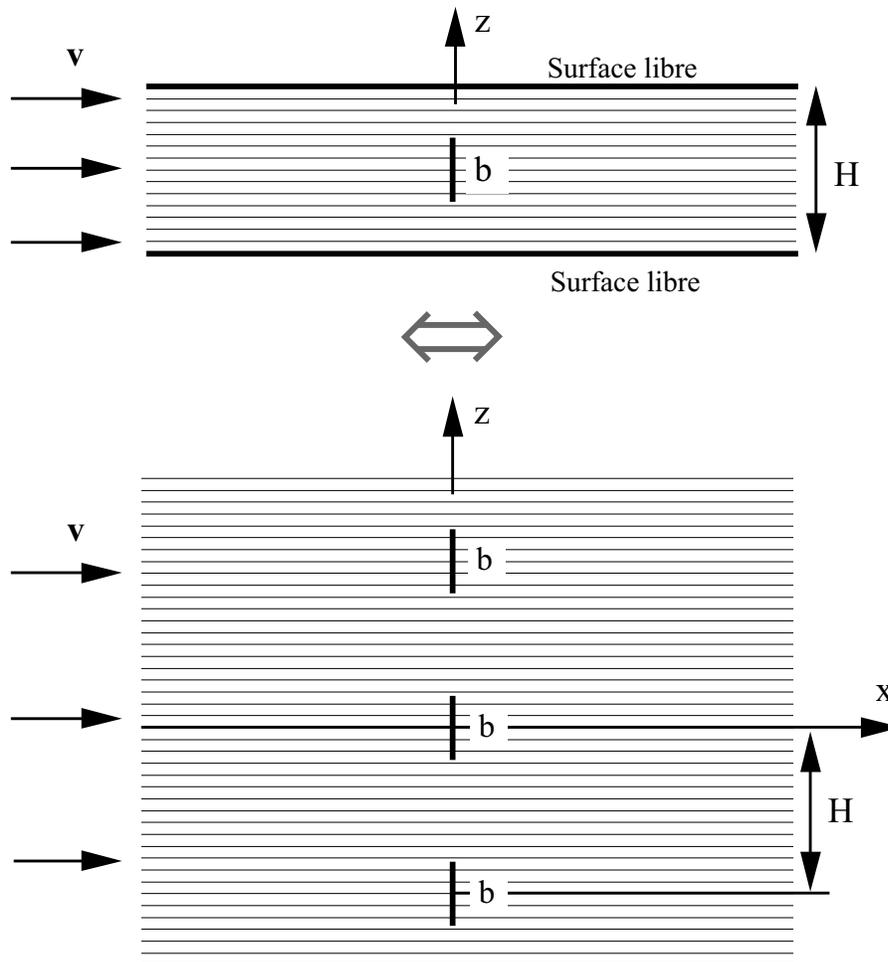


FIG. 3.2 – L'écoulement autour d'un ruban de largeur b dans un film aux surfaces libres, d'épaisseur H , est équivalent à celui dans un milieu infini autour d'une infinité de rubans parallèles séparés par la distance H avec v pour vitesse à l'infini [31].

Ce modèle de la mobilité d'une dislocation est réalisé en milieu infini. Or dans les films smectiques, les dislocations se déplacent dans un milieu limité par deux surfaces libres. L'influence du confinement sur la mobilité doit donc être prise en compte, ce qui est possible en utilisant le modèle de ruban en milieu infini et la méthode des images [31]. L'écoulement

autour d'un ruban de largeur b dans un film aux surfaces libres d'épaisseur H est en effet équivalent à un écoulement en milieu infini autour d'une infinité de rubans parallèles séparés les uns des autres par la distance H avec v pour vitesse à l'infini. Pour déterminer la force de friction F_v sur le ruban, il n'est pas nécessaire de résoudre les équations hydrodynamiques dès lors que l'on remarque qu'elles sont satisfaites par le champ de pression suivant de chaque côté de l'obstacle [31] :

$$P_g(x, z) = c_g - \sqrt{\frac{\eta}{\lambda_p}} v_x(x, z) \quad \text{en } x < 0 \quad (3.4)$$

$$P_d(x, z) = c_d + \sqrt{\frac{\eta}{\lambda_p}} v_x(x, z) \quad \text{en } x > 0 \quad (3.5)$$

En écrivant les conditions aux limites, on peut calculer la différence de pression $P_g - P_d$ entre la gauche et la droite qu'il faut imposer pour maintenir l'écoulement (on se place suffisamment loin de l'obstacle pour que les pressions soient uniformes dans l'épaisseur) :

$$P_g - P_d = \sqrt{\frac{\eta}{\lambda_p}} \frac{b}{H - b} v \quad (3.6)$$

On en déduit la force visqueuse en comparant la puissance injectée dans le système avec l'énergie dissipée autour du ruban, ce qui donne :

$$F_v = \frac{b}{m \frac{H - b}{H}} v \quad (3.7)$$

Cette relation donne la mobilité d'une dislocation en milieu confiné, $m(H - b)/H$. Elle est bien égale à celle en milieu infini m lorsque H tend vers l'infini. Lorsque la largeur de l'obstacle tend vers l'épaisseur du film, elle devient nulle et la force F_v diverge.

3.1.3 Mobilité d'une dislocation dans un film

Le cas d'une dislocation coin qui se déplace (figure 3.3) dans un film smectique semble plus complexe que celui d'un ruban dans un film. Il ne présente pas en effet une symétrie aussi forte (nécessaire pour appliquer la méthode des images) puisque l'épaisseur du film n'est pas la même de chaque côté de la dislocation. Nous savons, en revanche, que la mobilité de tels obstacles est due aux écoulements de perméation. Or du fait de cette géométrie, ceux-ci doivent être plus importants du côté de la dislocation où le film est le plus épais (de l'autre côté les molécules ont plus ou moins la même vitesse dans les couches qu'au niveau de la dislocation, ce qui nécessite moins de perméation). Finalement, le mouvement d'une dislocation (figure 3.3) peut, en première approximation, être assimilé à celui d'un ruban de même taille b se déplaçant à la vitesse v dans un film de même épaisseur que la partie la plus épaisse (ici $(N + k)d$). Ainsi, la dissipation Φ_d (par unité de longueur de la dislocation),

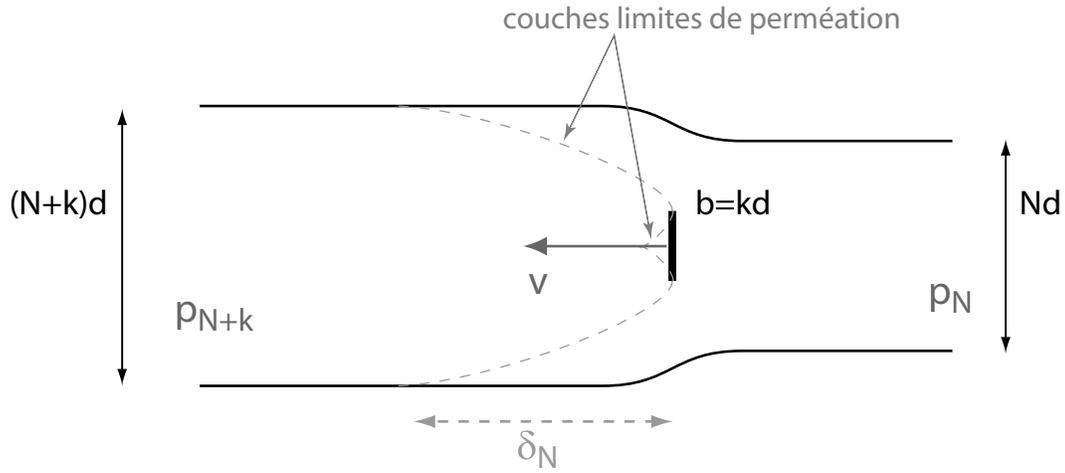


FIG. 3.3 – Dislocation de vecteur de Burgers $b = kd$ qui se déplace à la vitesse $v > 0$ dans un film de N couches (partie fine) *supposée au repos à l'infini* (à droite).

principalement localisée au niveau du coeur de la dislocation lors de son déplacement, s'écrit [31] :

$$\Phi_d = \frac{b}{m \frac{N}{N+k}} v^2 \quad (3.8)$$

La mobilité d'une dislocation dans un film est donc égale à la mobilité en milieu infini m multipliée par le rapport d'épaisseur de la partie fine sur la partie épaisse, soit avec nos conventions :

$$m \frac{N}{N+k} \quad (3.9)$$

Dans les films "épais" (plus de 10 – 20 couches typiquement) et pour des dislocations élémentaires, la correction due au confinement est négligeable.

Une autre propriété intéressante est que le déplacement d'une dislocation génère une différence de pression de part et d'autre de la dislocation. Cette chute de pression multipliée par le débit de matière (dans le référentiel de la dislocation), est égale à la dissipation Φ_d (équation 3.8), ce qui donne avec nos convention (figure 3.3) :

$$P_{N+k} - P_N = \frac{k}{N} \frac{v}{m \frac{N}{N+k}} \quad (3.10)$$

Enfin, remarquons que la zone où la vitesse est inhomogène s'étend sur une distance δ_N , qui sépare la dislocation du point d'intersection de la couche limite de perméation avec la surface libre (figure 3.3). En ce point, la couche limite a une épaisseur $\sqrt{l_p \delta_N}$, ce qui permet de calculer :

$$\delta_N = \frac{(Nd)^2}{4l_p} \quad (3.11)$$

3.2 Dynamique des boucles de dislocation dans un film

3.2.1 Observations dans les films épais

Nous avons vu qu'il est possible, à l'aide du système de pointe chauffante, de créer une boucle de dislocation élémentaire, isolée au centre du film. Après sa création, la température du film qui a été chauffé localement sur un temps très court, se stabilise très rapidement à la température du four (moins de 1 s [30]). Ensuite, les observations expérimentales montrent que si le rayon de la boucle est inférieur à un rayon critique r_c , la boucle s'effondre et disparaît (figure 3.4), alors que si il est supérieur à cette valeur, la boucle grandit et le film s'amincit d'une couche (figure 3.4).

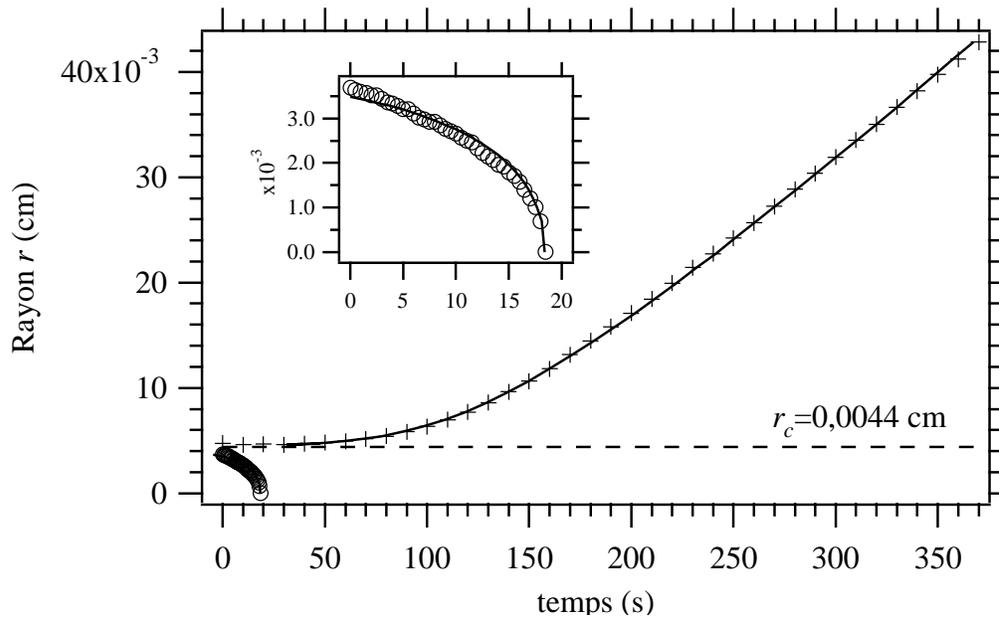


FIG. 3.4 – Croissance et effondrement d'une boucle de dislocation dans un film épais de 127 couches, relié à un ménisque ayant pour courbure $R = 580 \mu\text{m}$. La courbe en trait plein correspond au meilleur ajustement par la loi 3.16 avec pour paramètres : $r_c = 44 \mu\text{m}$, $t_c = 24 \text{s}$ [34].

3.2.2 Interprétation

Une approche locale consistant à faire un bilan des forces qui agissent sur une dislocation à l'échelle mésoscopique permet de comprendre les observations précédentes [31]. Notons que les variations de pression dues à l'écoulement dans le plan du film¹ sont négligeables, ainsi que les effets inertiels². Ce bilan, par unité de longueur, sur une boucle de dislocation de

¹grande fluidité des couches

²la masse effective d'une dislocation peut être considérée comme nulle car elle est de l'ordre de la masse d'une rangée de molécules [13]

vecteur de Burgers $b = kd$, de rayon r se déplaçant à une vitesse $v = dr/dt$ dans un film d'épaisseur $H = Nd$ (soit $(N - k)d$ à l'intérieur de la boucle), conduit à la relation suivante :

$$(P_N - P_{air})b + (P_N - P_{N-k})(H - b) + \frac{E}{r} = 0 \quad (3.12)$$

La différence de pression entre l'extérieur et l'intérieur du film (dans la partie épaisse) est fixée par le ménisque³, soit $\Delta P = P_{air} - P_N = \gamma/R$. Elle s'applique sur une hauteur correspondant au vecteur de Burgers b de la dislocation et elle tend à faire grandir la boucle puisque le film est en dépression. L'autre terme de pression correspond à la différence de pression nécessaire pour que la boucle se déplace à la vitesse v du fait de sa mobilité finie m . Il vaut d'après l'équation 3.10 :

$$P_N - P_{N-k} = \frac{k}{N - k} \frac{v}{m} \quad (3.13)$$

où le terme de confinement a été négligé ce qui est justifié pour une dislocation élémentaire (ou $k \ll N$). Enfin, le dernier terme représente l'effet de tension de ligne E qui tend à réduire la longueur de la boucle.

Finalement, ce bilan donne l'équation différentielle vérifiée par le rayon de la boucle $r(t)$:

$$\frac{1}{m} \frac{dr}{dt} = \Delta P - \frac{E}{br} \quad (3.14)$$

Le rayon critique r_c est atteint, par définition, lorsque $v = 0$, c'est-à-dire lorsque la pression capillaire compense exactement le terme de tension de ligne. Cette condition donne :

$$r_c = \frac{E}{b\Delta P} \quad (3.15)$$

Ce rayon correspond bien à un point d'équilibre instable : si $r < r_c$ la boucle s'effondre, alors qu'au contraire, elle croît si $r > r_c$. Enfin, l'équation différentielle a pour solution :

$$\frac{t}{t_c} = \frac{r - r_i}{r_c} + \ln \left(\frac{r - r_c}{r_i - r_c} \right) \quad (3.16)$$

où r_i est le rayon initial de la boucle à $t = 0$ et t_c un temps caractéristique défini par $t_c = r_c/(m\Delta P)$. L'ajustement des courbes expérimentales obtenues dans les films épais avec cette loi théorique (figure 3.4) permet de mesurer la tension de ligne $E/b \sim 2$ dyn/cm d'une dislocation et sa mobilité $m \simeq 4,2 \cdot 10^{-7}$ cm²/g, en bon accord avec la valeur mesurée dans les expériences de fluage en compression entre deux lames de verres [31].

Notons enfin que si $r > r_i$, la boucle croît et atteint asymptotiquement une vitesse constante, notée v_∞ dans les films épais, lorsque l'effet de tension de ligne est négligeable ($r \gg r_c$ ou $t \gg t_c$) :

³On néglige pour le moment la résistance du ménisque à l'écoulement, ce qui revient à considérer ce dernier comme un réservoir parfait

$$v_{\infty} = m\Delta P \quad (3.17)$$

Cette vitesse v_{∞} , de l'ordre du $\mu\text{m/s}$, est inversement proportionnelle au rayon de courbure du ménisque R et elle est indépendante du vecteur de Burgers de la dislocation (tant que $b \ll H$). Ces propriétés ont été vérifiées expérimentalement dans les films épais [35].

3.2.3 Ralentissement dans les films fins et effet des surfaces

Dans les films "fins", $N < 120$, la vitesse d'une boucle de dislocation dépend de l'épaisseur contrairement au film épais où la vitesse asymptotique v_{∞} ne dépend que de la mobilité m et de la pression capillaire ΔP . Nous avons tracé sur la figure 3.5, les courbes expérimentales de $r(t)$ obtenues par F. Picano [30, 34] pour différentes valeurs de N . Elles mettent en évidence deux familles de films "fins" correspondant aux deux graphiques : les films d'épaisseurs intermédiaires $10 < N < 120$ en (a) et les films très fins $N < 10$ en (b). Pour chaque famille, la pression fixée par le ménisque, qui est le moteur de la dynamique, est constante. Ainsi, $\Delta P = 260 \text{ dyn/cm}^2$ en (a) et $\Delta P = 110 \text{ dyn/cm}^2$ en (b). Ces données sont indispensables pour pouvoir comparer la vitesse des boucles. La vitesse v_{∞} obtenue dans les films épais dans ces conditions est donnée par les courbes $N = 138$ en (a) et $N = 208$ en (b). Enfin, les courbes ont été décalées en temps pour ne pas se couper. Ces deux familles montrent deux résultats importants :

- Dans les films d'épaisseur intermédiaire (a), plus le film est fin, plus la vitesse de croissance est petite devant v_{∞} . De plus, les boucles n'atteignent jamais une vitesse asymptotique constante. En effet, v diminue dans le temps quand leur rayon augmente.
- Dans les films très fins (b), la vitesse des boucles devient supérieure à v_{∞} , l'effet étant d'autant plus grand que le film est fin. Néanmoins, v diminue toujours dans le temps quand le rayon de la boucle augmente.

Cette augmentation globale de la vitesse observée dans les films très fins provient de l'attraction entre les surfaces due à l'augmentation de l'ordre smectique. Puisque cette interaction est plus importante quand l'épaisseur du film diminue ($N < 10$, figure 2.5), la contrainte élastique agissant sur la ligne de dislocation augmente fortement et l'effet est d'autant plus fort que le film est fin. Tout se passe donc comme si la pression capillaire était de plus en plus forte, d'où cette accélération globale.

Enfin, le ralentissement des boucles systématiquement observé dans les films fins ou très fins montrent qu'il y a une autre source de dissipation. Nous allons voir dans la partie suivante qu'elle provient de la perméabilité finie du ménisque qui se comporte comme un réservoir fortement dissipatif lorsqu'il échange de la matière avec le film, ce qui est le cas lorsqu'une boucle de dislocation grandit.

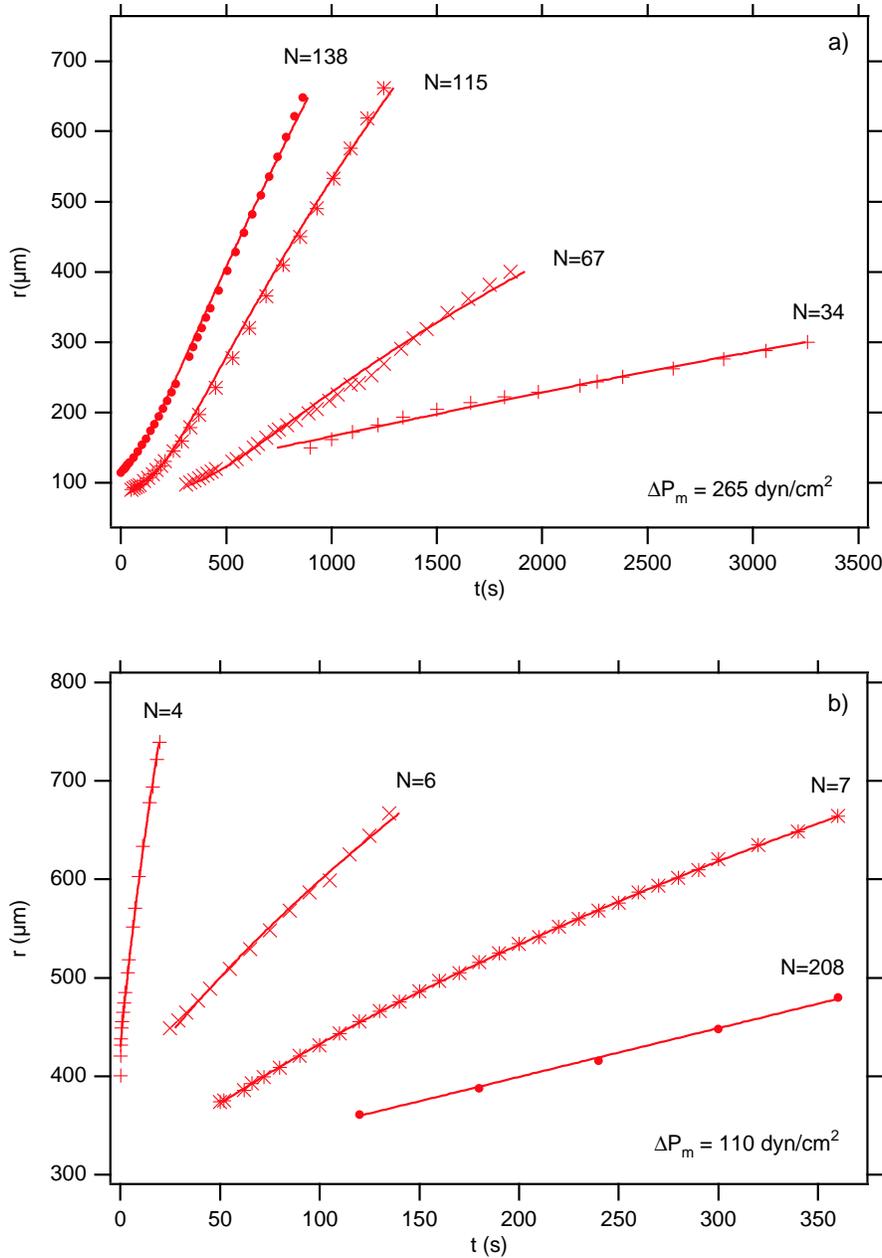


FIG. 3.5 – Croissance du rayon r d'une boucle de dislocation élémentaire en fonction du temps dans les films fins. Expériences réalisées par Frédéric Picano : a) pour des films d'épaisseurs intermédiaires où N est compris entre 30 et 120 et $\Delta P = 260 \text{ dyn/cm}^2$; b) pour des films très fins où $N < 10$ et $\Delta P = 110 \text{ dyn/cm}^2$. Sur ce deuxième graphique, une partie de la courbe obtenue avec un film épais ($N = 208$) est tracée à titre de comparaison. Les deux graphiques n'ont pas la même échelle de temps et les courbes ont été décalées en temps pour plus de clarté. Les courbes en trait plein correspondent au meilleur ajustement de ces expériences par le modèle qui sera développé dans la partie II.

Deuxième partie

Le ménisque : un réservoir dissipatif

Chapitre 4

Modélisation de la perméabilité du ménisque

Sommaire

4.1 Définition	51
4.1.1 Constante de dissipation $C(N)$	51
4.1.2 Dissipation dans le ménisque Φ_{men}	52
4.2 Modèle du ménisque dans les films épais	52
4.2.1 Description	52
4.2.2 Calcul de la dissipation	53
4.3 Modèle du ménisque dans le cas général	54
4.3.1 Description	54
4.3.2 Calcul de la dissipation	56

4.1 Définition

4.1.1 Constante de dissipation $C(N)$

Lorsque nous avons étudié précédemment la croissance d'une boucle de dislocation, nous avons supposé que le ménisque se comportait comme un réservoir de matière (parfait) qui fixait la pression dans le film comme en statique. Cette propriété doit être remise en cause dès que le ménisque échange de la matière avec le film. Le ménisque a en effet une perméabilité finie due à sa structure en couches smectiques. Il doit donc être considéré comme un réservoir dissipatif. Autrement dit, une différence de pression $P_N - P_{men}$ doit exister entre l'intérieur du film et le volume du ménisque pour générer un écoulement de vitesse v_{men} à l'entrée du ménisque.

Le ménisque est une zone où le film s'épaissit progressivement couche par couche. Il est donc rempli d'une succession de dislocations coin. Ce sont les écoulements de perméation autour de ces dislocations qui sont à l'origine de cette chute de pression $P_N - P_{men}$. Alors, de la même façon que la différence de pression de part et d'autre d'une simple dislocation en mouvement est proportionnelle à sa vitesse divisée par la mobilité m (éq. 3.10), la chute de pression $P_N - P_{men}$ peut raisonnablement suivre une relation linéaire de même type que l'on prendra sous la forme :

$$P_N - P_{men} = \frac{C(N)}{m} v_{men} \quad (4.1)$$

$C(N)$ est par définition, la *constante de dissipation* caractérisant la *perméabilité* du ménisque. Elle dépend de l'épaisseur du film comme nous le montrerons plus tard. Plus C est important, plus le ménisque résiste à l'écoulement. Soulignons que dans cette relation, v_{men} est comptée positivement quand le fluide rentre dans le ménisque, la pression étant bien sûr plus élevée en amont de l'écoulement.

4.1.2 Dissipation dans le ménisque Φ_{men}

Lors de ce processus, Φ_{men} , la dissipation par unité de temps et par unité de longueur de ménisque, est directement égale à la chute de pression multipliée par le débit à l'entrée du ménisque $Nd v_{men}$, ce qui donne :

$$\Phi_{men} = (P_N - P_{men}) Nd v_{men} = \frac{Nd C(N)}{m} v_{men}^2 \quad (4.2)$$

La constante $C(N)$ peut être déterminée en calculant la dissipation dans le ménisque. Le calcul rigoureux de l'écoulement dans le ménisque est trop difficile. En revanche, un modèle hydrodynamique du ménisque proposé dans les références [31, 32] permet d'estimer la perméabilité de ce dernier. Au cours de ce travail de thèse, nous avons amélioré ce modèle pour qu'il s'ajuste mieux à nos données expérimentales. C'est cette dernière version [6] que nous allons présenter. Dans les films épais, le modèle se simplifie ; commençons par ce cas pour plus de clarté, avant de traiter le cas général.

4.2 Modèle du ménisque dans les films épais

4.2.1 Description

La perméabilité finie du ménisque est due aux écoulements de perméation autour de la série de dislocations qui le composent (situées dans son plan médian). La dissipation doit être localisée à l'entrée du ménisque dans la zone bien orientée (voir figure 2.1), car la zone plus épaisse du ménisque est remplie de coniques focales (chapitre 2.1.1), ce qui la rend beaucoup plus perméable, les couches étant fortement connectées (d'où des écoulements de perméation

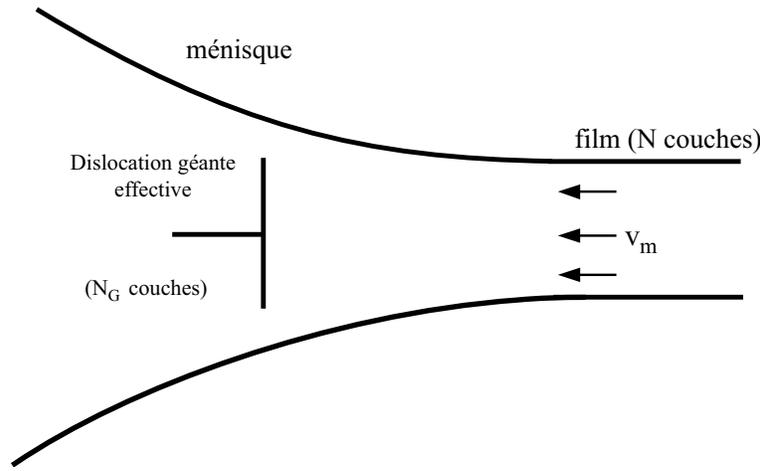


FIG. 4.1 – Modélisation du ménisque dans les films épais pour calculer sa perméabilité. Les dislocations qui le composent, sont trop proches les unes des autres du point de vue hydrodynamique et se comportent comme une dislocation géante de même taille N_G .

beaucoup plus faciles). Nous avons vu aussi que la zone bien orientée se compose d'une série de dislocations élémentaires. Dans la suite, nous noterons N_G leur nombre. D'après la photo 2.1, N_G qui est égal à la variation d'épaisseur de cette zone en nombre de couches, est de l'ordre de 3000. En effet, l'extension w de cette zone vaut une centaine de micromètres et puisque le rayon de courbure du ménisque est de 2,8 mm, cela correspond bien à une surépaisseur de l'ordre de $10 \mu\text{m}$. Il s'agit maintenant d'estimer la dissipation générée par les écoulements de perméation autour de ces dislocations.

Dans le cas des ménisques dans des films épais, toutes ces dislocations peuvent être modélisées, d'un point de vue hydrodynamique, par une dislocation géante effective de même vecteur de Burgers $N_G d$ que celle représentée sur la figure 4.1. La raison est que les dislocations élémentaires sont si proches l'une de l'autre qu'elles bloquent l'écoulement dans tout le plan médian du ménisque. Nous avons en effet montré dans le paragraphe 3.1.3 que la vitesse du fluide s'homogénéise dans l'épaisseur du ménisque sur une distance $\delta_N \sim (Nd)^2/4l_p$. Cette dernière est d'autant plus grande que l'épaisseur locale du ménisque au niveau de la dislocation est grande (puisque'elle est proportionnelle à son carré). Ainsi dans les ménisques des films épais, cette distance est toujours beaucoup plus grande que celle qui sépare deux dislocations adjacentes. Plus précisément, cette comparaison permet de montrer que ce modèle est valide pour les ménisques des films épais de plus de 100 couches.

4.2.2 Calcul de la dissipation

Ce traitement des dislocations élémentaires en une dislocation géante de vecteur de Burgers $N_G d$, permet d'estimer la dissipation Φ_{men} dans le ménisque d'après l'équation 3.8. Puisque la dislocation géante est plongée dans un écoulement de vitesse v_{men} , correspondant à la vitesse à l'entrée du ménisque, elle s'écrit :

$$\Phi_{men} = \frac{N_G d}{m \frac{N}{N+N_G}} v_{men}^2 \quad (\text{dans les ménisques des films épais}) \quad (4.3)$$

Remarquons que ce modèle tient compte de l'effet de confinement (terme en $(N + N_G)/N$ ¹). La constante de dissipation $C(N)$ est déduite directement de l'équation 4.3 :

$$C(N) = \frac{N_G(N + N_G)}{N^2} \quad (\text{dans les ménisques des films épais}) \quad (4.4)$$

Pour les films épais $100 < N < 1000$, la constante de dissipation du ménisque diminue donc, avec une bonne approximation, comme l'inverse du carré de son épaisseur : $C(N) \sim (N_G/N)^2$, puisque N_G est de l'ordre de 3000.

En revanche, ce modèle n'est pas correct dans les films fins et doit être corrigé, ce qui change complètement le comportement de $C(N)$ (qui ici diverge lorsque $N \rightarrow 0$).

4.3 Modèle du ménisque dans le cas général

4.3.1 Description

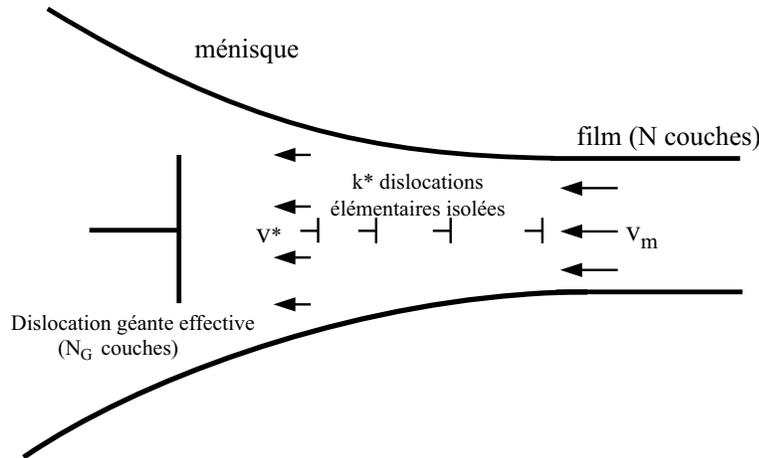


FIG. 4.2 – Modèle de ménisque dans le cas général permettant de calculer sa perméabilité. Les dislocations sont séparées en deux groupes : les k^* premières dislocations élémentaires sont indépendantes les unes des autres du point de vue hydrodynamique ; les suivantes, en revanche, se comportent comme une dislocation géante de taille N_G .

Avec les films fins, la vitesse du fluide s'homogénéise dans l'épaisseur du ménisque sur une distance plus faible qu'avec les films épais (équation 3.11). Il peut donc arriver que les k^* premières dislocations à l'entrée du ménisque soient assez éloignées les unes des autres pour être considérées comme indépendantes du point de vue hydrodynamique. Il n'en sera

¹Cet effet n'apparaît pas dans le modèle initial [31, 32] où les dislocations élémentaires sont remplacées par une plaque mince parallèle aux couches sur laquelle la vitesse s'annule

pas de même pour les suivantes qui seront traitées comme une dislocation géante effective de vecteur de Burgers $N_G d$. Dans ce modèle généralisé, les dislocations sont donc séparées en deux groupes, comme représenté sur la figure 4.2 (nous verrons dans la suite que k^* est très petit devant N_G). À l'endroit où l'on passe d'un groupe à l'autre, correspondant à la k^* ième dislocation, l'épaisseur du ménisque vaut $(k^* + N)d$ et la distance Λ_{k^*} entre deux dislocations successives doit être telle que $(\Lambda_{k^*} l_p)^{1/2} \approx (k^* + N)d/2$, d'après l'équation 3.11. Sachant que $\Lambda_{k^*} = (Rd/4k^*)^{1/2}$, puisque le ménisque a un profil circulaire de rayon R , il vient que k^* doit satisfaire l'équation :

$$k^* (k^* + N)^4 \approx \frac{4l_p^2 R}{d^3} \quad (4.5)$$

La courbe de k^* en fonction de N est tracée sur la figure 4.3 en prenant un ménisque de courbure caractéristique : $R = 0,12$ cm et une longueur de perméation raisonnable : $l_p = 190$ Å. Le nombre de dislocations isolées k^* diminue (à peu près linéairement) avec l'épaisseur du film en tendant vers 0. Il vaut 0 (< 1) pour un film d'environ 80 couches, ce qui représente la limite inférieure du modèle du ménisque pour les films épais. k^* augmente, par contre, lorsque N tend vers 0 et vaut dans cette limite :

$$k_{max}^* \approx \left(\frac{4l_p^2 R}{d^3} \right)^{1/5} \quad (4.6)$$

k_{max}^* étant de l'ordre de 35 couches, k^* est donc toujours négligeable devant N_G . De plus, il dépend faiblement du rayon de courbure R du ménisque (puissance 1/5). La perméabilité du ménisque est donc quasiment indépendante de la taille du ménisque.

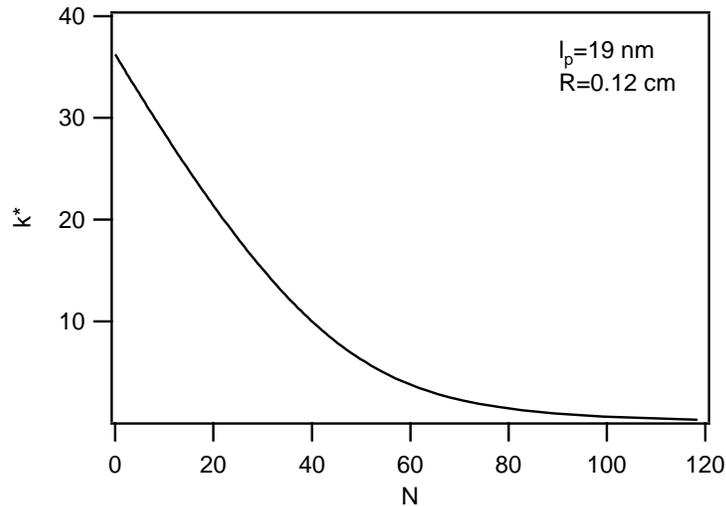


FIG. 4.3 – Nombre de dislocations isolées k^* dans le ménisque en fonction de l'épaisseur du film N obtenu par résolution de l'équation 4.5 pour un ménisque de courbure $R = 0,12$ cm et une longueur de perméation $l_p = 190$ Å.

4.3.2 Calcul de la dissipation

Pour les films fins, la dissipation dans le ménisque dépend fortement de l'épaisseur du film N . En effet, Φ_{men} est obtenue dans ce cas en sommant la contribution des deux groupes de dislocations $\Phi_{men}^{(1)} + \Phi_{men}^{(2)}$. Le premier terme $\Phi_{men}^{(1)}$ est calculé en sommant la contribution de chacune des k^* dislocations élémentaires, puisqu'elles sont indépendantes. Au fur et à mesure que le ménisque s'épaissit, celle-ci est de plus en plus faible car la dislocation est plongée dans un écoulement de vitesse de moins en moins grande (selon la conservation du débit). Notons que la vitesse à la sortie de ce premier groupe, notée v^* vaut (figure 4.2) :

$$v^* \approx \frac{N}{N + k^*} v_{men} \quad (4.7)$$

En utilisant l'équation 3.8 (avec $k = 1$), $\Phi_{men}^{(1)}$ est ainsi égal à :

$$\Phi_{men}^{(1)} = \frac{dv_{men}^2}{m} \sum_{p=1}^{k^*} \left(\frac{N}{N + p - 1} \right)^2 \approx \frac{k^*}{N + k^*} \frac{Nd}{m} v_{men}^2 \quad (4.8)$$

Il se trouve que la dissipation générée par ces k^* dislocations isolées est toujours négligeable par rapport $\Phi_{men}^{(2)}$ (car $k^* \ll N_G$), la contribution à $C(N)$ étant inférieure à 1. Ces k^* dislocations jouent cependant un rôle essentiel dans les films fins pour le deuxième groupe traité comme une dislocation géante, car celle-ci est plongée dans un écoulement de vitesse v^* beaucoup moins importante que v_{men} . C'est du moins le cas dans les films fins où k^* est grand devant N , ce qui fait chuter $\Phi_{men}^{(2)}$.

En conclusion, $\Phi_{men}^{(2)} \approx \Phi_{men}$ donne la dissipation totale dans le ménisque et vérifie la même relation 4.3 que celle obtenue pour les films épais, à condition de remplacer v_{men} par v^* et N par $N + k^*$. La dissipation dans le ménisque s'écrit donc :

$$\Phi_{men} = \frac{N_G d}{m \frac{N+k^*}{N_G+N+k^*}} \left(\frac{N}{N + k^*} \right)^2 v_{men}^2 \quad (4.9)$$

Notons également que dans les films fins, les k^* dislocations isolées diminuent l'effet du confinement (terme en $(N/N + k^*)^2$).

Finalement, la constante de dissipation $C(N)$ est donnée dans le cas général par :

$$C(N) = \left(\frac{N}{N + k^*} \right)^2 \frac{N_G}{N} \frac{N_G + N + k^*}{N + k^*} \quad (4.10)$$

où la décroissance avec l'épaisseur du film en $(N_G/N)^2$ est retrouvée pour les films épais lorsque $100 < N < 1000$ (k^* étant nul). En revanche, à cause des dislocations isolées à l'entrée du ménisque, le comportement asymptotique dans les films fins est complètement différent. Au premier ordre, $C(N)$ croît en effet linéairement avec l'épaisseur du film comme $(N_G^2/k_{max}^3) N$. La constante de dissipation $C(N)$ doit donc passer par un maximum pour une valeur de N de l'ordre de N_{max} donné par l'intersection des deux courbes asymptotiques. Cela donne :

$$N_{max} = k_{max}^* \approx \left(\frac{4l_p^2 R}{d^3} \right)^{1/5} \quad (4.11)$$

pour un maximum de $C(N)$ de l'ordre de :

$$C_{max} \sim \frac{1}{2} \left(\frac{N_G}{k_{max}^*} \right)^2 \quad (4.12)$$

La constante $C(N)$ a donc une allure en forme de cloche qui est représentée dans le chapitre suivant sur la figure 5.2, où les paramètres du modèle (N_G, l_p) ont été ajustés pour rendre compte au mieux des résultats expérimentaux.

Dans le chapitre suivant, nous allons présenter et analyser deux expériences (dont celle sur le ralentissement des boucles) qui ont permis de mesurer $C(N)$ et de vérifier le modèle du ménisque. Cette confrontation permettra aussi d'estimer les deux paramètres importants du modèle, à savoir N_G , qui correspond à la variation d'épaisseur sur laquelle est localisée la dissipation, et l_p , la longueur caractérisant le phénomène de perméation dans une phase smectique et qui est à l'origine de la dissipation.

Chapitre 5

Mesure de la perméabilité du ménisque

Sommaire

5.1 Ralentiement des boucles (films fins)	59
5.1.1 Étude théorique	60
5.1.2 Mesure de $C(N)$	61
5.2 Écoulement entre deux ménisques (films épais)	63
5.2.1 Principe de la mesure et dispositif expérimental	63
5.2.2 Détermination de $C(N)$	65
5.2.3 Résultats expérimentaux	69
5.2.4 Conclusion	74

5.1 Ralentiement des boucles (films fins)

Dans la partie précédente, nous avons remarqué que dans les films fins, lors des expériences de croissance d'un boucle de dislocation élémentaire (figure 3.5), la vitesse de la boucle diminue quand son rayon grandit. Or, de la matière pénètre dans le ménisque lorsque la boucle croît (car le film s'amincit). C'est donc le caractère dissipatif du ménisque qui est à l'origine du ralentiement des boucles. Lorsque nous avons modélisé la dynamique des boucles dans la section 3.2, la dissipation dans le ménisque et l'attraction entre les surfaces (mise en évidence dans les films très fins $N < 10$) n'ont pas été prises en compte. Nous allons montrer dans cette section qu'en tenant compte de ces effets, il devient possible en analysant ces expériences d'estimer la constante $C(N)$ dans les films fins.

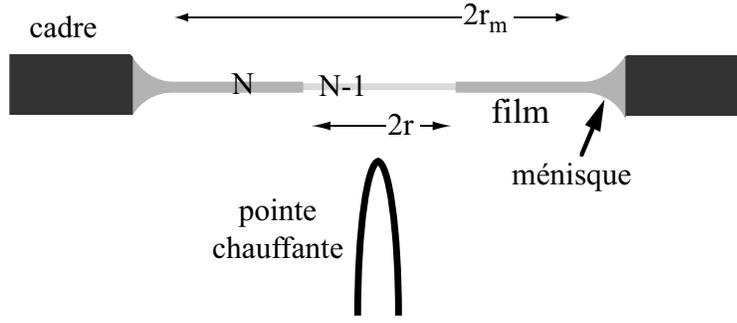


FIG. 5.1 – Schéma de l'expérience. Une boucle de dislocation élémentaire est nucléée à l'aide d'une pointe chauffante, dans un film relié à un cadre circulaire par un ménisque.

5.1.1 Étude théorique

La géométrie de l'expérience est représentée sur la figure 5.1, où r est le rayon de la boucle et r_m celui du ménisque. Il y a deux façons de traiter la dynamique d'une boucle. La première que nous avons détaillée dans la section 3.2 est une approche locale, considérant les forces que subit la ligne. Remarquons que la dissipation dans le ménisque peut être prise en compte en écrivant la chute de pression à l'entrée du ménisque (éq. 4.1). La seconde approche, que nous détaillerons ici et qui utilise les mêmes hypothèses que l'autre, est globale, basée sur le théorème de la dissipation appliqué à tout le système "film + ménisque". Dans ce cadre, il y a égalité au cours de la croissance de la boucle entre l'énergie libre gagnée par le système par unité de temps, $d\Delta F/dt$ (positif quand l'énergie décroît), et l'énergie dissipée, Φ :

$$\frac{d\Delta F}{dt} = \Phi \quad (5.1)$$

L'énergie libre gagnée contient trois termes :

$$\frac{d\Delta F}{dt} = -\frac{d(2\pi r E)}{dt} - \gamma \frac{dS}{dt} + 2\pi r \left(\frac{dr}{dt} \right) [f(Nd) - f((N-1)d)] \quad (5.2)$$

Le premier est l'énergie de création d'une dislocation, proportionnelle à sa longueur et à l'énergie de tension de ligne E . Le second est le gain en énergie de surface, où γ est la tension de surface et S la surface de tout le système (qui diminue au cours du temps). Ce terme est aussi égal à $(\gamma/R)(dV_m/dt)$ [31], où V_m est le volume du ménisque et R le rayon de courbure du ménisque (notons que $\gamma/R = P_{air} - P_m$ est la différence entre la pression atmosphérique et la pression dans le volume du ménisque). Ce terme est aussi relié à la croissance de la boucle puisque par conservation du débit, $dV_m/dt = 2\pi r d(dr/dt)$. Enfin, le dernier dans l'équation 5.2 est le gain en énergie d'interaction $f(N)$ entre les surfaces. L'interaction étant attractive, ce terme est positif ($f(Nd) - f((N-1)d) > 0$).

L'énergie dissipée par unité de temps contient aussi trois termes :

$$\Phi = 2\pi r \frac{d}{m} \left(\frac{dr}{dt} \right)^2 + 2\pi r \frac{NdC(N)}{m} v_{men}^2 + \Phi_f \quad (5.3)$$

Le premier est l'énergie dissipée par la dislocation qui se déplace dans le film. Il est donné par l'équation 3.8 en négligeant le terme de confinement puisque la dislocation est élémentaire. Le second est l'énergie dissipée par l'écoulement dans le ménisque. La vitesse v_{men} à l'entrée du ménisque est directement donnée par la conservation de la matière :

$$v_{men} = \frac{1}{N} \frac{r}{r_m} \frac{dr}{dt} \quad (5.4)$$

Le dernier est l'énergie dissipée par l'écoulement bidimensionnel dans chaque couche du film. Ce terme, qui peut être calculé [34], est complètement négligeable devant le premier terme (d'au moins un facteur 500). Cette propriété traduit la grande fluidité des couches. Précisons que la vitesse dans l'épaisseur du film est uniforme, contrairement à ce qui se passe dans les films de savon où les monocouches aux surfaces libres imposent des conditions aux limites fortes de quasi annulation de la vitesse [48] (le profil de vitesse est alors parabolique dans l'épaisseur du film).

Finalement, le théorème de la dissipation s'écrit [34] :

$$\frac{1}{m} \frac{dr}{dt} \left(1 + \frac{rC}{r_m N} \right) = \frac{\gamma}{R} + \frac{f(Nd) - f((N-1)d)}{d} - \frac{E}{rd} \quad (5.5)$$

L'équation 3.14 est retrouvée si la dissipation dans le ménisque et l'attraction entre les surfaces sont négligées. Cette équation permet de calculer le rayon critique de la boucle :

$$r_c = \frac{E}{d \frac{\gamma}{R} + f(Nd) - f((N-1)d)} \quad (5.6)$$

Enfin, cette équation différentielle décrivant la dynamique d'une boucle peut être résolue analytiquement en introduisant le temps caractéristiques suivant :

$$t_c = \frac{dr_c}{m \left[d \frac{\gamma}{R} + f(Nd) - f((N-1)d) \right]} \quad (5.7)$$

Elle a pour solution :

$$\frac{t}{t_c} = \left(1 + \frac{rC}{r_m N} \right) \left[\frac{r - r_i}{r_c} + \ln \left(\frac{r - r_c}{r_i - r_c} \right) \right] + C \frac{r^2 - r_i^2}{2r_m r_c} \quad (5.8)$$

où r_i est le rayon initial au temps $t = 0$.

5.1.2 Mesure de $C(N)$

L'équation 5.8 traduit bien le comportement observé dans les films fins : plus la constante C de dissipation dans le ménisque est élevée, plus la vitesse de croissance d'une boucle est faible par rapport à celle obtenue dans les films épais (éq. 3.17 pour $C = 0$), ce qui se traduit aussi par un ralentissement de la boucle quand son rayon grandit (car le débit à l'entrée du ménisque augmente). Remarquons que tous les paramètres dans cette équation, mis à part C , sont connus à la température $T = 28,5^\circ\text{C}$ où ces expériences ont été réalisées. En

effet, les rayons r , r_m , la courbure R du ménisque, l'épaisseur du film N sont des quantités mesurées expérimentalement ; la tension de surface vaut $\gamma \approx 30 \text{ erg/cm}^2$, la mobilité m a été mesurée dans les films épais et vaut $4,2 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2\text{s/g}$, ainsi que la fonction $f(Nd)$, donnée précédemment (figure 2.5) ; enfin, la dépendance de la tension de ligne $E(N)$ a été mesurée dans les films verticaux [14, 57] :

$$E(N) = E_\infty + \frac{\delta E}{\sqrt{N + 1/2}} \quad (5.9)$$

avec $E_\infty \approx 4,5 \cdot 10^{-7} \text{ dyn}$ et $\delta E \approx 1,3 \cdot 10^{-6} \text{ dyn}$. Ainsi, il suffit d'ajuster ce modèle aux expériences de la figure 3.5, pour déterminer la valeur de C pour une épaisseur N donnée du film. Les courbes théoriques ajustées aux courbes expérimentales sont tracées en trait plein sur la figure 3.5.

Les valeurs de C ainsi obtenues sont très grandes montrant que le ménisque est fortement dissipatif. Elles sont données sur la figure 5.2 en fonction de l'épaisseur du film (cercles). Le modèle de $C(N)$, développé dans le chapitre précédent (éq. 4.10), est tracé en trait plein. Il s'ajuste raisonnablement à ces données en prenant $N_G = 2700$ et $l_p = 190 \text{ \AA}$. Les données expérimentales présentent en effet le même comportement : C augmente avec N pour les films très fins puis diminue pour une épaisseur supérieure à une trentaine de couches. Ce

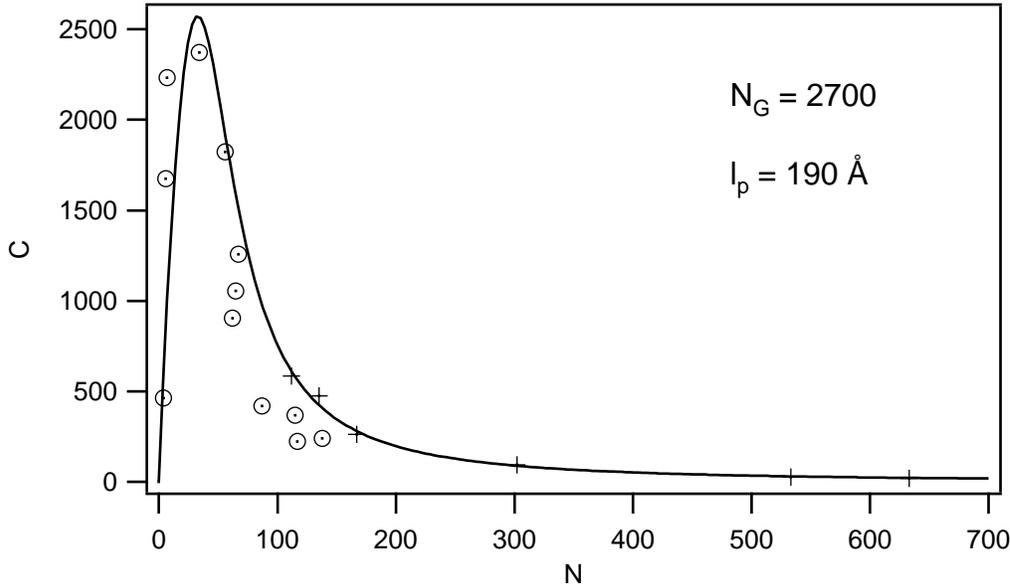


FIG. 5.2 – Valeurs de $C(N)$ en fonction de l'épaisseur du film (cercles), obtenues en ajustant les courbes expérimentales de croissance de boucle (figure 3.5) avec l'équation 5.8 [30]. Les croix sont les points obtenus à partir de l'expérience d'écoulement entre deux ménisques reliés par un film épais, détaillée dans la section suivante [6]. La courbe en trait plein est le meilleur ajustement de la constante $C(N)$ donnée par le modèle de ménisque décrit dans la section 4.3 (équation 4.10) en prenant pour paramètres $N_G = 2700$ et $l_p = 190 \text{ \AA}$ (et un ménisque de courbure $R = 0,12 \text{ cm}$) [30, 6].

comportement spécifique peut s'expliquer par le fait que dans les films fins, les premières dislocations à l'entrée du ménisque sont isolées du point de vue hydrodynamique, en accord avec le modèle. Soulignons cependant que l'analyse des expériences de croissance de boucles ne permettent pas de mesurer $C(N)$ dans les films épais. Pour ces films, la dissipation dans le ménisque devient négligeable, décroissant en effet comme $1/N^3$ selon le modèle de C et les équations 5.4 et 5.3. Notons que la mesure est déjà très imprécise pour les films d'une centaine de couches, comme le montre la figure 5.2.

Pour cette raison, nous avons réalisé une autre expérience basée sur un principe différent, qui permet de façon complémentaire de mesurer *directement* C dans les films épais. Elle consiste à étudier la relaxation de deux ménisques (ayant des rayons de courbure différents) qui sont reliés par un film. Quelques points expérimentaux obtenus par cette méthode sont indiqués par des croix sur la figure 5.2. Nous allons maintenant détailler plus précisément cette méthode.

5.2 Écoulement entre deux ménisques (films épais)

5.2.1 Principe de la mesure et dispositif expérimental

Pour mettre en évidence le caractère dissipatif d'un ménisque, il faut générer un écoulement à l'entrée de celui-ci. Une manière directe de mesurer la perméabilité d'un ménisque est d'analyser la relaxation temporelle des pressions entre deux ménisques, de tailles différentes, quand ils sont reliés par un film d'épaisseur fixée. Pendant sa thèse, Frédéric Picano a montré la faisabilité d'une telle expérience [34], mais aucune étude systématique n'avait été réalisée.

L'expérience se décompose en trois étapes :

1. Un film est d'abord étiré, avec une spatule enduite de cristal liquide, sur un cadre circulaire. En pratique, le cadre est une fine lame de métal d'épaisseur $h_0 = 100 \mu\text{m}$ dans laquelle un trou circulaire de rayon $r_f = 3 \text{ mm}$ a été percé (f comme "frame"). L'épaisseur du film peut être changée en l'étirant à différentes vitesses. L'expérience montre que plus la vitesse est grande, plus le film est fin. Il faut plus d'un quart d'heure, pour étirer des films très épais $N > 1000$, ce qui est difficilement réalisable à la main. C'est pour cette raison que nous avons construit un dispositif motorisé où la spatule est fixée sur une platine micro-contrôle qui est pilotée par un moteur pas à pas. Cette méthode a permis de préparer des films épais d'une centaine jusqu'à quelques milliers de couches. Une fois le film étiré et stabilisé, son épaisseur est mesurée précisément par interférométrie à l'aide du dispositif décrit dans la première partie (section 1.3.2).
2. Après cette étape de préparation du film, celui-ci est percé avec une aiguille de rayon $r_a = 0,3 \text{ mm}$ préalablement enduite d'une petite quantité de cristal liquide. Cette précaution est nécessaire pour éviter la rupture du film. Notons que l'épaisseur du film n'est en général pas modifiée par ce processus (dans le cas contraire, elle peut

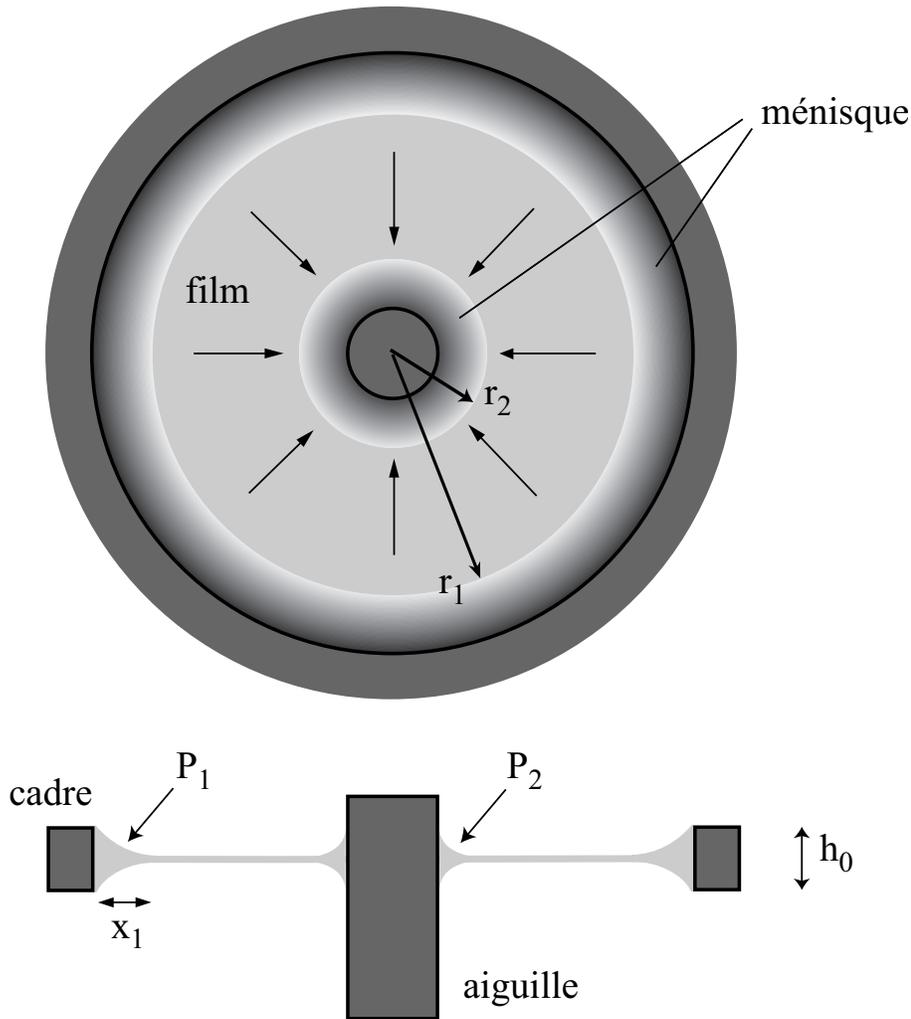


FIG. 5.3 – Schéma du dispositif expérimental. Un film est étiré entre une aiguille et un cadre circulaire. Quand les pressions à l'intérieur des deux ménisques sont différentes, la différence de pression $P_1 - P_2$ génère un écoulement radial, représenté par les flèches, à l'intérieur du film, qui s'arrête lorsque les deux pressions sont équilibrées.

être à nouveau mesurée). Un autre ménisque se forme alors autour de l'aiguille, qui se stabilise après quelques heures. La configuration ainsi obtenue est celle d'un film connectant deux ménisques toriques de tailles différentes (figure 5.3). Notons que les deux ménisques se raccordent tangentiellement au film, puisque celui-ci est épais. De plus, le ménisque intérieur mouille complètement l'aiguille prémouillée (raccord tangentiel), comme le montre la photo 5.4. Pour travailler à température fixe, tout le système est placé dans un four réglé. Dans ce but, nous avons adapté le dispositif expérimental présenté dans la première partie sur la figure 1.9, en remplaçant la pointe chauffante par l'aiguille. Le film et les deux ménisques peuvent ainsi être observés au microscope en réflexion.

3. La dernière étape est l'observation de la relaxation des deux ménisques et la mesure

de leur perméabilité. Le principe de la mesure consiste à évaluer le flux de matière et la pression dans chaque ménisque. Dans la section suivante, nous allons expliquer comment ces quantités sont obtenues en pratique.

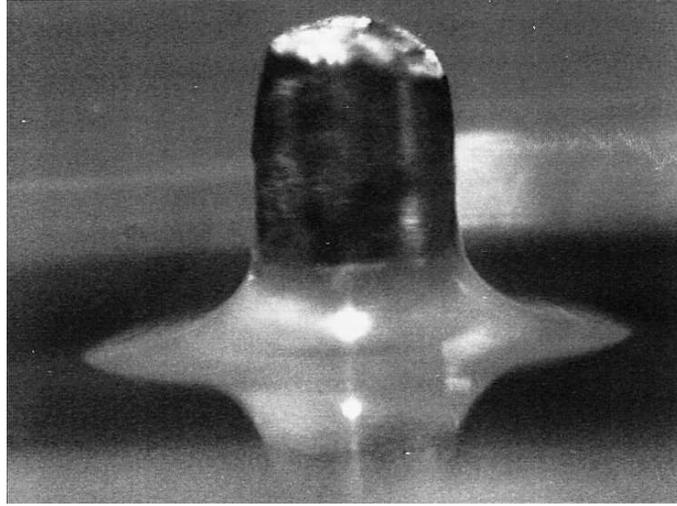


FIG. 5.4 – Photo prise au macroscopie d’un ménisque entourant l’aiguille, qui met en évidence qu’il se raccorde tangentiellement à l’aiguille et au film.

5.2.2 Détermination de $C(N)$

Étude théorique

D’après la figure 5.3, deux quantités sont faciles à mesurer en fonction du temps à l’aide du microscope. Ce sont la largeur x_1 du ménisque extérieur (ou, de manière équivalente, son rayon $r_1 = r_f - x_1$) et le rayon r_2 du ménisque intérieur. Afin de montrer comment la mesure de ces deux quantités permet de déterminer $C(N)$, écrivons le saut de pression à l’entrée de chaque ménisque dû à l’écoulement. Il est donné par l’équation 4.1. Pour le ménisque extérieur, nous avons :

$$P_N - P_1 = -\frac{C(N)}{m}v_1 \quad (5.10)$$

où P_1 est la pression à l’intérieur du ménisque et v_1 la vitesse à son entrée. Elle est positive par convention si le ménisque extérieur se vide dans le ménisque intérieur. Pour ce dernier, nous avons de la même façon :

$$P_N - P_2 = \frac{C(N)}{m}v_2 \quad (5.11)$$

où P_2 est la pression à l’intérieur du ménisque entourant l’aiguille et v_2 la vitesse à son entrée, positive avec la même convention. Par conservation de la masse, cette vitesse v_2 est égale à $(r_1/r_2)v_1$. En soustrayant les deux équations 5.10 et 5.11, nous obtenons :

$$v_1 = \frac{m}{C(N)} \frac{r_2}{r_1 + r_2} \Delta P \quad (5.12)$$

où $\Delta P = P_1 - P_2$ est la différence de pression entre les deux ménisques.

Il est important de noter que nous avons implicitement supposé que la pression à l'intérieur du film est uniforme sur toute sa surface, égale à P_N . Or, même si l'écoulement est uniforme dans l'épaisseur, il ne l'est pas dans le plan des couches, étant radial, ce qui entraîne nécessairement une chute de pression de part et d'autre du film. Mais, cette chute de pression est complètement négligeable par rapport à ΔP . Elle est en effet calculable [6] et est majorée par $2\eta v_2/r_2$. La pression à l'intérieur du film peut donc être considérée comme uniforme, si $C \gg \eta m r_1 \sim 10^{-5}$, ce qui est toujours largement vérifié.

En pratique, la vitesse v_1 est très petite (moins de $1 \mu\text{m/h}$) et ne peut pas être mesurée directement (en suivant par exemple le mouvement de petites particules suspendues dans le film). En revanche, les variations des volumes des ménisques sont des quantités accessibles expérimentalement en mesurant leurs tailles. Les volumes des ménisques extérieur et intérieur seront notés respectivement V_1 et V_2 . Selon la conservation de la masse $dV_2/dt = -dV_1/dt = 2\pi r_1 N d v_1$, ce qui donne après substitution dans l'équation 5.12 :

$$C(N) = 2\pi N d m \frac{r_1 r_2}{r_1 + r_2} \left(\frac{dV_2}{dt} \right)^{-1} \Delta P \quad (5.13)$$

Étude numérique

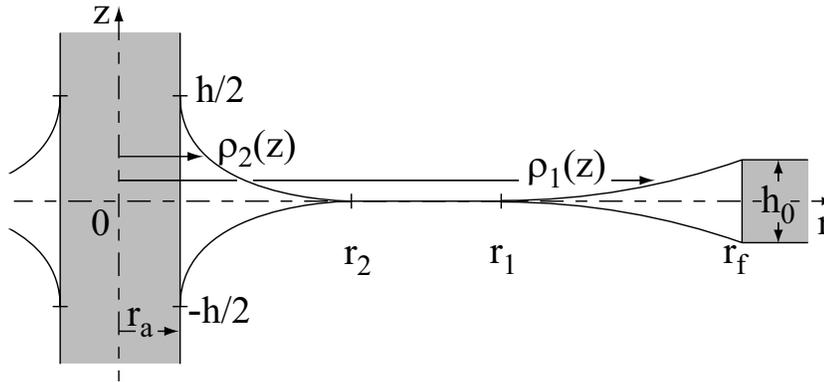


FIG. 5.5 – Notations utilisées pour la résolution numérique du profil de chaque ménisque. Les tailles des ménisques ne sont pas fidèles à la réalité pour plus de clarté.

Afin de pouvoir mesurer directement C avec cette équation, il faut connaître précisément le volume et la pression de chaque ménisque en fonction des quantités mesurées expérimentalement x_1 et r_2 . Ceci peut être réalisé en sachant qu'un ménisque smectique a la propriété de vérifier la loi de Laplace (voir section 2.2.2). Nous devons donc résoudre numériquement cette loi pour chaque ménisque.

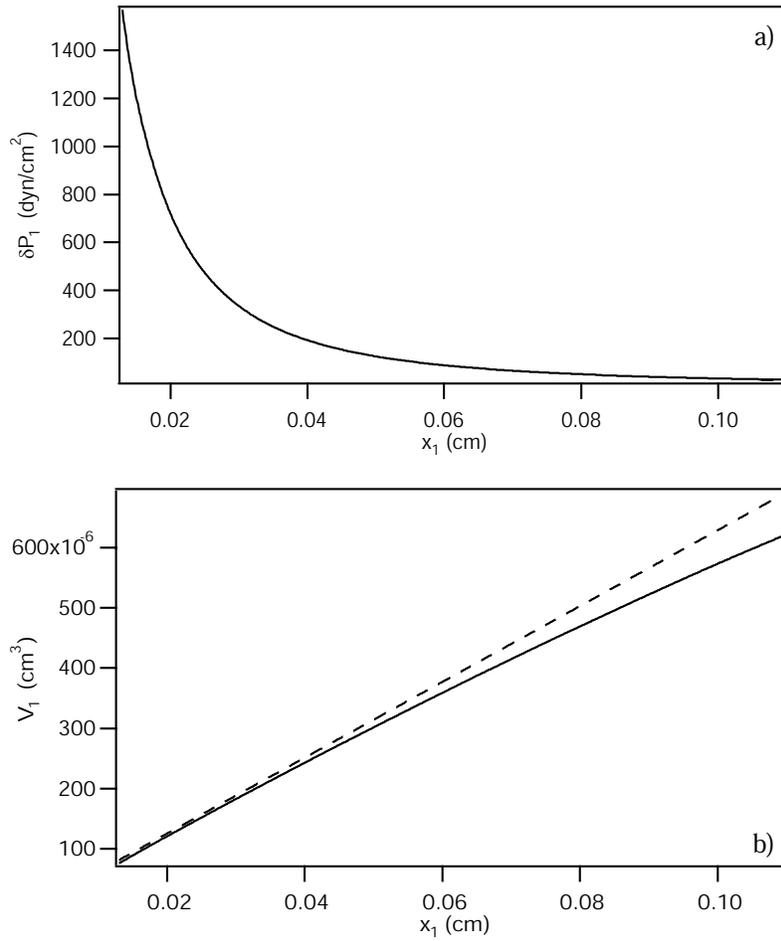


FIG. 5.6 – Différence de pression capillaire $\delta P_1(x_1)$ (a) et volume $V_1(x_1)$ (b) en fonction de la largeur x_1 du ménisque extérieur. Ces quantités ont été obtenues en résolvant numériquement les équations 5.14-5.16. La droite en pointillé a été tracée en utilisant la formule approchée $V_1 = (2/3)\pi r_f h_0 x_1$.

Pour le ménisque extérieur, de profil en coordonnées polaires $\rho_1(z)$ (voir figure 5.5), la loi de Laplace s'écrit :

$$\frac{\rho_1''}{(1 + \rho_1'^2)^{3/2}} - \frac{1}{\rho_1 \sqrt{1 + \rho_1'^2}} = -\frac{\delta P_1}{\gamma} \quad (5.14)$$

où γ est la tension de surface et $\delta P_1 = P_{air} - P_1 > 0$ la différence de pression entre la pression atmosphérique P_{air} et l'intérieur du ménisque. La résolution numérique de cette équation différentielle du second ordre avec les conditions aux limites :

$$\rho_1(0) = r_1 = r_f - x_1, \quad \rho_1'(0) = +\infty, \quad \rho_1(h_0/2) = r_f \quad (5.15)$$

donne la pression capillaire $\delta P_1(x_1)$ et le profil $\rho_1(z)$ dont on déduit, par intégration, le volume du ménisque $V_1(x_1)$:

$$V_1(x_1) = 2 \int_0^{h_0/2} \pi(r_f^2 - \rho_1^2(z, x_1)) dz. \quad (5.16)$$

Les fonctions $\delta P_1(x_1)$ et $V_1(x_1)$ sont tracées sur la figure 5.6. Remarquons que nous avons supposé lors de ce calcul que la hauteur du ménisque en $r = r_f$ est exactement égal à l'épaisseur du cadre h_0 . Cette condition aux limites peut être vérifiée en observant le cadre en incidence rasante. On constate alors qu'aucun excès de matière à la surface du cadre n'est visible. Une autre vérification, plus convaincante, de ce point important consiste à mesurer le rayon de courbure du ménisque à l'aide des franges d'interférence (technique rappelée dans la section 2.1.2). En supposant le profil du ménisque circulaire et en connaissant sa largeur x_1 , cette mesure permet de calculer sa hauteur h au niveau du cadre en $r = r_f$. La valeur trouvée est égale à l'épaisseur du cadre $h(r = r_f) = h_0$ à $\pm 2 \mu\text{m}$, confirmant l'hypothèse du départ.

La même étude numérique peut être appliquée au ménisque entourant l'aiguille. En notant $\rho_2(z)$ le profil de ce ménisque (figure 5.5) et $\delta P_2 = P_{air} - P_2 > 0$ la différence de pression capillaire, l'équation de Laplace s'écrit :

$$\frac{\rho_2''}{(1 + \rho_2'^2)^{3/2}} - \frac{1}{\rho_2 \sqrt{1 + \rho_2'^2}} = \frac{\delta P_2}{\gamma} \quad (5.17)$$

avec pour conditions aux limites (figure 5.5) :

$$\rho_2(0) = r_2, \quad \rho_2'(0) = -\infty, \quad \rho_2'(h/2) = 0, \quad \rho_2(h/2) = r_a \quad (5.18)$$

La résolution de cette équation donne la pression capillaire $\delta P_2(r_2)$, la hauteur h du ménisque au niveau de l'aiguille et son profil $\rho_2(z)$ dont on déduit, par intégration, le volume $V_2(r_2)$:

$$V_2(r_2) = 2 \int_0^{h/2} \pi(\rho_2^2(z, r_2) - r_a^2) dz. \quad (5.19)$$

Les fonctions $\delta P_2(r_2)$ et $V_2(r_2)$ sont tracées sur la figure 5.7.

Notons que dans les équations 5.14 et 5.17, les deux termes du membre de gauche correspondent, respectivement, à la courbure principale de l'interface dans le plan contenant sa normale ($1/R_a$) et à la courbure secondaire de l'interface dans le plan orthogonal à sa normale ($1/R_b$). Pour le ménisque extérieur, le second terme est toujours négligeable ($1/R_a \gg 1/R_b$). Par conséquent, le profil du ménisque est quasiment circulaire et son volume peut s'exprimer au premier ordre en x_1/R_1 comme $V_1 \approx (2/3)\pi r_f h_0 x_1$. Cette formule définit une droite, tracée en pointillé sur la figure 5.6, qui s'écarte tout de même de la vraie valeur du volume quand la largeur du ménisque x_1 est non négligeable devant le rayon du cadre r_f . Au contraire pour le ménisque intérieur, $1/R_a \sim 1/R_b$ à cause du petit rayon de l'aiguille r_a . Les deux termes doivent donc être conservés, imposant une résolution numérique dont le résultat est montré sur la figure 5.7.

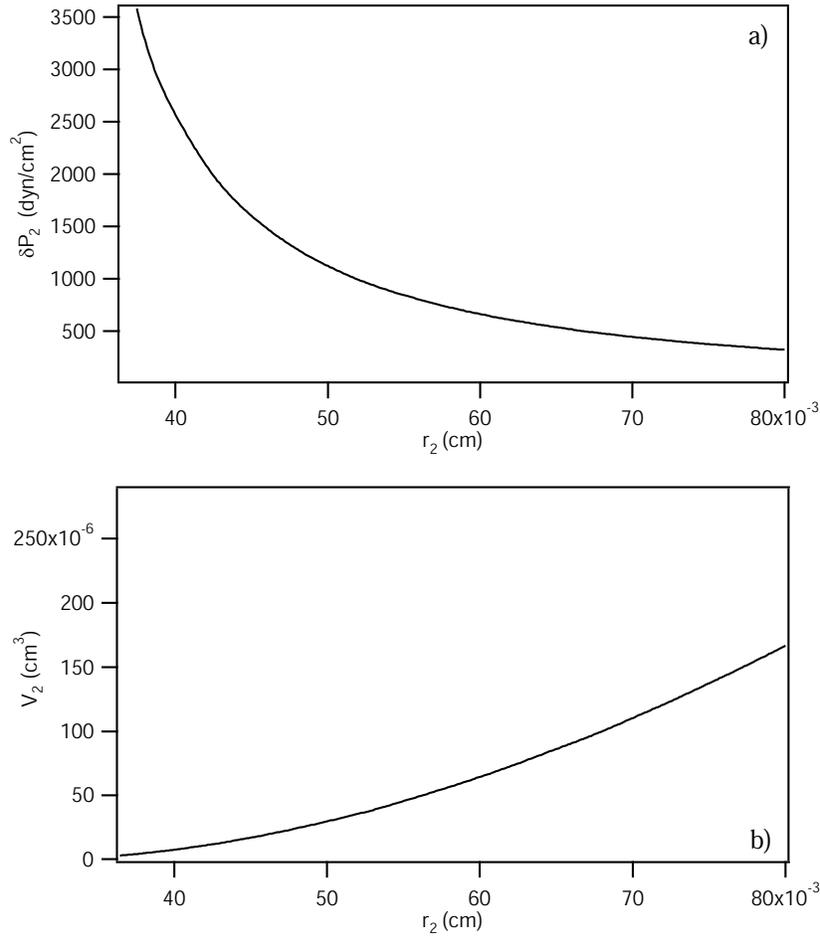


FIG. 5.7 – Différence de pression capillaire $\delta P_2(r_2)$ (a) et volume $V_2(r_2)$ (b) en fonction du rayon r_2 du ménisque entourant l’aiguille. Ces quantités ont été obtenues en résolvant numériquement les équations 5.17-5.19.

Nous pouvons maintenant estimer $C(N)$ à partir des courbes $x_1(t)$ et $r_2(t)$ mesurées expérimentalement. En effet, pour chaque ensemble de données $[x_1(t), r_2(t)]$, nous pouvons déduire $[\delta P_1(t), \delta P_2(t)]$ et $[V_1(t), V_2(t)]$ des courbes numériques tracées sur les figures 5.6 et 5.7. Nous pouvons alors calculer la différence de pression $\Delta P = P_1 - P_2 = \delta P_2 - \delta P_1$ et dV_1/dt (en principe égal à $-dV_2/dt$ si le volume total du système est conservé, ce que nous avons supposé, et vérifié expérimentalement, depuis le début). Ainsi, la constante de dissipation $C(N)$ est directement obtenue en utilisant l’équation 5.13.

5.2.3 Résultats expérimentaux

Exemple avec un film de 633 couches

Un exemple de l’ensemble des données obtenues avec un film de 633 couches est représenté sur la figure 5.8. Le premier graphique montre la mesure absolue de x_1 et r_2 en fonction du temps. Ces valeurs sont obtenues en déplaçant le système (film+cadre+aiguille) sous le

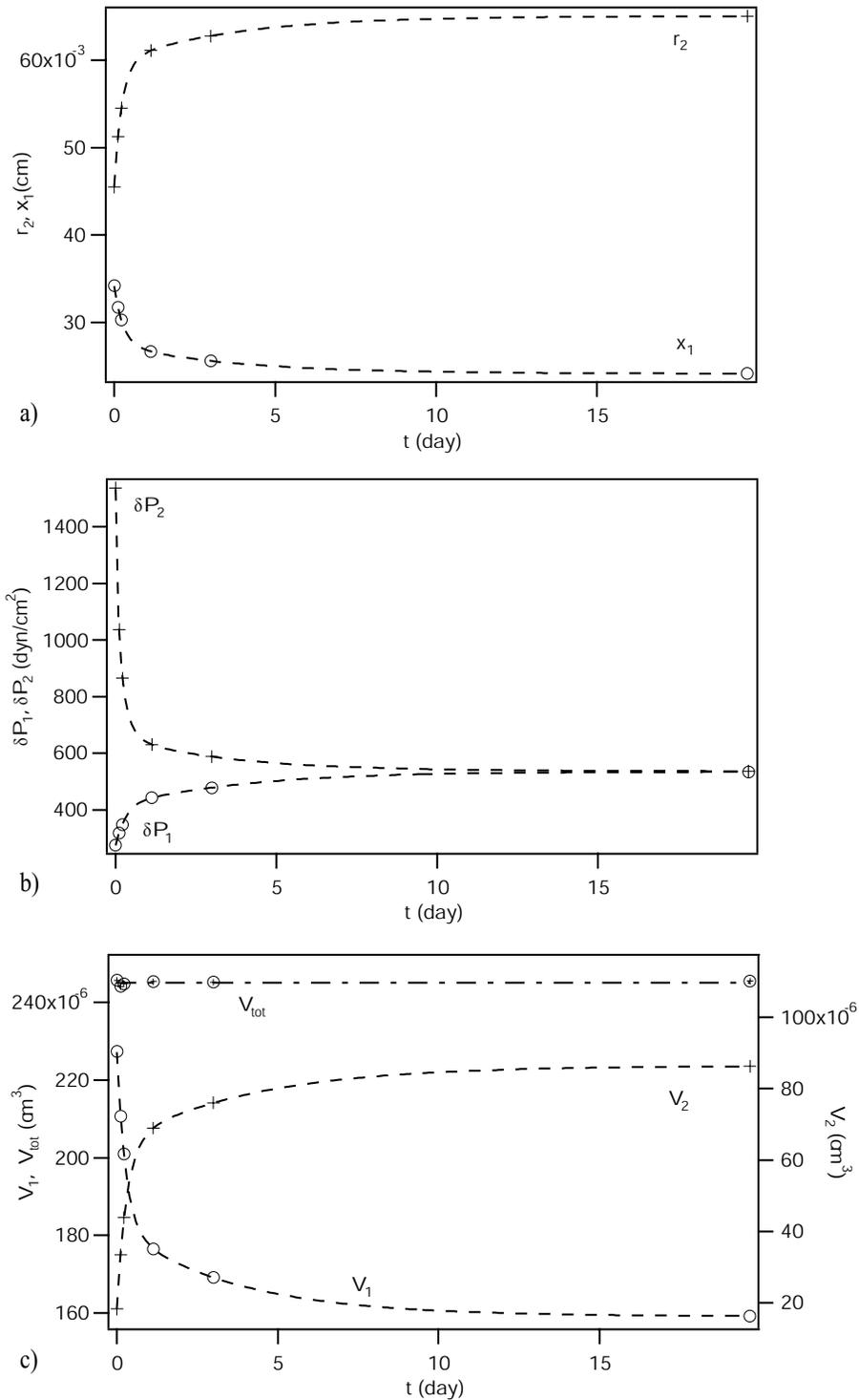


FIG. 5.8 – Données expérimentales obtenues avec un film de 633 couches. (a) Rayon r_2 et largeur x_1 mesurés expérimentalement en fonction du temps. (b) Pressions capillaires δP_1 et δP_2 déduites des graphiques 5.6a et 5.7a. (c) Volumes V_1 et V_2 déduits des graphiques 5.6b et 5.7b. Ces graphes montrent que les pressions à l'intérieur des deux ménisques ont besoin de deux semaines pour s'équilibrer. Le volume total $V_{tot} = V_1 + V_2$ est aussi tracé sur (c) ; il est constant indiquant que la matière est conservée. Les lignes en pointillé sont juste des guides visuels.

microscope avec une platine de déplacement micro-contrôle. Le bord de chaque ménisque se raccordant au film est localisé en réflexion grâce à la première frange d'interférence. La précision de ces mesures est de l'ordre de $\pm 3 \mu\text{m}$. Le deuxième graphique indique comment varie la pression capillaire dans chaque ménisque (en dépression par rapport à la pression atmosphérique) en fonction du temps. Comme prévu, les pressions sont différentes au départ et tendent à s'équilibrer au cours du temps. Deux semaines sont nécessaires pour qu'elles s'équilibrent. Le troisième graphique reporte le volume de chaque ménisque en fonction du temps. Comme prévu, le ménisque extérieur, de pression plus élevée ($P_1 = P_{air} - \delta P_1$), se vide dans le ménisque intérieur. Le volume total $V_{tot} = V_1 + V_2$ est aussi reporté, il reste constant au cours de l'expérience indiquant que le système ne fuit pas. Ce point était important à vérifier car le cristal liquide aurait pu couler par capillarité sur la surface du cadre ou de l'aiguille. Ces courbes montrent aussi que la relaxation se fait en deux étapes :

- Une première rapide qui dure un jour, pendant laquelle la différence de pression ΔP entre les deux ménisques est supérieure à environ 100 dyn/cm^2 .
- Une seconde pendant laquelle la relaxation se ralentit fortement, le système mettant deux semaines pour atteindre l'équilibre. Ce ralentissement est systématiquement observé dans toutes nos expériences, quelle que soit l'épaisseur du film, dès que ΔP est typiquement inférieure à 100 dyn/cm^2 .

De ces mesures, il est possible (en principe) d'extraire la valeur de C en utilisant l'équation 5.13. Cela nécessite cependant de calculer la variation de volume dV_2/dt à partir de la courbe expérimentale $V_2(t)$, ce qui est impossible avec celle donnée sur la figure 5.8c, à cause du manque de précision des données. En effet, si la mesure absolue de x_1 et r_2 est suffisamment précise pour vérifier la conservation du volume total pendant toute l'expérience, elle ne l'est pas assez pour déterminer dV_2/dt .

Pour obtenir une valeur plus précise de cette quantité, nous avons mesuré très précisément, entre chaque détermination absolue de x_1 et r_2 , la variation relative du rayon $r_2(t)$ (ou de $x_1(t)$) sur plusieurs heures. Pour cela, nous enregistrons, à intervalles de temps réguliers, l'image obtenue avec le microscope du bord du ménisque (durant cette séquence, le film reste fixe par rapport au microscope). Un objectif de très fort grossissement ($40\times$) et une caméra haute résolution (Hamamatsu C4742–95) sont utilisés pour augmenter la précision. Chaque image est alors analysée afin de déterminer la position du bord du ménisque. Puisque le ménisque se raccorde tangentiellement au film, il est impossible de localiser le bord visuellement. Pour cette raison, nous traçons le profil de l'intensité réfléchie qui présente des franges d'interférence (voir figure 2.2). La variation relative de r_2 (ou de x_1) est mesurée avec une très grande précision ($\pm 0,5 \mu\text{m}$) en repérant la première frange, ce qui suppose qu'elle est à une distance constante du bord. Cette hypothèse n'est pas tout à fait juste car le rayon de courbure du ménisque évolue un peu au cours de la séquence, mais il est possible de vérifier que l'erreur commise en mesurant dr_2/dt de cette façon est inférieure à 1%. Une séquence de 2 heures réalisée au cours de l'étape de relaxation rapide est montrée sur la

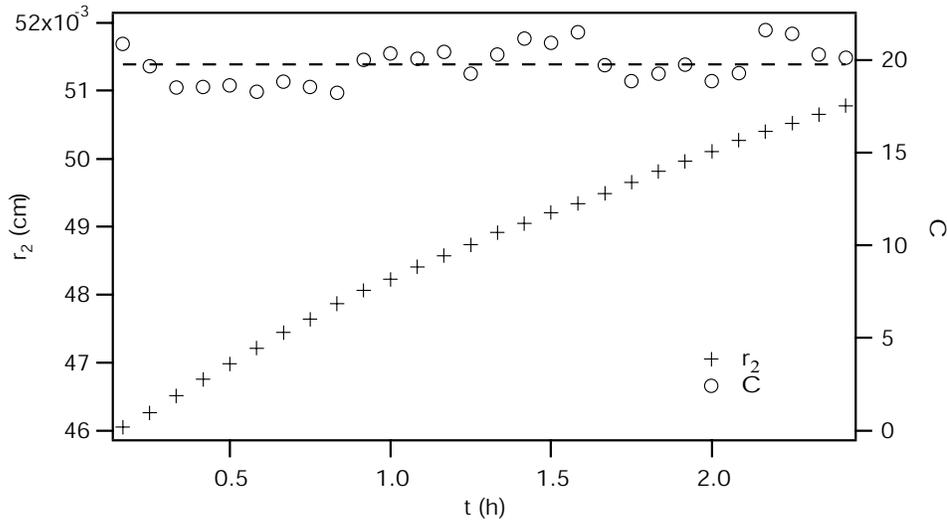


FIG. 5.9 – Estimation de la constante C avec un film de 633 couches au cours de l'étape de relaxation rapide (entre les deux premiers points de r_2 sur la figure 5.8). Elle est déduite de la mesure relative très précise du rayon r_2 du ménisque entourant l'aiguille.

figure 5.9. L'intervalle de temps entre deux mesures est de 5 mn. Pendant ces 2 heures, le bord du ménisque (première frange) a bougé de $50 \mu\text{m}$, ce qui représente 10% de la valeur absolue moyenne de r_2 . Cette mesure permet de déterminer dV_2/dt avec précision. Puisque x_1 ne peut pas être mesuré en même temps, il est nécessaire de le calculer, ce qui est possible en sachant que le volume total est conservé, x_1 pouvant être déduit de $V_1 = V_{tot} - V_2$. De cette façon, toutes les quantités de l'équation 5.13 sont obtenues précisément au cours de la séquence, ce qui permet d'en déduire C en fonction du temps. La figure 5.9 montre que C est constant, aux erreurs expérimentales près.

Les résultats expérimentaux montrent donc que la valeur de C est constante au cours de l'étape de relaxation rapide.

En revanche, elle augmente fortement au cours du temps quand la mesure est réalisée pendant la seconde étape, lorsque la différence de pression ΔP tombe typiquement en dessous de 100 dyn/cm^2 , ce que nous discuterons par la suite.

Résultats expérimentaux

Cette expérience a été répétée en changeant l'épaisseur du film et pour des ménisques de différentes tailles. Dans tous les cas, C a été mesuré pendant la première étape de relaxation rapide. Nous avons vérifié que C était constant (indépendante de la taille des ménisques) pour chaque film. En revanche, ces mesures montrent que C augmente fortement quand l'épaisseur du film N diminue, ce que nous remarquons sur la figure 5.10. De plus, ce graphique, en représentation log-log, montre que sur toute la gamme des épaisseurs étudiées, C varie comme :

$$C(N) = \left(\frac{N_G}{N}\right)^2 \quad (110 < N < 2000) \quad (5.20)$$

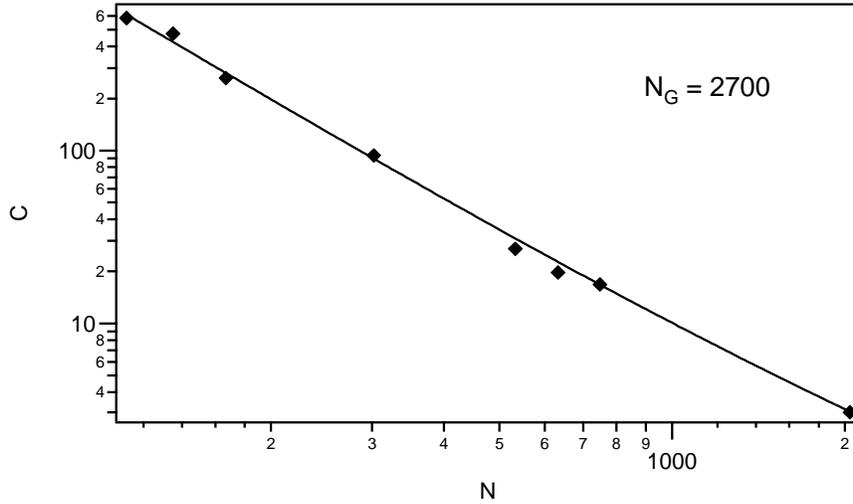


FIG. 5.10 – Estimation de la constante C avec un film de 633 couches au cours de l'étape de relaxation rapide (entre les deux premiers points de r_2 sur la figure 5.8). Elle est déduite de la mesure relative très précise du rayon r_2 du ménisque entourant l'aiguille.

avec $N_G \approx 2700$ couches, quelle que soit la taille du ménisque. La constante de dissipation a donc le même comportement que celui prédit par le modèle dans les films épais (équation 4.4) où les dislocations qui composent le ménisque sont traitées, du point de vue hydrodynamique, comme une dislocation géante de vecteur de Burgers $N_G d$. Cette expérience permet donc de valider ce modèle¹, d'autant plus que la valeur de $N_G \approx 2700$ qui définit la variation d'épaisseur du ménisque dans la zone où est localisée la dissipation, correspond exactement à la zone bien orientée à l'entrée du ménisque (d'extension latérale de l'ordre d'une centaine de μm comme on le voit sur la photo 2.1, voir section 4.2).

Remarquons que dans ce modèle, nous avons implicitement négligé la dissipation dans la zone désorganisée, à l'arrière du ménisque, en supposant qu'elle se comportait comme un réservoir parfait. Expérimentalement, cette hypothèse est clairement valide quand le saut de pression à l'entrée du ménisque est assez grand, typiquement supérieur à 100 dyn/cm^2 . Pour des valeurs inférieures, la dissipation dans cette zone devient importante et semble contrôler la seconde étape de relaxation qui devient ainsi très lente. Ce comportement pourrait s'expliquer en considérant que cette zone, remplie de coniques focales, se comporte comme un liquide à seuil. Les mesures de viscosité de cisaillement d'une phase smectique en présence de coniques focales montrent en effet un comportement de type Bingham [31, 17], ce qui tend à confirmer cette explication.

¹Notons que dans le modèle initial [31, 32] (où les dislocations sont traitées comme une plaque mince parallèle aux couches), le comportement prédit est différent de celui observé expérimentalement, il est en effet en $1/N$ dans cette gamme d'épaisseur car il ne prend pas en compte l'effet de confinement en $(N + N_G)/N$.

Enfin, notons que la constante C devient très grande dans les films fins de moins de 100 couches. Le temps de relaxation est alors si grand, que l'expérience devient irréalisable en pratique. Par exemple, si 2 semaines sont nécessaires pour équilibrer deux ménisques reliés par un film de 600 couches, plus d'un an (72 semaines) serait nécessaire, selon l'équation 5.20, pour réaliser l'expérience avec un film de 100 couches. Par conséquent, cette méthode de mesure est seulement applicable pour les films relativement épais. C'est exactement le contraire dans l'expérience sur les boucles où la perméabilité finie du ménisque est seulement visible pour les films fins (typiquement $N < 100$ couches). Ces deux méthodes de mesure de C sont donc complémentaires. Le graphique 5.2 montre d'ailleurs les valeurs de C mesurées grâce à ces deux méthodes. Elles donnent des résultats du même ordre de grandeur dans l'intervalle de mesure commun ($100 < N < 150$), malgré des écarts non négligeables imputables vraisemblablement au manque de précision de ces deux méthodes dans cette région d'épaisseurs.

5.2.4 Conclusion

En conclusion, les deux études expérimentales présentées dans ce chapitre sont complémentaires et confirment le modèle hydrodynamique du ménisque présenté dans le chapitre précédent. Comme attendu, ce dernier se comporte comme un réservoir fortement dissipatif dont la perméabilité dépend énormément de l'épaisseur du film. En effet, en prenant pour taille de la dislocation géante effective $N_G = 2700$, et pour longueur de perméation $l_p = 190 \text{ \AA}$, la courbe théorique, en trait plein sur la figure 5.2, est en bon accord avec l'ensemble des données expérimentales. Lorsque l'épaisseur du film diminue, la constante de dissipation $C(N)$ augmente rapidement dans les films épais où le ménisque se comporte comme une dislocation géante, puis elle passe par un maximum et diminue brutalement dans les films fins. Cette diminution provient du fait que de plus en plus de dislocations à l'entrée du ménisque deviennent isolées, ce qui tend à réduire la vitesse de l'écoulement dans lequel est plongée la dislocation géante et à faire chuter C . De plus, les valeurs des deux paramètres importants, N_G et l_p , du modèle s'avèrent être particulièrement pertinentes. La valeur de N_G montre que la dissipation dans le ménisque, due aux écoulements de perméation, est bien localisée dans la zone orientée à l'entrée du ménisque. La valeur de la longueur de perméation, qui n'a jamais été mesurée directement auparavant, montre que la perméation est assez facile dans le $8CB$, ce qui est en accord avec le fait que la mobilité d'une dislocation est indépendante de sa vitesse. En effet, il a été montré théoriquement [12] que la mobilité d'une dislocation est constante et donnée par $m = l_p/\eta$ seulement si $l_p \gg \lambda$, où λ est la longueur de pénétration smectique (de l'ordre de 10 \AA dans le $8CB$ [31]). Ce critère est vérifié ici. Sachant que $\eta \sim 5$ poise et $l_p = 190 \text{ \AA}$, remarquons finalement qu'on obtient, en utilisant cette formule, une mobilité m du même ordre de grandeur que celle trouvée en mesurant la vitesse de croissance des boucles dans les films épais ou dans les expériences de

fluages ($m \simeq 4 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2\text{s/g}$ [31, 35]).

Troisième partie

Dynamique d'effondrement d'une bulle smectique

Chapitre 6

Étude théorique

Sommaire

6.1	Problématique	79
6.2	Présentation du problème	81
6.2.1	Description du système	81
6.2.2	Equation fondamentale	83
6.2.3	Contrôle de la vitesse d'effondrement	85
6.2.4	Dissipation dans le smectique Φ_{Sm}	88
6.3	Résolution du problème	89
6.3.1	Normalisation des équations	89
6.3.2	Résolution des équations	91
6.3.3	Évolution du système	91
6.4	Pression dans le film :	96
6.4.1	Déstabilisation du ménisque	97
6.4.2	Nucléation d'îlots	99
6.5	Discussion des hypothèses du problème	101
6.5.1	Effet de la compressibilité de l'air	102
6.5.2	Effets de l'inertie du film et de l'air	104
6.5.3	Récapitulatif des différents temps caractéristiques	105

6.1 Problématique

Nous avons vu dans la partie précédente que, dans les films smectiques, le ménisque se comporte comme un réservoir de matière fortement dissipatif. La dissipation est localisée à l'entrée du ménisque dans sa partie bien orientée. Plus précisément, les écoulements de perméation autour des dislocations qu'elle contient sont à l'origine de la dissipation. Nous

avons montré qu'une différence de pression entre le film et le ménisque est alors nécessaire pour échanger de la matière. Nous avons vérifié que cette chute de pression (pourvu qu'elle soit typiquement supérieure à 100 dyn/cm^2) est directement proportionnelle à la vitesse d'échange à l'entrée du ménisque, les expériences ayant été réalisées pour des vitesses très faibles, $v_{men} \sim 1 \mu\text{m}/\text{min}$, dans le régime quasi-statique. La question qui se pose maintenant est la suivante : est-ce que ce modèle linéaire est toujours valide lorsque les échanges de matière entre le film et le ménisque sont plus importants ? Ceci peut être réalisé en pratique en changeant la surface du film plus ou moins rapidement.

Il existe deux façons de faire varier la surface d'un film. La première est de changer simplement la surface du cadre. De telles expériences ont été réalisées par Pawel Pieranski et ses collaborateurs avec un cadre mobile [37]. Les mesures de la tension du film à l'aide d'un balancier ont mis en évidence quelques propriétés dynamiques très intéressantes. Elles montrent qu'en augmentant la surface d'un film smectique, la pression à l'intérieur de celui-ci chute (les couches du film se compriment) et inversement en la diminuant, la pression augmente (les couches, cette fois, se dilatent).

L'autre manière de faire varier la surface d'un film est de le gonfler d'un côté pour en faire une bulle. Patrick Oswald a réalisé le premier cette expérience avec un film smectique en 1987 [28] suivi, 10 ans plus tard, de Stannarius et coll. [49, 50, 47]. Ces expériences font intervenir un autre paramètre physique : la différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur de la bulle, notée ΔP_i . Elle est assez facilement mesurable à l'aide d'un tube en U rempli partiellement d'eau ou d'un capteur de pression. La surpression ΔP_i est directement reliée à la courbure R et à la tension du film $\tau \cong 2\gamma^1$ (où γ est l'énergie de surface smectique-air), selon la loi de Laplace :

$$\Delta P_i = \frac{2\tau}{R} \cong \frac{4\gamma}{R} \quad (6.1)$$

Cette loi a permis de mesurer la tension des films en statique pour différents composés de cristaux liquides. Ces expériences se sont essentiellement intéressées à la dépendance de γ avec la température et aux effets des transitions de phases, c'est-à-dire aux propriétés statiques du film. Elles mentionnent toutefois quelques propriétés dynamiques remarquables lors des changements plus ou moins rapide de la surface du film. En effet, les observations expérimentales réalisées ces dernières années [37, 28, 49, 50] mettent en évidence deux régimes :

- un régime lent où le ménisque parvient à échanger de la matière, le film gardant ainsi une épaisseur uniforme.
- un régime plus rapide où le ménisque résiste tellement qu'il ne peut plus échanger suffisamment de matière ; le film est alors contraint de créer des boucles de dislocations qui sont des pores lorsque sa surface augmente et des îlots quand elle diminue.

¹On néglige ici les effets de pression hydrostatique dans le ménisque qui sont très petits en statique et difficilement mesurable par cette technique.

Ces propriétés ont été très peu étudiées et n'ont pas encore trouvé d'explications satisfaisantes. C'est pour cette raison que nous avons repris, pendant la dernière partie de ma thèse, l'étude de la dynamique d'une bulle smectique. Pour caractériser le comportement de réservoir du ménisque, le cas d'une bulle semble le mieux adapté pour deux raisons. Premièrement, lorsqu'on fait varier la surface du film en gonflant une bulle, la longueur du ménisque ne change pas, contrairement aux expériences réalisées avec un cadre mobile, puisqu'elle est fixée par le support circulaire. Deuxièmement, comme nous venons de le souligner, la différence de pression ΔP_i entre l'intérieur et l'extérieur de la bulle est un paramètre physique important facilement mesurable. Nous allons montrer dans ce chapitre que la loi de Laplace statique n'est plus vérifiée en régime dynamique et que l'écart à cette loi permet de caractériser et de mesurer la dissipation dans le système. Par souci de clarté, nous allons commencer par une étude théorique de ce problème, puis nous décrirons l'expérience et nous analyserons les résultats obtenus.

6.2 Présentation du problème

Nous nous sommes intéressés à la dynamique d'effondrement d'une bulle. De plus, afin d'étudier des variations plus ou moins rapides de la surface du film, nous vidons l'air contenu dans la bulle à travers un capillaire plus ou moins long.

6.2.1 Description du système

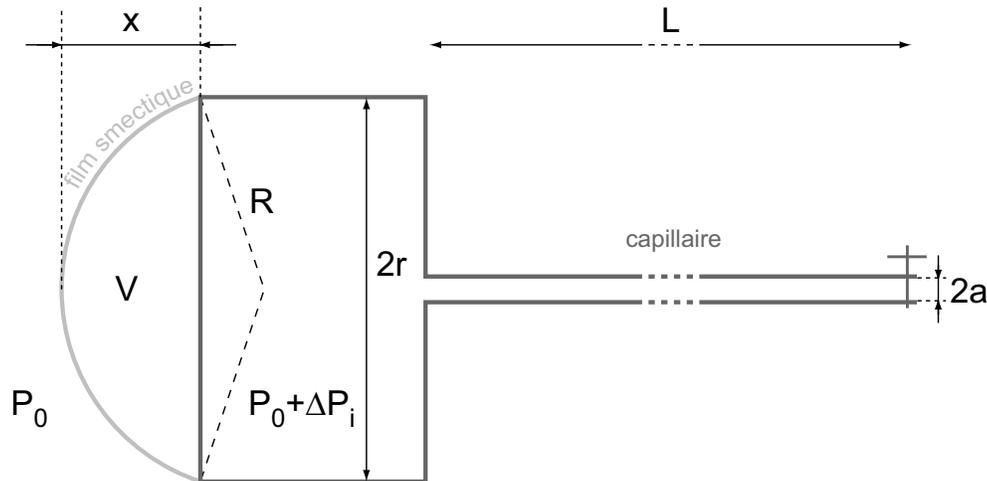


FIG. 6.1 – Schéma du système bulle-capillaire.

Le système étudié est représenté sur le schéma 6.1. Il est constitué d'une bulle gonflée sur un support cylindrique de rayon r . Ce support est directement relié à un capillaire de

longueur L et de rayon intérieur a . Une vanne à l'autre extrémité du capillaire ferme le système. La pression à l'intérieur du système est $P_0 + \Delta P_i$, P_0 étant la pression à l'extérieur.

La bulle est constituée d'un film smectique de N couches, d'épaisseur $H = Nd$, d étant l'épaisseur d'une couche; la tension de surface smectique-air est γ . Enfin, la bulle est une calotte sphérique pouvant être décrite par sa hauteur x , son rayon de courbure R , sa surface S et son volume V . Ces paramètres sont reliés entre eux par les relations suivantes :

$$V = \frac{\pi}{6}x(x^2 + 3r^2) \quad (6.2)$$

$$S = \pi(x^2 + r^2) \quad (6.3)$$

$$R = \frac{x^2 + r^2}{2x} \quad (6.4)$$

Avant l'effondrement, aux temps $t < 0$, le système est fermé; la bulle est à l'équilibre et vérifie la loi de Laplace (éq. 6.1) reliant la surpression à l'intérieur du système ΔP_i à la courbure de la bulle. Remarquons que lorsque l'on gonfle une bulle, la pression à l'intérieur du système augmente puis diminue; cette propriété, qui peut paraître contre-intuitive, est donnée par la loi de Laplace. En effet, les équations 6.1 et 6.4 permettent de calculer l'évolution de la surpression ΔP_i en fonction de la hauteur de la bulle x . Cette quantité est tracée sur la figure 6.2. La courbe met bien en évidence un maximum de pression, d'expression $\Delta P_{max} = 4\gamma/r$, lorsque le rayon de la bulle est égal au rayon du support ($x = r$), c'est-à-dire lorsque le rayon de courbure est minimum. Ainsi, pour une surpression donnée, il

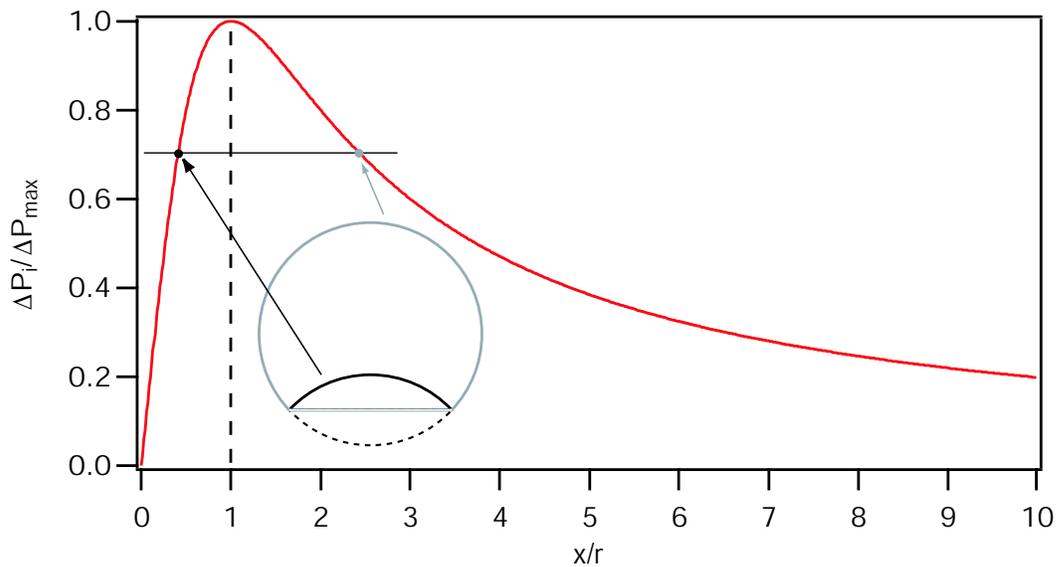


FIG. 6.2 – Loi de Laplace : Evolution de la surpression à l'intérieur d'une bulle normalisée par ΔP_{max} en fonction de la hauteur d'une bulle normalisée par le rayon du cadre r . $\Delta P_{max} = 4\gamma/r$ est la surpression maximale obtenue pour $x = r$; pour une surpression inférieure, il existe deux hauteurs de bulle correspondant aux deux calottes sphériques complémentaires de même courbure.

existe deux hauteurs de bulle correspondant aux deux calottes sphériques complémentaires de même courbure (voir fig. 6.2).

Au temps $t = 0$, la vanne est ouverte instantanément, entraînant la vidange du volume d'air contenu dans la bulle à travers le capillaire. Mettons maintenant en équation cette dynamique.

6.2.2 Equation fondamentale

Nous supposons dans cette partie que l'air est incompressible et nous négligerons les termes inertiels associés au film et à l'air ; par souci de clarté, nous discuterons et justifierons ces hypothèses dans les sections suivantes.

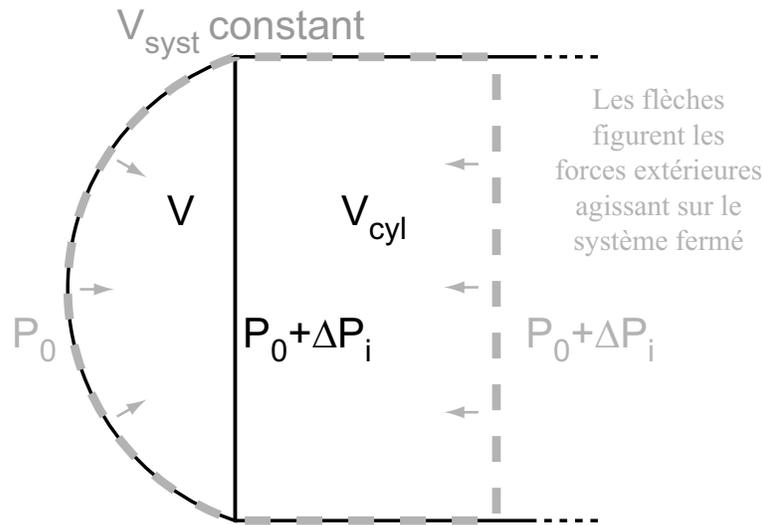


FIG. 6.3 – Le système fermé choisi pour faire le bilan énergétique est entouré par le trait en pointillé. Il comprend le film, le ménisque et un volume d'air constant ($V_{syst} = V + V_{cyl}$) contenant le volume de la bulle V et une partie du volume intérieur du support cylindrique V_{cyl} .

Afin de calculer la dynamique de la bulle, réalisons un bilan énergétique. Nous devons donc choisir un système fermé qui est décrit sur la figure 6.3. Ce système est constitué du film de surface S , du ménisque, du volume d'air contenu dans la bulle V et dans la partie cylindrique V_{cyl} de telle sorte que le volume du système soit constant : $V_{syst} = V + V_{cyl}$.

Lors de l'effondrement de la bulle, le moteur de l'évolution du système est le gain en énergie de surface du film par unité de temps, il est donc négatif et s'écrit $2\gamma dS/dt$. De plus, l'énergie dissipée par unité de temps dans le système est localisée dans le film et le ménisque² ; nous la noterons Φ_{Sm} . Cette quantité est positive et sera caractérisée par la suite. La somme de ces deux termes représente la variation de l'énergie du système par unité de temps qui est égale à la puissance des forces extérieures $P_{f_{ext}}$, soit :

²Sachant que la dissipation dans l'air contenu dans V_{syst} est complètement négligeable.

$$2\gamma \frac{dS}{dt} + \Phi_{Sm} = P_{f_{ext}} \quad (6.5)$$

Les forces extérieures exercées sur le système sont les forces de pression (fig. 6.3). D'un côté, l'air à la pression atmosphérique P_0 pousse la bulle : lorsque la variation du volume de la bulle est dV/dt , la puissance de cette force est alors $-P_0 dV/dt$, une quantité positive puisque reçue par le système. De l'autre côté, l'air dans le cylindre à la pression $P_0 + \Delta P_i$ retient le système : la puissance de cette force est $(P_0 + \Delta P_i)dV/dt$, quantité cette fois négative. La puissance des forces extérieures exercées sur le système est donc (fig. 6.3) :

$$P_{f_{ext}} = \Delta P_i \frac{dV}{dt} \quad (6.6)$$

où, nous le rappelons, ΔP_i est la surpression à l'intérieur de la bulle et dV/dt la variation de son volume. Cette puissance est négative, car elle représente la résistance que rencontre le système pour évacuer l'air contenu dans la bulle.

Finalement, le bilan énergétique s'écrit de la manière suivante :

$$\boxed{2\gamma \frac{dS}{dt} - \Delta P_i \frac{dV}{dt} + \Phi_{Sm} = 0} \quad (6.7)$$

qui est l'équation fondamentale de la dynamique d'une bulle lorsque sa surface, de tension de surface γ , varie de dS/dt tout en s'accompagnant d'une variation de volume dV/dt . De plus, la bulle étant une calotte sphérique, la variation de surface de la bulle est liée à la variation de son volume par la relation suivante :

$$\frac{dS}{dt} = \frac{2}{R} \frac{dV}{dt} \quad (6.8)$$

d'après les équations 6.2, 6.3 et 6.4. Cette relation permet de réécrire l'équation fondamentale 6.7 sous forme plus parlante, faisant apparaître la différence entre la pression capillaire statique $4\gamma/R$ et la pression réelle à l'intérieur de la bulle ΔP_i :

$$\left(\frac{4\gamma}{R} - \Delta P_i \right) \frac{dV}{dt} + \Phi_{Sm} = 0 \quad (6.9)$$

Cette équation montre que si le système est non dissipatif, la loi de Laplace est encore vérifiée en régime dynamique puisque la pression à l'intérieur de la bulle est égale à la pression capillaire.

Au contraire, si le système est dissipatif, la loi de Laplace n'est plus vérifiée en dynamique. En revanche, cette équation montre qu'il suffit de mesurer simultanément le rayon de courbure $R(t)$ de la bulle (d'où l'on déduit la pression capillaire $4\gamma/R$ et le débit dV/dt) et la surpression à l'intérieur de la bulle pour tirer directement la dissipation dans le smectique (éq. 6.9). Cette dernière vaut d'ailleurs en utilisant les équations 6.8 et 6.9 :

$$\boxed{\Phi_{Sm} = (\Delta P)_r 2\gamma \frac{dS}{dt}} \quad (6.10)$$

avec

$$\boxed{(\Delta P)_r = \left(\frac{4\gamma/R - \Delta P_i}{4\gamma/R} \right)} \quad (6.11)$$

En somme, il suffit de mesurer l'écart relatif à la loi de Laplace "statique", qui sera noté $(\Delta P)_r$ dans la suite, pour caractériser la dissipation dans le smectique lorsque la surface du film varie. Cet écart relatif $(\Delta P)_r$ représente en effet le taux d'énergie dissipée dans le smectique (Φ_{Sm}) par rapport au gain d'énergie de surface ($2\gamma dS/dt$).

6.2.3 Contrôle de la vitesse d'effondrement

Loi de Poiseuille

Puisque nous voulons étudier la dissipation dans le système pour des variations plus ou moins rapides de la surface du film, nous devons pouvoir contrôler la vitesse d'effondrement de la bulle. Une façon d'y parvenir est de vidanger la bulle au travers d'un capillaire plus ou moins long (voir figure 6.1), de longueur L et de rayon a . En effet, l'écoulement de l'air dans le capillaire est fixé par la Loi de Poiseuille qui relie la différence de pression à ses extrémités ΔP_i , au débit associé à la variation du volume de la bulle dV/dt , soit :

$$\boxed{\Delta P_i = - \frac{8\eta_a L}{\pi a^4} \frac{dV}{dt}} \quad (6.12)$$

où η_a est la viscosité dynamique de l'air. Cette loi traduit la dissipation liée à l'écoulement de l'air dans le capillaire. Notons que d'après cette équation, le deuxième terme dans le membre de gauche de l'équation fondamentale 6.7 s'identifie à l'énergie dissipée par unité de temps dans le capillaire Φ_{cap} :

$$\Phi_{cap} = \frac{8\eta_a L}{\pi a^4} \left(\frac{dV}{dt} \right)^2 \quad (6.13)$$

Lors de l'effondrement de la bulle, la dissipation dans le capillaire et dans le système "film + ménisque" est ainsi compensée (éq. 6.7) par le gain en énergie de surface du film qui est le moteur de la dynamique.

Évaluons maintenant l'ordre de grandeur du temps de vidange de la bulle $t_{vidange}$, en prenant comme condition initiale une bulle de hauteur égale au rayon du support $x = r$ (demi sphère) et en négligeant les effets de la dissipation dans le film (qui ralentissent la dynamique). Lors de l'effondrement, le débit dV/dt est de l'ordre du volume initial de la bulle $(2/3)\pi r^3$ divisé par le temps de vidange $t_{vidange}$, tandis que la surpression ΔP_i est de l'ordre de la pression initiale $4\gamma/r$. En remplaçant ces termes par leurs expressions dans la loi de Poiseuille, on trouve :

$$t_{vidange} = \frac{4}{3} \frac{\eta_a L r^4}{\gamma a^4} \quad (6.14)$$

Le temps de vidange est ainsi proportionnel à la longueur du capillaire L et inversement proportionnel à la tension de surface γ représentant la force motrice de la vidange.

Critère de validité

Une question se pose sur la stabilité de l'écoulement de Poiseuille. Pour démontrer la loi 6.12, l'écoulement est supposé laminaire. Dans ce cas, le nombre de Reynolds de l'écoulement dans le capillaire doit être inférieur à une valeur critique de l'ordre de 10^3 [53], soit :

$$Re = \frac{2a\rho_a v_a}{\eta_a} < 10^3 \quad (6.15)$$

où ρ_a est la masse volumique de l'air, η_a sa viscosité et v_a la vitesse moyenne de l'air dans le capillaire. En prenant les ordres de grandeur précédents et la vitesse v_a étant approximativement égale au débit divisé par la section du capillaire πa^2 , le nombre de Reynolds vaut :

$$Re = \frac{\rho_a \gamma a^3}{\eta_a^2 L r} \quad (6.16)$$

Le critère 6.15 impose donc une longueur minimale du capillaire si l'on se fixe son rayon a . Prenons, par exemple, $a = 0,04$ cm, $r = 0,5$ cm, $\gamma = 30$ dyn/cm², $\rho_a = 1,2 \cdot 10^{-3}$ g/cm³ et $\eta_a = 1,8 \cdot 10^{-4}$ Poise. Nous trouvons alors que la longueur du capillaire doit être supérieure à $5 \cdot 10^{-4}$ cm, ce qui n'est pas du tout restrictif.

En fait, il existe un critère beaucoup plus fort dû aux effets de bord. À l'entrée du capillaire, l'écoulement est du type "bouchon" et il faut une certaine longueur δ pour que l'écoulement de Poiseuille s'établisse (profil des vitesses parabolique). Cette longueur est reliée aux propriétés de l'écoulement (Re) et au rayon du capillaire a par la relation suivante [53] :

$$\delta \sim \frac{Re}{15} a \quad (6.17)$$

Ainsi, l'effet de bord est négligeable et la loi de Poiseuille 6.12 est vérifiée si la longueur du capillaire est beaucoup plus grande que δ . En prenant comme critère critique $\delta \sim L/100$ et en se fixant le rayon du capillaire a , les relations 6.17 et 6.16 mettent en évidence une longueur critique minimale du capillaire L^{min} qui s'écrit :

$$L^{min} \sim \sqrt{\frac{100}{15}} \sqrt{\frac{\rho_a \gamma}{\eta_a^2 r}} a^2 \quad (6.18)$$

Cette longueur varie comme a^2 . En utilisant les valeurs précédentes des différents paramètres, on trouve $L^{min} \sim 4 \cdot 10^3 a^2$ (où a et L^{min} sont donnés en cm). D'après l'équation 6.14, pour un rayon de capillaire donné a , ce critère fixe un temps de vidange minimal variant comme l'inverse de a^2 :

$$t_{vidange}^{min} \sim \frac{2 \cdot 10^{-3}}{a^2} \quad (6.19)$$

Ainsi, il faudra, pour pouvoir réaliser une vidange *rapide* de la bulle contrôlée par la loi de Poiseuille (de l'ordre de la seconde, typiquement), utiliser un capillaire de *grand* rayon (gamme du mm), tout en s'assurant que sa longueur respecte le critère $L > L^{min}$.

Mais, il y a encore une autre hypothèse à vérifier. En effet, la loi de Poiseuille est démontrée pour un écoulement stationnaire. Revenons à l'équation de Navier-Stokes régissant l'écoulement de Poiseuille dans le capillaire :

$$\rho_a \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = -\overrightarrow{grad}P + \eta_a \Delta \vec{v} \quad (6.20)$$

Comme l'écoulement est ici laminaire, le terme non-linéaire de transport convectif est nul. De plus, dans la loi de Poiseuille, le gradient de pression compense exactement le terme visqueux ; cette loi n'est donc valable que si le terme inertiel est négligeable devant l'un ou l'autre de ces deux termes. Ainsi, pour que l'effondrement de la bulle soit contrôlé par la loi de Poiseuille, il faut que les variations de vitesse dans le temps ne soient pas trop grandes. Or, lors de la vidange de la bulle, la vitesse de l'air dans le capillaire v_a varie sur une échelle de temps de l'ordre de $t_{vidange}$ (éq. 6.14). Pour que le terme inertiel, de l'ordre de $\rho_a v_a / t_{vidange}$, soit négligeable par rapport au terme visqueux de l'ordre de $\eta_a v_a / a^2$, il faut donc que le temps de vidange $t_{vidange}$ soit beaucoup plus grand que le temps caractéristique t_{ic} associé à l'inertie de l'air dans le capillaire, ce qui s'écrit :

$$t_{vidange} \gg t_{ic} \sim \frac{\rho_a a^2}{\eta_a} \quad (6.21)$$

Remarquons qu'au début de la vidange, lors de l'ouverture de la vanne, la vitesse de l'air dans le capillaire doit passer de zéro à une vitesse fixée par l'écoulement de Poiseuille dans le capillaire. Ce processus étant contrôlé par les effets inertiels, t_{ic} représente le temps typique de ce régime transitoire. Ainsi, pour pouvoir négliger ces effets inertiels, il faut que la vidange ne soit pas trop rapide, ce que traduit l'équation 6.21.

Puisque t_{ic} varie comme le carré de a , ce critère est d'autant mieux vérifié que le rayon du capillaire a est petit, contrairement au critère précédent associé aux effets de bord.

Pour pouvoir réaliser une vidange de la bulle la plus rapide possible tout en respectant ces deux critères, il faut donc choisir une *valeur intermédiaire* de a que nous pouvons qualifier d'*optimale*. Le tableau 6.1 compare, pour différentes valeurs du rayon a du capillaire, le temps inertiel t_{ic} au temps de vidange minimum $t_{vidange}^{min}$ qui est fixé par une longueur minimale du capillaire L^{min} (effets de bord négligeables). Nous avons choisi un rayon du support r égal à 0,5 cm pour calculer ces valeurs sachant que $\gamma = 30 \text{ dyn/cm}^2$, $\rho_a = 1,2 \cdot 10^{-3} \text{ g/cm}^3$ et $\eta_a = 1,8 \cdot 10^{-4} \text{ poise}$. Ce tableau montre que la valeur optimale de a est de l'ordre de $4 \cdot 10^{-2} \text{ cm}$. Dans ces conditions, l'expérience d'effondrement la plus rapide qui pourra être effectuée en respectant tous les critères, durera environ 1 s.

rayon a (cm)	L^{min} (cm)	$t_{vidange}^{min}$ (s)	t_{ic} (s)
$2 \cdot 10^{-2}$	1,5	5	$3 \cdot 10^{-3}$
$4 \cdot 10^{-2}$	6	1,2	10^{-2}
$8 \cdot 10^{-2}$	24	$3 \cdot 10^{-1}$	$4 \cdot 10^{-2}$
$16 \cdot 10^{-2}$	96	$7 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-1}$

TAB. 6.1 – Comparaison, pour différentes valeurs du rayon a du capillaire, du temps inertiel t_{ic} avec le temps de vidange minimum $t_{vidange}^{min}$ qui est fixé par une longueur minimale du capillaire L^{min} (effets de bord négligeables). Tous les critères sont bien respectés pour les deux premières valeurs de a , ce qui fixe à 1 s environ le temps de vidange minimal exploitable expérimentalement.

6.2.4 Dissipation dans le smectique Φ_{Sm}

Afin de résoudre l'équation fondamentale de ce problème (eq. 6.7), nous devons maintenant modéliser la dissipation Φ_{Sm} dans le système "film + ménisque". Lors de l'effondrement de la bulle smectique, la diminution de la surface du film est à l'origine de la dissipation. En effet, si l'épaisseur du film reste constante, la matière contenue dans l'excès de surface doit pénétrer dans le ménisque. Or, nous avons vu dans la partie précédente que le ménisque se comporte comme un réservoir de matière fortement dissipatif. Plus précisément, pour générer un écoulement entre le film et le ménisque, la pression à l'intérieur du film P_N doit être supérieure à la pression dans le ménisque P_{men} , la différence de pression $\Delta P_{film} = P_N - P_{men}$ étant d'autant plus grande que la dissipation est importante. Ainsi, l'énergie dissipée par unité de temps dans le système Φ_{Sm} est localisée dans le ménisque ; si la surface du film varie de dS/dt , le flux de matière à l'entrée du ménisque est $-HdS/dt$ (flux entrant positif) où H est l'épaisseur du film, et Φ_{Sm} est alors égale au produit de ΔP_{film} par ce flux, soit :

$$\Phi_{Sm} = -\Delta P_{film} H \frac{dS}{dt} \quad (6.22)$$

En injectant cette relation dans l'équation fondamentale 6.9 et en utilisant la relation 6.8, une nouvelle écriture particulièrement instructive de l'équation fondamentale est obtenue :

$$\Delta P_{film} = \left(\frac{4\gamma/R - \Delta P_i}{4\gamma/R} \right) \frac{2\gamma}{H} = (\Delta P)_r \frac{2\gamma}{H} \quad (6.23)$$

Cette équation montre que la différence de pression entre le film et le ménisque ΔP_{film} est proportionnelle à l'écart relatif à la loi de Laplace $(\Delta P)_r$.

En outre, caractériser la dissipation dans le ménisque consiste à connaître la différence de pression ΔP_{film} nécessaire pour générer un écoulement de vitesse v_{men} à l'entrée du ménisque. A priori, plus ΔP_{film} est grande, plus v_{men} est grande. La relation la plus simple est une loi linéaire, qui est d'ailleurs celle que nous avons utilisée dans la partie précédente :

$$\boxed{\Delta P_{film} = \frac{C}{m} v_{men}} \quad (6.24)$$

où C représente le coefficient de dissipation et m la mobilité d'une dislocation. Cette loi phénoménologique a été confirmée expérimentalement en régime quasi-statique quand la vitesse à l'entrée du ménisque est très faible. Nous avons montré, dans la partie précédente, que C dépend fortement de l'épaisseur du film et que les écoulements de perméation autour des dislocations sont à l'origine de la dissipation localisée dans la zone orientée du ménisque. Pour résoudre le problème d'effondrement d'une bulle, nous allons utiliser à nouveau cette loi phénoménologique. Sachant que la vitesse à l'entrée du ménisque vaut $-1/(2\pi r)dS/dt$, l'énergie dissipée Φ_{Sm} s'écrit alors :

$$\boxed{\Phi_{Sm} = \frac{1}{2\pi r} \frac{CH}{m} \left(\frac{dS}{dt} \right)^2} \quad (6.25)$$

6.3 Résolution du problème

6.3.1 Normalisation des équations

Le problème de l'effondrement d'une bulle à travers un capillaire est ainsi complètement décrit par trois équations données dans la section précédente : l'équation fondamentale 6.7 associée à l'équation 6.25, qui décrivent la dynamique de la bulle, et la loi de Poiseuille 6.12, qui décrit l'écoulement de l'air dans le capillaire et contrôle la vitesse d'effondrement.

Pour simplifier l'écriture et la résolution de ces équations, commençons par les normaliser. Remarquons d'abord que la surface S et le volume V de la bulle sont des fonctions simples de sa hauteur x (eq. 6.3 et 6.2). Ainsi, hormis le temps, les deux variables pertinentes du problème sont la hauteur de la bulle x et la surpression à l'intérieur de la bulle ΔP_i . Ceci nous amène à introduire les deux variables sans dimension suivantes :

$$X = \frac{x}{r} \quad \text{et} \quad \Delta P = \frac{\Delta P_i}{\Delta P_{max}} \quad (6.26)$$

où r est le rayon du cadre et $\Delta P_{max} = 4\gamma/r$ est la surpression maximale à l'intérieur de la bulle au repos lorsque sa hauteur est égale au rayon du cadre ($X = 1$, demi-sphère).

Commençons par normaliser la loi de Poiseuille 6.12 qui contrôle le temps d'effondrement de la bulle. Remplaçons dV/dt par son expression $\pi r^3(1+X^2)/2 dX/dt$ dans l'équation 6.12. La forme obtenue suggère clairement la normalisation suivante du temps t :

$$T = \frac{t}{t_c} \quad (6.27)$$

avec

$$t_c = \frac{\eta_a L r^4}{2\gamma a^4} \quad (6.28)$$

où le temps capillaire t_c fait naturellement apparaître le temps de vidange introduit précédemment : $t_{vidange} = 8/3 t_c$. La loi de Poiseuille normalisée s'écrit alors simplement :

$$\Delta P = -2(1 + X^2) \frac{dX}{dT} \quad (6.29)$$

Normalisons maintenant l'équation fondamentale décrivant la dynamique de la bulle. Elle fait intervenir l'écart relatif à la loi de Laplace (eq. 6.23). La pression capillaire $4\gamma/R$ donnée par la tension de surface du film et sa courbure, à l'instant t , est une grandeur importante du problème. Nous la notons ΔP_l (indice l pour Laplace) sous forme normalisée :

$$\Delta P_l = \frac{4\gamma/R}{\Delta P_{max}} = \frac{2X}{1 + X^2} = \frac{r}{R} \quad (6.30)$$

La normalisation de l'équation fondamentale 6.23 associée à la loi phénoménologique 6.24 met en évidence un autre temps caractéristique t_{sm} , que l'on appellera "temps smectique", et qui caractérise la dissipation dans le smectique, tout particulièrement dans le ménisque :

$$t_{sm} = \frac{CHr}{2\gamma m} \quad (6.31)$$

En effet, lors de l'effondrement, plus le ménisque résiste (C grand) plus ce temps est grand. Il est aussi inversement proportionnel à la force motrice représentée par γ , la tension de surface du film. Ainsi, les deux équations caractérisant la dynamique d'effondrement d'une bulle dans un capillaire font apparaître deux temps caractéristiques t_c et t_{sm} .

Dans la suite, on notera ξ le rapport du temps smectique sur le temps capillaire :

$$\xi = \frac{t_{sm}}{t_c} = \frac{CHa^4}{m\eta_a L r^3} \quad (6.32)$$

Finalement, en utilisant ces paramètres, l'équation fondamentale normalisée s'écrit :

$$(\Delta P)_r = \frac{\Delta P_l - \Delta P}{\Delta P_l} = 1 - \frac{1 + X^2}{2X} \Delta P = -\xi X \frac{dX}{dT} \quad (6.33)$$

où, comme précédemment, l'écart relatif à la loi de Laplace est noté $(\Delta P)_r$. Il est directement relié à la dissipation dans le ménisque par le coefficient ξ et la variation de surface normalisée $X dX/dT$. Ajoutons que ce terme est proportionnel à la différence de pression entre le film et le ménisque.

6.3.2 Résolution des équations

La dynamique d'effondrement d'une bulle à travers un capillaire est ainsi décrite par un système de deux équations différentielles non-linéaires d'ordre 1 (éq. 6.29 et 6.33). Les deux conditions initiales nécessaires à sa résolution sont la hauteur de la bulle à $T = 0$ lors de l'ouverture de la vanne, notée X_0 et la pression à l'intérieur de la bulle, notée ΔP_0 . Notons qu'avant l'ouverture de la vanne, le système est à l'équilibre et vérifie la loi de Laplace 6.30, ce qui permet d'écrire :

$$\Delta P_0 = \frac{2X_0}{1 + X_0^2} \quad (6.34)$$

Remarquons aussi que la dynamique peut être décrite par une seule équation différentielle non-linéaire d'ordre 1 pour la variable X , en remplaçant ΔP par son expression donnée par la loi de Poiseuille 6.29 dans l'équation fondamentale 6.33. L'équation différentielle obtenue s'écrit :

$$\left[\frac{(1 + X^2)^2}{X} + \xi X \right] \frac{dX}{dT} = -1 \quad (6.35)$$

C'est une équation différentielle à variables X et T séparables que l'on peut facilement résoudre. Le résultat obtenu est le suivant :

$$T(X) = \left(1 + \frac{\xi}{2}\right) (X_0^2 - X^2) + \frac{1}{4} (X_0^4 - X^4) + \ln \left(\frac{X_0}{X}\right) \quad (6.36)$$

En revanche, une écriture analytique de l'évolution de la hauteur de la bulle en fonction du temps $X(T)$ est impossible. Pour obtenir l'évolution de la pression dans la bulle, il suffit d'injecter cette solution dans la loi de Poiseuille 6.29.

6.3.3 Évolution du système

Hauteur de la bulle

Pour obtenir l'évolution du système, nous avons résolu numériquement le système d'équations différentielles par une méthode de tir en utilisant le logiciel Igor Pro. Nous avons choisi comme conditions initiales à $T = 0$, la hauteur de la bulle x égale au rayon du cadre r (demi-calotte sphérique), soit $X = 1$ et $\Delta P = 1$ (eq. 6.34).

La figure 6.4 représente, pour différentes valeurs du rapport ξ , l'évolution de la hauteur de la bulle X lors de l'effondrement en fonction du temps normalisé par le temps capillaire $T = t/t_c$. Nous avons vu que le rapport ξ compare le temps smectique au temps capillaire, caractérisant respectivement la dissipation dans le ménisque et dans le capillaire. Ainsi, plus ξ est grand, plus les effets de la dissipation dans le smectique sont importants, ce qui est illustré sur la figure 6.4 par un ralentissement de la dynamique normalisée. En pratique, même si le temps smectique est fixé par les caractéristiques du film (l'épaisseur par exemple),

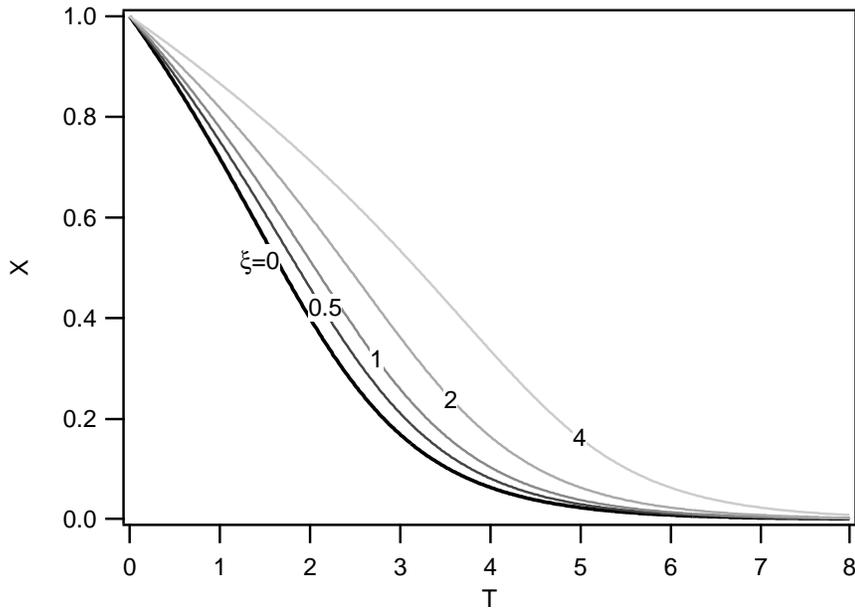


FIG. 6.4 – Évolution de la hauteur normalisée de la bulle $X = x/r$ en fonction du temps normalisé $T = t/t_c$, en prenant comme conditions initiales $X = 1$ et $\Delta P = 1$ à $T = 0$. Chaque courbe est tracée pour une valeur particulière du rapport $\xi = t_{sm}/t_c$ comparant le temps smectique, qui caractérise la dissipation dans le smectique, au temps capillaire donnée par la loi de Poiseuille. La valeur de ξ est donnée à côté de chaque courbe.

on peut faire varier ce rapport ξ en changeant le temps capillaire en jouant avec la longueur du capillaire L .

Pression à l'intérieur de la bulle : saut de pression

En utilisant la loi de poiseuille 6.29, l'évolution de la pression à l'intérieur de la bulle ΔP en fonction du temps normalisé T est obtenue. Elle est tracée sur la figure 6.5 pour différentes valeurs du rapport ξ .

Elles présentent deux caractéristiques importantes :

- la pression à l'intérieur de la bulle ΔP chute brutalement au début de la phase d'effondrement. Ce saut de pression est d'autant plus important que le rapport ξ est grand ou, ce qui revient au même, que la dissipation dans le smectique est importante par rapport à celle dans le capillaire. Le fait que le saut de pression soit instantané, repose sur l'hypothèse forte d'incompressibilité de l'air et sur le fait que l'on néglige ici le régime transitoire dû aux effets inertiels. Nous discuterons ces points dans la dernière section 6.5.
- Ensuite, la pression diminue jusqu'à s'équilibrer avec la pression extérieure, ce qui conduit à $\Delta P = 0$. La relaxation est d'autant plus longue que le rapport ξ est grand. En effet, lors de l'effondrement, tout l'air contenu dans la bulle doit passer à travers le capillaire, avec pour force motrice, le gradient de pression dans le capillaire $\Delta P/L$

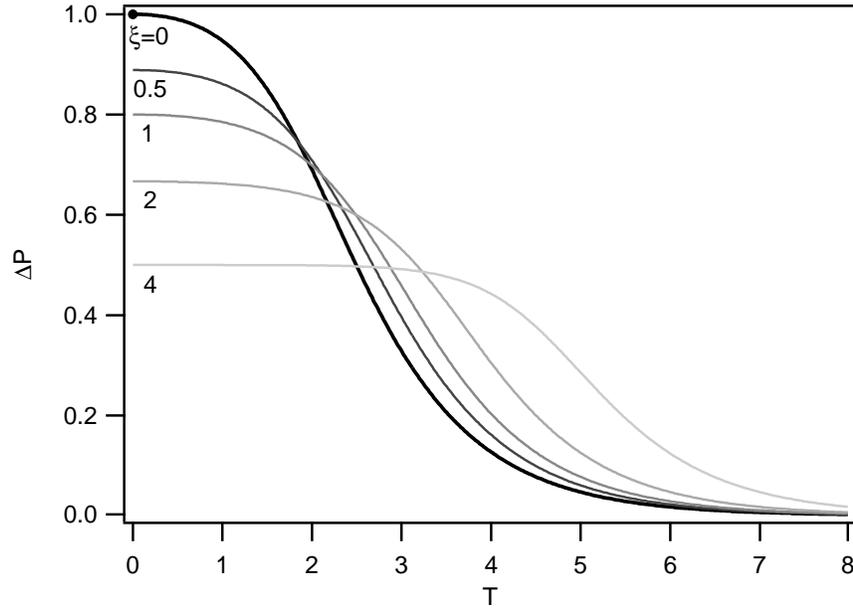


FIG. 6.5 – Évolution de la pression à l'intérieur de la bulle normalisée ΔP , en fonction du temps normalisé $T = t/t_c$, en prenant comme conditions initiales $X_0 = 1$ et $\Delta P_0 = 1$ à $T = 0$. Chaque courbe est tracée pour une valeur particulière du rapport $\xi = t_{Sm}/t_c$ comparant le temps smectique qui caractérise la dissipation dans le smectique au temps capillaire donné par la loi de Poiseuille. La valeur de ξ est indiquée en dessous de chaque courbe.

(loi de Poiseuille). Or, ce gradient diminue lorsque la dissipation dans le smectique devient importante (ξ grand), puisque la pression à l'intérieur de la bulle chute dès l'ouverture du capillaire. La vidange prend donc plus de temps.

Ces différents points montrent que la mesure de la pression à l'intérieur de la bulle permet de caractériser la dissipation dans le smectique.

Écart à la loi de Laplace

Le suivi de l'évolution simultanée de la pression à l'intérieur de la bulle ΔP et de la pression capillaire exercée par le film ΔP_l est particulièrement intéressant pour mieux comprendre la dynamique d'effondrement. En choisissant $\xi = 1$ et les mêmes conditions initiales que précédemment, cette évolution en fonction du temps normalisé T est représentée sur la figure 6.6 ainsi que celle de l'écart à la loi de Laplace $(\Delta P)_r = (\Delta P_l - \Delta P)/\Delta P_l$.

Rappelons ce que nous avons montré en établissant l'équation fondamentale 6.9. Si le film peut réduire sa surface sans dissiper, ce qui correspond à $\xi = 0$, la pression à l'intérieur de la bulle ΔP reste égale à la pression capillaire ΔP_l lors de l'effondrement et la loi de Laplace reste vérifiée. La bulle se vide alors dans le capillaire sous l'effet de cette pression capillaire qui crée le gradient de pression correspondant le long du capillaire. Les courbes d'évolution en fonction du temps de la hauteur X et de la pression $\Delta P = \Delta P_l$ ont été représentées sur les figures 6.4 et 6.5, en trait gras.

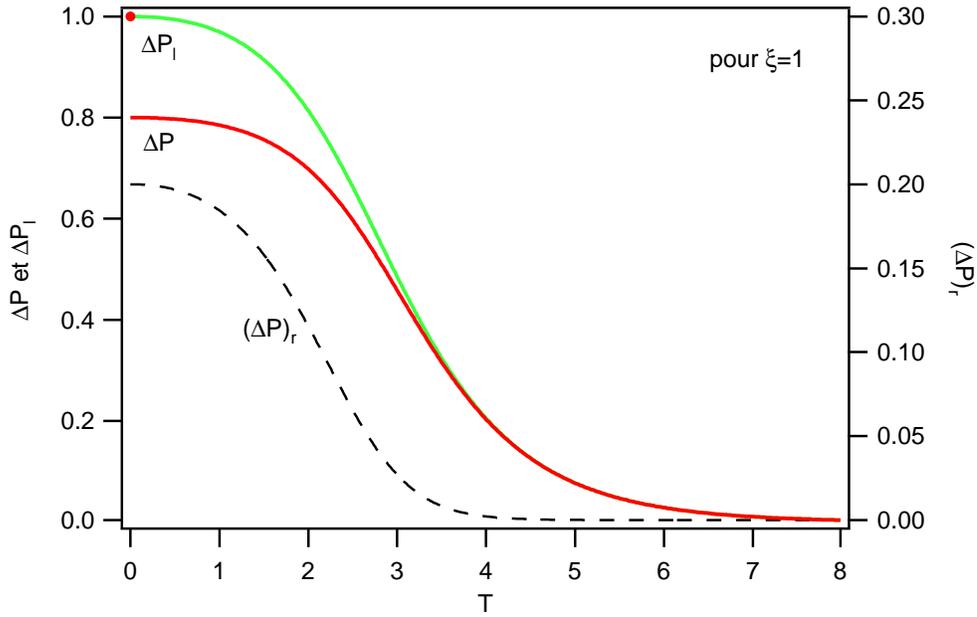


FIG. 6.6 – Pression capillaire normalisée ΔP_l et pression à l'intérieur de la bulle normalisée ΔP en fonction du temps normalisé $T = t/t_c$, en prenant comme conditions initiales $X = 1$, $\Delta P = 1$ à $T = 0$ et $\xi = 1$. L'écart à la loi de Laplace $(\Delta P)_r$ est tracé en pointillé.

En revanche, si la diminution de la surface du film est dissipative ($\xi \neq 0$), la bulle résiste à l'effondrement lorsque la vanne est ouverte. La pression à l'intérieur de la bulle ΔP chute alors par rapport à la pression capillaire ΔP_l avant d'entraîner l'effondrement de la bulle (équation 6.9). Ainsi, lors de l'effondrement, l'écart à la loi de Laplace est tel que le gain en énergie de surface compense exactement la dissipation dans le capillaire, mais aussi dans le smectique. Enfin, comme la pression à l'intérieur de la bulle a chuté à cause de la dissipation dans le smectique, la vidange de la bulle à travers le capillaire est ralentie.

L'écart à la loi de Laplace dépend donc du rapport ξ , ce qui doit permettre de quantifier la dissipation dans le smectique. Remarquons en plus qu'en utilisant la loi de Poiseuille 6.29, ainsi que les équations 6.30 et 6.33, la pression à l'intérieur de la bulle ΔP et l'écart à la loi de Laplace $(\Delta P)_r$ ne dépendent plus du temps T et sont uniquement des fonctions du rapport ξ et de la pression capillaire ΔP_l . Elles s'écrivent en effet sous la forme :

$$\Delta P = \frac{\Delta P_l}{1 + \frac{\xi}{4} \Delta P_l^2} \quad (\forall T) \quad (6.37)$$

$$(\Delta P)_r = \frac{\xi \Delta P_l^2}{4 + \xi \Delta P_l^2} \quad (\forall T) \quad (6.38)$$

On retrouve bien l'égalité des deux pressions $\Delta P = \Delta P_l$ quand le film est non-dissipatif ($\xi = 0$).

On remarque de plus que ΔP_l est directement relié au rapport des énergies dissipées par unité de temps dans le smectique Φ_{sm} (éq. 6.25) et dans le capillaire Φ_{cap} (éq. 6.13). Car

en injectant l'équation 6.8, qui montre que la variation de surface d'une bulle est égale à sa variation de volume multiplié par le facteur $2/R$, dans les expressions 6.13 et 6.25, on calcule :

$$\frac{\Phi_{Sm}}{\Phi_{cap}} = \frac{\xi}{4} \Delta P_l^2 \quad (6.39)$$

Nous retrouvons, en vertu de l'équation 6.38, que l'écart à la loi de Laplace est d'autant plus grand que la dissipation dans le smectique est importante par rapport à la dissipation dans le capillaire. Puisque la dissipation dans le smectique est liée à la variation de surface de la bulle et que celle dans le capillaire provient d'effets de volume, l'écart à la loi de Laplace sera maximum lorsque la courbure de la bulle $1/R$ (ou la pression ΔP_l) sera maximale, soit pour $X = 1$ (fig. 6.2). C'est pour cette raison que nous avons choisi précédemment comme condition initiale $X_0 = 1$. Les variations de l'écart à la loi de Laplace en fonction de la pression capillaire ΔP_l sont représentées sur la figure 6.7 pour différentes valeurs du rapport ξ .

Mentionnons enfin une propriété remarquable propre à cette condition initiale $X_0 = 1$ pour laquelle $\Delta P_l(T = 0) = 1$. Dans ce cas particulier, la pression capillaire ΔP_l , tout comme la pression à l'intérieur de la bulle, commencent de décroître avec une tangente horizontale à $T = 0$ (voir figure 6.6). On vérifie en effet facilement que $d(\Delta P_l)/dT = 0$ pour $X = 1$, puisque ΔP_l est maximum en $X = 1$ d'après l'équation 6.30. De cette propriété, on tire aussi que $d(\Delta P)/dT = 0$ en $X = 1$ puisque ΔP est uniquement fonction de ΔP_l

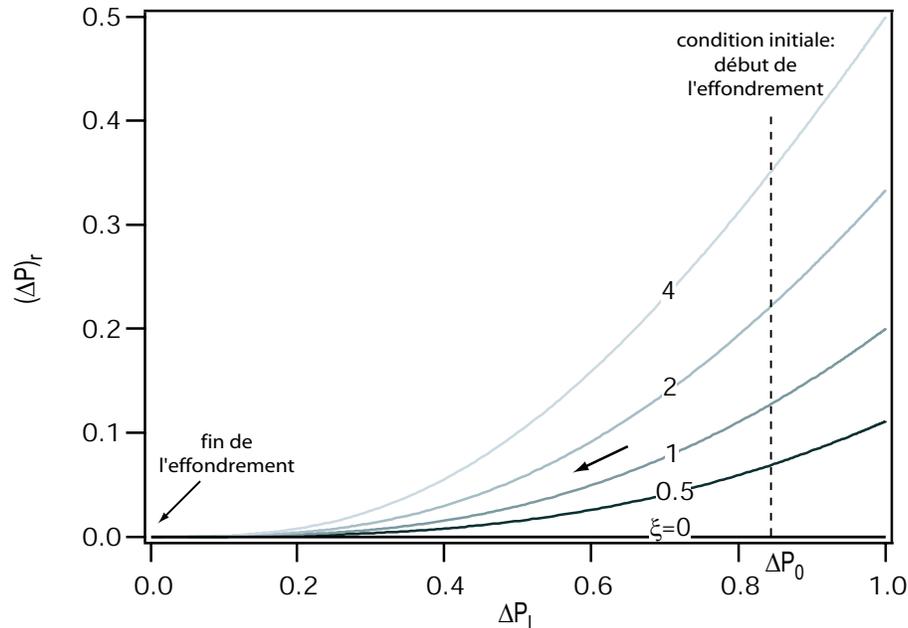


FIG. 6.7 – Écart à la loi de Laplace $(\Delta P)_r$ en fonction de la pression de Laplace ΔP_l , tracé pour différentes valeurs du rapport $\xi = t_{Sm}/t_c$. La valeur de ξ est donnée à côté de chaque courbe. La flèche indique le sens du temps.

(équation 6.37).

Cette remarque nous amène à comparer l'influence des conditions initiales sur la dynamique d'effondrement. Dans ce but, nous avons représenté sur la figure 6.8, l'évolution de la pression ΔP en fonction du temps T pour les mêmes valeurs du rapport ξ que celles prises précédemment (figures 6.5), mais en choisissant comme conditions initiales $X_0 = 0,5$ et $\Delta P_0 = 0,8$ (éq. 6.34) à $T = 0$. Nous observons alors que les différentes courbes sont moins discernables que sur la figure 6.5 et qu'il n'y a plus de plateaux de pression au départ. En revanche, les sauts de pression à $T = 0$ sont encore bien marqués.

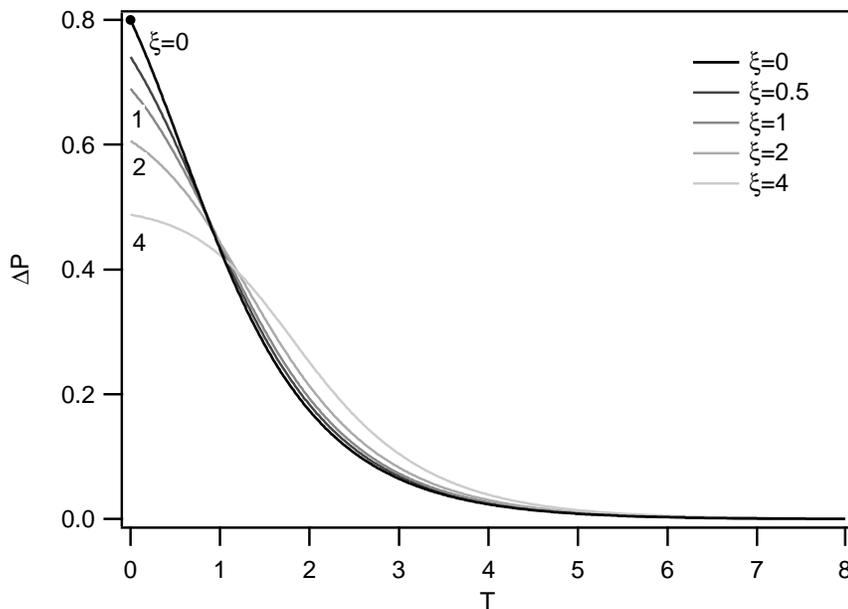


FIG. 6.8 – Pression normalisée ΔP à l'intérieur de la bulle, en fonction du temps normalisé $T = t/t_c$, en prenant pour conditions initiales $X = 0,5$ et $\Delta P = 0,8$ à $T = 0$. Les différentes courbes correspondent à des valeurs différentes du rapport $\xi = t_{Sm}/t_c$. La valeur de ξ est donnée à côté de chaque courbe.

6.4 Pression dans le film :

Conséquences sur la stabilité du film et du ménisque

Pour diminuer la surface du film d'épaisseur $H = Nd$ formé de N couches, il faut que la pression à l'intérieur de celui-ci, noté P_N , soit supérieure à la pression dans le ménisque P_{men} , afin de générer un écoulement de matière suffisant. Lors de l'effondrement de la bulle, cette différence de pression $\Delta P_{film} = P_N - P_{men}$ est donnée par l'équation fondamentale 6.23 :

$$\Delta P_{film} = (\Delta P)_r \frac{2\gamma}{H} \quad (6.40)$$

Une mesure de l'écart à la loi de Laplace $(\Delta P)_r$ permet donc d'évaluer la pression à l'intérieur du film caractérisant la dissipation dans le ménisque. On notera la dépendance en $1/H$ qui montre que plus le film est fin, plus grande sera ΔP_{film} .

6.4.1 Déstabilisation du ménisque

Rappelons quelques points développés dans la partie II. Le ménisque est formé d'une partie bien orientée (structure en couches parallèles à la surface) où se produit la dissipation, suivie d'une partie remplie de défauts de type coniques focales. La première est modélisable, en régime quasi-statique, par une dislocation géante de vecteur de Burgers $b = N_G d$ où $N_G + N$ correspond à l'épaisseur maximale de cette zone. Les expériences ont montré que N_G est de l'ordre $3 \cdot 10^3$ couches et que la dissipation à l'entrée du ménisque dépend fortement de l'épaisseur du film, la constante de dissipation valant $C(N) \sim N_G(N_G + N)/N^2$ pour les films suffisamment épais ($N > 30$).

Si nous reprenons ces résultats, quel serait alors le saut de pression observé lors de l'effondrement d'une bulle. Évaluons le temps caractéristique de la dissipation dans le ménisque t_{Sm} . Prenons, par exemple, un film de 500 couches ; puisque $C(500) \sim 40$, le temps smectique est de l'ordre d'une centaine de secondes et est beaucoup plus grand que le temps capillaire t_c (de l'ordre de la seconde). De ces valeurs nous tirons $\xi \sim 100$, si bien que le saut de pression initial $(\Delta P)_{r0} = (\Delta P)_r(T = 0^+)$ devrait, d'après l'équation 6.38, être de l'ordre de 1 (la pression à l'intérieur de la bulle chuterait à 0 dès le début de l'effondrement !). Or, les premières observations expérimentales ont montré que le saut de pression était beaucoup plus faible au début, traduisant une dissipation dans le ménisque nettement moins importante. Le modèle quasi-statique de $C(N)$ n'est donc plus valide pour décrire la dynamique d'effondrement d'une bulle smectique, pendant laquelle les vitesses à l'entrée du ménisques v_{men} sont beaucoup plus grandes que dans toutes les expériences décrites auparavant dans la partie II.

Pour mieux comprendre le problème, évaluons la pression à l'intérieur du film au début de l'effondrement, en supposant que le modèle quasi-statique soit encore vérifié. Dans ces conditions, nous venons de voir que le saut de pression $(\Delta P)_{r0}$ est de l'ordre de 1. La différence de pression entre le film et le ménisque serait donc de l'ordre de $2\gamma/H$ d'après l'équation 6.40, ce qui donnerait $\Delta P_{film}(\text{dyn/cm}^2) \sim 2 \cdot 10^8/N$. L'effondrement de la bulle provoquerait donc une différence de pression ΔP_{film} de l'ordre de $4 \cdot 10^5 \text{ dyn/cm}^2$ pour un film de 500 couches par exemple. Cette différence de pression est plusieurs milliers de fois supérieure à celle qui existe entre le ménisque et l'air à l'équilibre $P_{men} - P_a \sim -\gamma/R_m$, elle-même voisine d'une centaine de dyn/cm^2 pour un rayon de courbure R_m de quelques mm.

À l'équilibre, nous avons vu que le film est en dépression ($P_{men} - P_a < 0$), sa structure étant comprimée sous l'effet de la pression capillaire fixée par le ménisque γ/R_m . En re-

vanche, en dynamique lors de l'effondrement, cet effet devient négligeable, car la différence de pression entre l'intérieur du film et l'air $P_N - P_a$ est de l'ordre de ΔP_{film} qui est positif et très grand. Le film est donc fortement dilaté lors de l'effondrement, ainsi que toute la zone orientée à l'entrée du ménisque où se produit la dissipation.

Instabilité d'ondulation

L'expérience montre qu'une ondulation simple des couches se développe spontanément lorsqu'on dilate très légèrement, mais de façon brusque, un échantillon homéotrope d'épaisseur h . Cette instabilité appelée instabilité d'ondulation a été découverte au début des années 70 [11, 8]. Elle résulte d'une compétition entre l'énergie de dilatation caractérisée par le module de compressibilité des couches B et leur énergie de courbure caractérisée par le module de courbure K . La variation d'épaisseur critique δ_c au-dessus de laquelle cette instabilité se développe est égale à [31] :

$$\delta_c = 2\pi\lambda \quad \text{avec} \quad \lambda = \sqrt{\frac{K}{B}} \quad (6.41)$$

où λ est appelée longueur de pénétration. Dans les cristaux liquides thermotropes, cette longueur est de l'ordre de l'épaisseur d'une couche. Pour le 8CB, $B \sim 10^8$ dyn/cm², $K \sim 10^{-6}$ dyn et $\lambda \sim 10\text{\AA}$ [57]. Enfin, au delà du seuil, les couches commencent à se briser et pour une variation d'épaisseur δ dépassant $1,6\delta_c$, des paraboles focales se forment [43, 29], suivant un processus très rapide (ms). Une propriété remarquable de cette instabilité est que l'épaisseur critique δ_c est indépendante de l'épaisseur de l'échantillon h . Ainsi, en imposant la même contrainte, il est plus facile de déstabiliser un échantillon épais.

Lors de l'effondrement de la bulle constituée d'un film de N couches, le film et la partie bien orientée à l'entrée du ménisque sont fortement dilatés sous l'effet de la surpression initiale $\Delta P_{film} \sim \frac{2\gamma}{Nd}$. La dilatation des couches est-elle alors suffisante pour déstabiliser la structure lamellaire et en particulier le ménisque, qui est plus épais donc plus sensible à cette instabilité. Évaluons le nombre de couches minimum N_c pour observer cette déstabilisation. Pour cela calculons la dilatation d'une zone dont l'épaisseur est $h = kd$ (k couches) : la dilatation des couches $\delta(k)$ est donnée par l'équilibre entre la surpression $\frac{2\gamma}{Nd}$ et la contrainte élastique $\sigma = B\frac{\delta(k)}{kd}$. En prenant pour dilatation critique celle correspondant à la formation des paraboles focales (de l'ordre de $1,6\delta_c$), l'épaisseur critique s'écrit :

$$N_c \sim 1,6\frac{\pi\lambda B}{\gamma}N \sim 2N \quad (6.42)$$

où l'ordre de grandeur a été obtenu en utilisant les valeurs des différents coefficients du 8CB. Ce calcul montre que lors de l'effondrement, la structure lamellaire du film doit rester stable puisque l'épaisseur critique $N_c d$ est supérieur à Nd . En revanche, l'épaisseur caractéristique de la zone orientée du ménisque ($N_G \sim 3 \cdot 10^3$), est beaucoup plus grande que l'épaisseur critique (surtout pour les films fins). Au début de l'effondrement, la partie bien orientée

du ménisque, à l'origine de la dissipation en régime quasi-statique, doit donc être tellement dilatée qu'elle en est complètement déstabilisée. Nous prévoyons, en conséquence, qu'elle doit se remplir "instantanément" de coniques focales.

Ce processus de déstabilisation du ménisque doit rendre le ménisque plus perméable ce qui justifie les premières observations expérimentales mettant en évidence des sauts de pression beaucoup moins importants que ceux prédits par le modèle quasi-statique. Dans la suite et pour tenir compte qualitativement de cette instabilité initiale, on notera C_{eff} la constante de dissipation effective du ménisque déstabilisé. Nous supposons qu'elle est constante et beaucoup plus petite que la constante $C(N)$ mesurée et calculée en régime quasi-statique.

6.4.2 Nucléation d'îlots

Rayon critique de nucléation

Après la déstabilisation du ménisque, celui-ci devient nettement moins dissipatif, mais le film est encore fortement dilaté. En effet, des sauts de pression $(\Delta P)_r$ de l'ordre d'une dizaine de pour cent sont encore observés expérimentalement (chapitre 7) suivant la longueur du capillaire, ce qui correspond à une différence de pression ΔP_{film} (eq. 6.40) de l'ordre de $10^7/N$ (en dyn/cm²), soit environ $4 \cdot 10^4$ dyn/cm² pour un film de 500 couches. Pour nucléer un îlot à l'intérieur d'un film, il faut que le film soit en surpression, $P_N - P_a > 0$ (en dilatation). Le rayon critique de nucléation r_c d'un îlot de vecteur de Burgers b est alors donné par la relation suivante [31] :

$$r_c = \frac{E}{b(P_N - P_a)} \sim \frac{E}{b [(\Delta P)_{r0} \frac{2\gamma}{H}]} \quad (6.43)$$

où E est l'énergie de ligne de la dislocation proportionnelle à son vecteur de Burgers b avec $E/b \approx 2$ dyn/cm [14, 57]. Il est évident que le processus de nucléation est d'autant plus facile que le rayon critique r_c est petit, c'est-à-dire que la surpression dans le film est grande, ce qui est d'autant mieux vérifié que le rapport $H/(\Delta P)_{r0}$ est petit. Prenons l'exemple plutôt désavantageux d'un film de 500 couches avec $(\Delta P)_r \sim 0,1$; le rayon critique de nucléation est alors de l'ordre de $0,5 \mu\text{m}$. Dans ces conditions, on prévoit que des îlots peuvent nucléer dans le film lors de l'effondrement de la bulle, s'il existe des petites poussières de taille supérieur à r_c contenues dans le film pouvant jouer le rôle de centre de nucléation hétérogène, ce qui est probable.

Temps caractéristique associé à la croissance d'îlots

La nucléation et la croissance d'îlots lors de l'effondrement d'une bulle est un autre processus permettant de diminuer la surface du film. Ce dernier est aussi un fortement dissipatif, car lié à la mobilité des dislocations m , comme décrit dans la partie I.

La question se pose alors de savoir si la bulle choisit de diminuer sa surface en créant des îlots ou en "s'enfonçant" dans le ménisque. Si l'on admet que le système tend à minimiser sa dissipation, il va choisir le processus le moins dissipatif. Puisque nous pouvons associer à ces deux processus des temps caractéristiques d'effondrement de la bulle, essayons de les comparer.

Le temps caractéristique t_{Sm} , associé au processus dissipatif d'échange de matière entre le film et le ménisque lors de l'effondrement, a été introduit dans la section 6.3 en normalisant l'équation fondamentale (eq. 6.31). Nous pouvons le retrouver facilement en équilibrant le gain d'énergie de surface pendant l'effondrement avec l'énergie dissipée par ce processus dans le même temps, elle-même égale au produit de la différence de pression ΔP_{film} par le débit à l'entrée du ménisque, ce qui donne :

$$2\gamma \frac{\pi r^2}{t_{Sm}} \sim \frac{C_{eff} v_{men}}{m} \frac{\pi r^2 N d}{t_{Sm}} \quad \text{avec} \quad v_{men} \sim \frac{r}{t_{Sm}} \quad (6.44)$$

Nous avons choisi ici comme condition initiale, une bulle de hauteur égale au rayon du cadre ($X = 1$) et utilisé le fait que lors de l'effondrement, la surface du film varie de πr^2 (donc son énergie de $2\gamma\pi r^2$). Le temps t_{Sm} est ainsi à nouveau obtenu :

$$t_{Sm} = \frac{C_{eff} N d r}{2\gamma m} \quad (6.45)$$

De la même manière, nous pouvons construire le temps caractéristique t_i , associé au processus dissipatif de croissance d'îlots, en imaginant que lors de l'effondrement, la diminution de surface est compensée par la formation de n_i îlots identiques de vecteurs de Burgers $b = kd$ et de rayon r_i . La vitesse de croissance typique de chaque îlot est alors $v_i \sim r_i/t_i$. L'équilibre entre le gain d'énergie de surface et l'énergie dissipée par la croissance des boucles de dislocations (voir partie I) s'écrit :

$$2\gamma \frac{\pi r^2}{t_i} \sim n_i \frac{v_i}{\left(\frac{N}{N+k}\right) m} \frac{\pi r_i^2 k d}{t_i} \quad \text{avec} \quad v_i \sim \frac{r_i}{t_i} \quad (6.46)$$

où $\left(\frac{N}{N+k}\right) m$ représente la mobilité d'une dislocation de vecteur de Burgers $b = kd$ dans un film de N couches. De plus, le rayon des îlots r_i est donné par la conservation de la masse : $n_i k r_i^2 = N r^2$ (en négligeant les échanges avec le ménisque). Le temps caractéristique de croissance des îlots lors de l'effondrement de la bulle s'écrit donc :

$$t_i(n_i, k) = \sqrt{\frac{N}{n_i k}} \frac{(N+k) d r}{2\gamma m} \quad (6.47)$$

Il dépend du nombre d'îlots n_i qui se sont formés dans le film et du vecteur de Burgers kd des îlots. Pour des îlots d'épaisseur égale à deux fois l'épaisseur du film $k = N$, ce temps est minimum, ce qui correspond au processus le moins dissipatif. Si le système choisit ce vecteur de Burgers, le temps t_i devient alors :

$$t_i(n_i) = \frac{1}{\sqrt{n_i}} \frac{Ndr}{\gamma m} \quad (6.48)$$

Il est proportionnel à l'épaisseur du film N . Ce processus de croissance d'îlots lors de l'effondrement est donc d'autant plus efficace (moins dissipatif) que le film est fin puisque le temps t_i est plus court.

Ainsi, pour connaître quel processus le système choisit pour diminuer la surface du film lors de l'effondrement de la bulle, il faut comparer les deux temps caractéristiques t_{Sm} et t_i que nous venons de construire. Selon leurs expressions 6.45 et 6.48, cela revient à comparer la constante de dissipation du ménisque déstabilisé NC_{eff} à $2N/\sqrt{n_i}$ où n_i est le nombre d'îlots formés. Il est clair, qu'à ce stade, nous avons besoin d'une étude expérimentale pour évaluer C_{eff} et savoir comment cette constante dépend de l'épaisseur du film N . C'est ce que nous verrons dans le chapitre suivant où nous verrons que la nucléation d'îlots est plus facile dans les films fins ($N < 500$) que dans les films épais.

Enfin, remarquons que nous n'avons pas cherché à résoudre le problème complet d'effondrement d'une bulle en présence d'îlots. Pour cela il faut ajouter à l'énergie dissipée dans le ménisque Φ_{Sm} (eq. 6.25) celle dissipée lors de la croissance des îlots. Malheureusement, le système à résoudre devient trop compliqué car il fait intervenir trop de paramètres. Nous nous contenterons donc dans la suite de discuter les ordres de grandeur des différents temps caractéristiques, ce qui nous semble plus simple et plus pertinent.

6.5 Discussion des hypothèses du problème

Dans la section 6.3.3 où nous avons décrit l'évolution du système, nous avons remarqué que la surpression ΔP_i à l'intérieur de la bulle chute brutalement au moment de l'ouverture de la vanne, à $T = 0$. Elle passe instantanément d'une valeur statique $\Delta P_i(t = 0^-) = \Delta P_l$ à une valeur dynamique $\Delta P_i(t = 0^+)$. Nous avons mis en évidence la pertinence du saut de pression car il permet de quantifier la dissipation dans le smectique lors de l'effondrement de la bulle. Mais, du point de vue physique, la pression ne peut pas chuter si brutalement, en un temps nul. Cette contradiction repose sur les hypothèses faites lors de la résolution du problème. Nous avons en effet seulement considéré les termes les plus importants gouvernant la dynamique de la bulle, à savoir le terme moteur qui provient du gain d'énergie de surface du film et les termes traduisant la dissipation dans le smectique et dans l'air s'écoulant dans le capillaire. Nous avons, par contre, négligé les effets inertiels dans le capillaire, mais nous avons montré que cette hypothèse était légitime si le rayon et la longueur du capillaire sont bien choisis (section 6.2.3). En revanche, négliger l'effet de compressibilité de l'air en supposant qu'il est incompressible, n'est peut-être pas correct. Nous discuterons ce point dans la suite.

6.5.1 Effet de la compressibilité de l'air

Comme l'air à l'intérieur de la bulle est en surpression ΔP_i , une différence de densité de l'air, notée $\delta\rho_a$, existe entre l'intérieur et l'extérieur du système. En considérant que l'air se comporte comme un gaz parfait pendant l'effondrement, cette différence vaut :

$$\frac{\delta\rho_a}{\rho_a} = \frac{\Delta P_i}{P_a} \quad (6.49)$$

où P_a et ρ_a sont la pression et la densité de l'air à l'extérieur. Pour une bulle gonflée sur un cadre de rayon $r = 0,5\text{ cm}$, de hauteur $x = r$, cette différence relative de densité est très faible, de l'ordre de $2 \cdot 10^{-4}$. Elle joue, cependant, un rôle très important au début de l'effondrement quand la surpression ΔP_i chute brutalement. En effet, toute diminution de la pression est nécessairement accompagnée par une dilatation de l'air à l'intérieur du système, ce qui génère un débit supplémentaire à travers le capillaire correspondant à sa variation de volume.

Plus précisément, le volume d'air à l'intérieur du système en amont du capillaire est égal au volume de la bulle V , plus le volume mort V_{mort} égal au volume du cylindre sur la figure 6.1. Supposons que ce volume mort V_{mort} soit largement supérieur au volume de la bulle V , et écrivons la conservation de la masse. La masse d'air piégé dans le système est $m_a = (\rho_a + \delta\rho_a)(V_{mort} + V)$; sa variation temporelle s'écrit donc à l'ordre 1 :

$$\frac{dm_a}{dt} = \rho_a \frac{dV}{dt} + V_{mort} \frac{d\delta\rho_a}{dt} = \rho_a \frac{dV}{dt} + \rho_a \frac{V_{mort}}{P_a} \frac{d\Delta P_i}{dt} \quad (6.50)$$

ce qui montre qu'elle est aussi reliée à la variation de la surpression si l'air se comporte comme un gaz parfait. Il en découle que le débit volumique Q_v à travers le capillaire correspond à cette variation de masse divisée par la densité de l'air ρ_a , à l'ordre 1. Cette relation met en évidence le débit supplémentaire associé à la compressibilité de l'air. La loi de Poiseuille 6.12 traduisant la dissipation dans le capillaire, qui a été donnée dans la section précédente, s'écrit donc en tenant compte de cet effet :

$$\Delta P_i = -\frac{8\eta_a L}{\pi a^4} \left(\frac{dV}{dt} + \frac{V_{mort}}{P_a} \frac{d\Delta P_i}{dt} \right) \quad (6.51)$$

Imaginons que la bulle ne change pas de forme ($dV/dt = 0$, calotte sphérique solide); immédiatement après l'ouverture de la vanne, la pression à l'intérieur du système relaxe vers la pression atmosphérique P_a de manière exponentielle avec un temps caractéristique t_a donné par l'équation précédente. Ce temps t_a s'écrit en fonction du temps capillaire t_c (éq. 6.27) sous la forme :

$$t_a = \frac{8\eta_a L}{\pi a^4} \frac{V_{mort}}{P_a} = \frac{8}{3} \frac{\Delta P_{max}}{P_a} \frac{V_{mort}}{V_{max}} t_c \quad (6.52)$$

où les constantes $\Delta P_{max} = 4\gamma/r$ et $V_{max} = \frac{2}{3}\pi r^3$ correspondent à une bulle de hauteur égale au rayon du cadre $x = r$. Ce temps caractéristique t_a traduit l'effet de compressibilité de

l'air couplé au capillaire. Il est proportionnel au temps capillaire et il est d'autant plus grand que le volume d'air V_{mort} est grand. Par exemple, en prenant les paramètres habituels du système et un volume mort soixante fois plus grand que le volume de la bulle V_{max} , nous obtenons $t_a \sim t_c/25$. L'effet de la compressibilité de l'air est donc a priori négligeable. Mais, nous verrons dans la partie expérimentale (chapitre suivant) que le capteur de pression, à cause de sa membrane flexible, se comporte exactement comme si nous avions un volume mort effectif V_{mort}^{eff} encore dix fois plus grand, d'où l'intérêt d'étudier cet effet qui commence à être non négligeable ($t_a \sim 0,4 t_c$).

Ainsi, au début du processus d'effondrement, la bulle résiste tellement pour diminuer sa surface à cause de la dissipation dans le smectique qu'elle se comporte comme une calotte sphérique "solide". Il en résulte que la surpression à l'intérieur ne chute pas brutalement, mais comme nous l'avons prédit précédemment, avec le temps caractéristique t_a lié à la compressibilité de l'air (et à l'effet du capteur de pression) .

Nous sommes maintenant en mesure de calculer l'allure de la variation de ΔP lors de l'effondrement de la bulle en tenant compte de cet effet nouveau. Pour cela, il faut résoudre numériquement le système d'équations différentielles composé de l'équation fondamentale, inchangée (équ. 6.33), et de la nouvelle équation traduisant la loi de Poiseuille (équ. 6.51). Commençons d'abord par normaliser cette dernière équation en utilisant les variables sans dimension X , ΔP et T introduites auparavant (section 6.3). Nous obtenons :

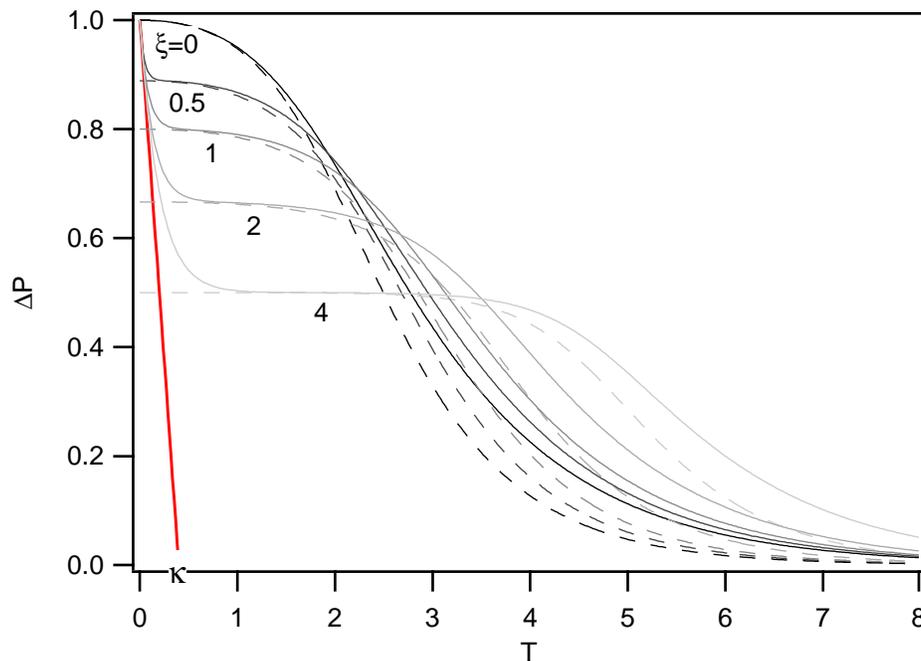


FIG. 6.9 – Pression à l'intérieur de la bulle normalisée ΔP en fonction du temps normalisé $T = t/t_c$, en prenant pour conditions initiales $X = 1$ et $\Delta P = 1$ à $T = 0$. Chaque courbe est tracée pour une valeur différente du rapport $\xi = t_{Sm}/t_c$. Trait en pointillé : évolution incompressible ; trait plein : évolution tenant compte de la compressibilité de l'air (et du capteur) avec $\kappa = t_a/t_c = 0,4$.

$$\Delta P = -\kappa \frac{d\Delta P}{dT} - 2(1 + X^2) \frac{dX}{dT} \quad \text{avec} \quad \kappa = \frac{t_a}{t_c} \quad (6.53)$$

Cette équation fait apparaître le rapport κ entre le temps t_a associé à la compressibilité de l'air et le temps capillaire t_c .

Pour $\kappa = 0, 4$, l'évolution de la pression à l'intérieur de la bulle ΔP en fonction du temps normalisé T est représentée sur la figure 6.9 pour les différentes valeurs du rapport ξ choisies précédemment. À titre de comparaison, l'évolution incompressible (déjà donnée sur la figure 6.5) est tracée en pointillé.

En résumé, nous voyons qu'au début de l'effondrement, la bulle résiste si bien que seule la détente de l'air à travers le capillaire (tenant compte de l'effet du capteur) s'effectue : la pression à l'intérieur de la bulle relaxe donc initialement en suivant une droite de pente $-\kappa$. Nous remarquons aussi que cet effet de compressibilité ralentit la dynamique globale de la bulle, ce ralentissement étant simplement dû au fait qu'il y a un plus grand volume d'air (à cause sa compressibilité et de la flexibilité de la membrane du capteur) à faire passer à travers le capillaire.

6.5.2 Effets de l'inertie du film et de l'air

Enfin, attardons-nous sur les effets inertiels dont nous n'avons pas encore discuté l'importance. En effet, en analysant la dynamique de la bulle, nous avons complètement négligé l'inertie du film et celle de l'air que le film pousse quand la bulle se dégonfle. Pour calculer le temps caractéristique t_{if} associé à la masse du film, procédons comme précédemment en équilibrant le gain en énergie de surface lors de l'effondrement avec l'énergie cinétique cinétique du film. Cela donne à un facteur numérique près :

$$r^2\gamma \sim \rho_{Sm} N dr_2 \left(\frac{r}{t_{if}} \right)^2 \quad \text{soit} \quad t_{if} = r \sqrt{\frac{N d \rho_{Sm}}{\gamma}} \quad (6.54)$$

où ρ_{Sm} est la densité du cristal liquide. De la même manière, le temps t_{ia} associé à l'inertie de l'air dans le système est obtenu en écrivant :

$$r^2\gamma \sim \rho_a c r_3 \left(\frac{r}{t_{ia}} \right)^2 \quad \text{soit} \quad t_{ia} = \sqrt{\frac{\rho_a c r^3}{\gamma}} \quad (6.55)$$

où ρ_a est la densité de l'air et $c \sim V_{mort}/V$ est le rapport entre le volume mort du système et le volume de la bulle. Nous pouvons estimer ces deux temps en prenant $\rho_{Sm} = 1 \text{ g/cm}^3$, $\rho_a = 1,2 \cdot 10^{-3} \text{ g/cm}^3$, $N = 500$ et $c = 60$: $t_{if} \sim 10^{-3} \text{ s}$ et $t_{ia} \sim 10^{-2} \text{ s}$. Nous constatons qu'ils sont tous les deux très petits comparés aux autres temps caractéristiques déjà introduits dans ce chapitre. Cela est d'autant plus vrai que l'on cherchera à réduire le volume mort. Il est donc parfaitement légitime de les négliger dans la suite.

6.5.3 Récapitulatif des différents temps caractéristiques

Dans ce chapitre sur à l'étude théorique de l'effondrement d'une bulle smectique, nous avons introduit un certain nombre de temps caractéristiques associés aux différents phénomènes pouvant contrôler la dynamique de l'effondrement. La simple construction de ces temps caractéristiques est importante car elle permet, en les comparant, de négliger certains termes lors de la mise en équation du problème, et par conséquent, d'en simplifier l'écriture. Il est donc intéressant de les rappeler et de donner leurs ordres de grandeur.

Leurs expressions et leurs ordres de grandeur sont donnés dans le tableau 6.2. Pour calculer ces derniers, nous avons choisi un support de rayon $r = 0,5$ cm et un capillaire de rayon $a = 4 \cdot 10^{-2}$ cm dont la longueur L est supérieure à la longueur minimale L^{min} de

temps caractéristique		expression	ordre de grandeur (s)
t_c	capillaire	$\frac{\eta_a L r^4}{2\gamma a^4}$	$> 0,5$
t_{Sm}	ménisque	$\frac{C_{eff} N d r}{2\gamma m}$	~ 1
t_i	îlots	$\frac{1}{\sqrt{n_i}} \frac{N d r}{\gamma m}$	~ 1
t_a	compressibilité (air + capteur)	$\frac{8}{3} \frac{\Delta P_{max}}{P_a} \frac{V_{mort}^{eff}}{V_{max}} t_c$	$0,4 t_c$
t_{ic}	inertie air (dans capillaire)	$\frac{\rho_a a^2}{\eta_a}$	10^{-2}
t_{ia}	inertie air (dans volume mort)	$\sqrt{\frac{\rho_a c r^3}{\gamma}}$	10^{-2}
t_{if}	inertie film	$r \sqrt{\frac{N d \rho_{Sm}}{\gamma}}$	10^{-3}

TAB. 6.2 – Expressions et ordres de grandeur des différents temps caractéristiques du problème, en prenant $L > 6$ cm, $r = 0,5$ cm, $a = 4 \cdot 10^{-2}$ cm, $N = 500$, $C_{eff} \sim 0,3$ et $n_i \sim 40$. Les valeurs de η_a , ρ_a , ρ_{Sm} , m , γ et d sont données dans le texte. Nous remarquons que les différents temps inertiels sont négligeables.

6 cm (éq. 6.18). La valeur des autres paramètres sont celles données dans ce chapitre. Ces temps caractéristiques ont été classés dans le tableau par valeur décroissante. Ce tableau met en évidence tout l'intérêt d'étudier l'effondrement d'une bulle à travers un capillaire bien choisi. Tout d'abord, la vitesse de l'effondrement peut être réglée en changeant la longueur du capillaire. De plus, si le temps capillaire est suffisamment grand, tous les effets inertiels, difficilement modélisables, peuvent être négligés. L'équation fondamentale de la dynamique est ainsi énormément simplifiée et l'écart à la loi de Laplace permet de caractériser directement la dissipation dans le smectique (ménisque et film).

Chapitre 7

Étude expérimentale

Sommaire

7.1	Description du dispositif expérimental	108
7.1.1	Présentation succincte	108
7.1.2	Préparation de la bulle	108
7.1.3	Visualisation	111
7.1.4	Mesure de la pression à l'intérieur de la bulle	115
7.1.5	Déclenchement : vanne smectique	116
7.2	Première approche : évolution de ΔP_i	117
7.2.1	Données expérimentales	118
7.2.2	Effet volumique du capteur de pression	120
7.2.3	Dissipation en fonction de la vitesse d'effondrement	122
7.3	Deux étapes dans la dynamique d'effondrement	125
7.3.1	Première étape : déstructuration du ménisque	125
7.3.2	Seconde étape : effondrement de la bulle	129
7.3.3	Comportement rhéologique du ménisque	131
7.4	Nucléation et croissance d'îlots	133
7.4.1	Étude en fonction de l'épaisseur du film	133
7.4.2	Dans les films épais : $N > 500$	134
7.4.3	Dans les films fins : $N < 500$	138

Dans le chapitre précédent, nous avons montré qu'une mesure de l'écart à la loi de Laplace permet de caractériser le comportement dissipatif du ménisque lorsqu'il échange de la matière avec le film lors de l'effondrement d'une bulle. Dans ce chapitre, nous allons décrire le dispositif expérimental utilisé pour réaliser cette étude. Nous montrerons ensuite, dans un premier temps et en guise d'approche préliminaire, comment évolue la pression à l'intérieur d'une bulle. Nous verrons, en analysant ces résultats, que le modèle linéaire développé en régime quasi-statique ne peut, en aucun cas, décrire la dissipation dans le

ménisque. Nous décrirons ensuite plus précisément les différentes étapes de la dynamique d'effondrement de la bulle. Nous montrerons en particulier que la mesure de l'écart à la loi de Laplace permet de caractériser finement la dissipation dans le système. Enfin, nous étudierons la nucléation et la croissance des îlots, et leur influence lors de l'effondrement.

7.1 Description du dispositif expérimental

7.1.1 Présentation succincte

La fiche synoptique du dispositif expérimental utilisé pour étudier la dynamique d'effondrement d'une bulle smectique est montrée sur la figure 7.1. Ce dispositif a été réalisé avec l'aide précieuse de Marc Moulin, ingénieur à l'atelier de mécanique. Le film est étiré sur un support creux de rayon intérieur $r = 0,5$ cm. Ce dernier est relié à une seringue, figurée par le piston, permettant de gonfler la bulle. Un capteur de pression sert à mesurer la surpression ΔP_i , dont le signal est enregistré sur un oscilloscope. Un tube capillaire muni d'une vanne à son extrémité libre est fixé sur le cylindre creux. Les capillaires que nous avons choisis sont des tubes flexibles Tygon de différentes longueurs et de rayon intérieur $a = 0.04$ cm. Un microscope, d'axe optique horizontal, permet de filmer la bulle de côté lors de l'effondrement. La mesure des différentes caractéristiques de la bulle –hauteur, courbure, surface, volume et pression capillaire de Laplace ΔP_l – est réalisée en analysant les images obtenues. Enfin, un autre microscope, d'axe optique vertical, permet de mesurer l'épaisseur du film et de visualiser le film en transmission ou en réflexion. Ce dispositif est muni d'un double système de synchronisation qui permet de mesurer simultanément les deux surpressions importantes dans ce problème, à savoir ΔP_i et ΔP_l , et par conséquent, de suivre en temps réel l'évolution de l'écart à la loi de Laplace. Toutes les expériences ont été réalisées à une température de 25 °C. Nous allons maintenant décrire tous les éléments de ce dispositif plus précisément.

7.1.2 Préparation de la bulle

Support

Le choix du support sur lequel on étire et gonfle la bulle est très important. Le plus simple aurait été de choisir un cylindre creux à bord droit, mais c'est un mauvais choix, car au repos (lorsque le film est plan), le ménisque peut glisser à l'intérieur du cylindre sous l'effet de son poids ou simplement par capillarité si ce dernier n'est pas parfaitement propre. Le problème majeur observé expérimentalement lors d'essais dans ces conditions est que les films ne sont pas parfaitement plans, ce qui rend leur visualisation en réflexion très mauvaise (des déformations de quelques μm suffisent à créer des zones d'ombre très gênantes).

Pour palier à ces problèmes, nous avons choisi un support de symétrie cylindrique se

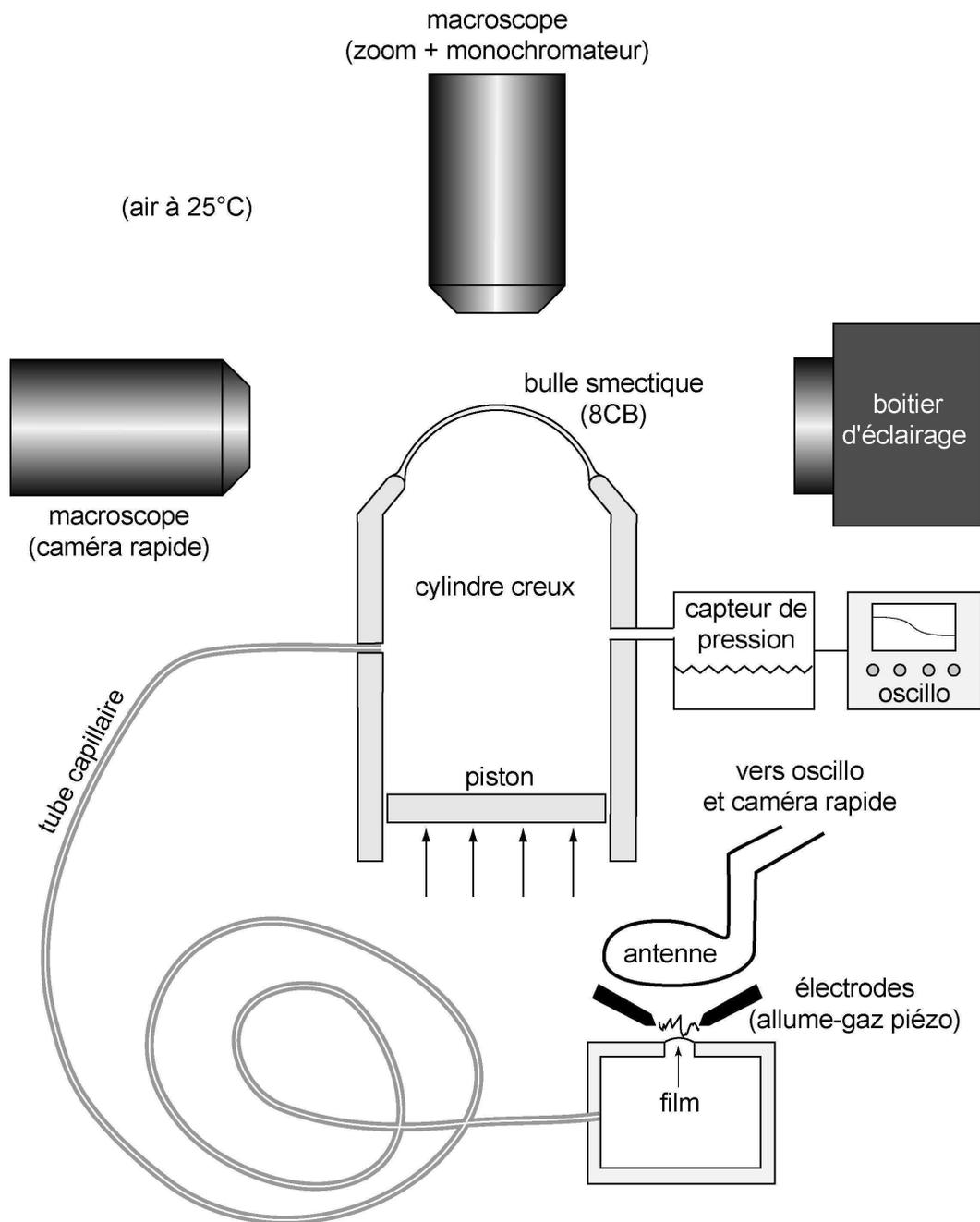


FIG. 7.1 – Fiche synoptique du dispositif expérimental (dessinée par Patrick).

terminant par un bec. Ce support est représentée en coupe sur la figure 7.2. Ainsi, le film qui veut minimiser sa surface doit se positionner précisément au bout du bec où le rayon est le plus petit $r = 0,5 \text{ cm}$. Comme il est, de surcroît, un peu surélevé par rapport à la base du support (figure 7.2), cela permet une meilleure visualisation de côté.

Le film est aussi observé en réflexion par le haut. Nous avons de plus fixé une lame de verre à l'autre extrémité du support, ce qui permet d'éclairer le film par en dessous et de le visualiser également en transmission. La lame est faiblement inclinée pour empêcher que

lors des observations en réflexion, les rayons (qui ont traversé le film) se réfléchissent dessus et retournent dans l'objectif, rendant l'image moins contrastée (une intensité lumineuse constante se rajoutant au terme d'interférence provenant de la lumière réfléchiée sur les deux surfaces du film). Enfin, l'intérieur de ce support est connecté au capteur de pression, à la seringue et au capillaire par le trou réalisé sur le côté (fig. 7.2).

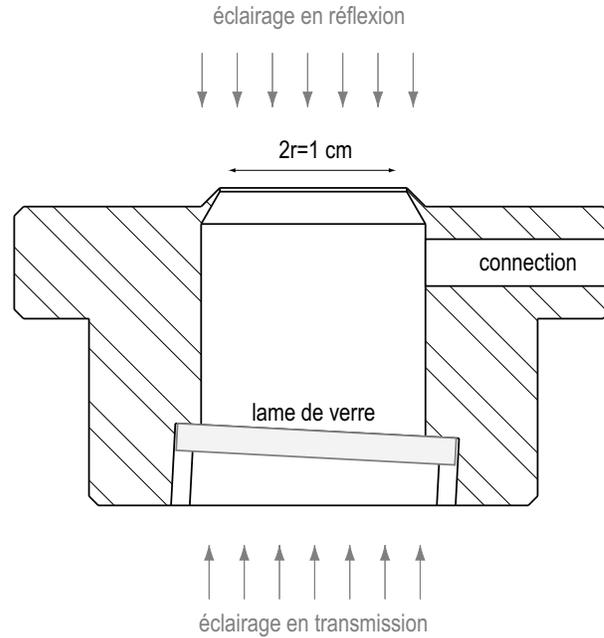


FIG. 7.2 – Vue en coupe du support de géométrie cylindrique. Le film, observable en réflexion et en transmission, est étiré sur le bec circulaire. L'intérieur du support est connecté au reste du dispositif par l'orifice de côté.

Enfin, ajoutons que ce support est placé dans une boîte permettant d'isoler le film des courants d'air et des poussières. Cette boîte possède deux fenêtres verticales qui permettent la visualisation de côté de la bulle et une fenêtre inclinée (pour la même raison que précédemment) en haut du support garantissant une observation optimale du film suivant l'axe optique vertical.

Étirement du film

Pour étirer un film sur le support, nous faisons glisser sur le bec une spatule enduite de cristal liquide à son extrémité. Plus le déplacement de la spatule est lent, plus le film obtenu est épais. Pour réaliser des films très épais jusqu'à 3000 couches, nous avons utilisé le même procédé que celui décrit dans la partie II. En effet, nous avons fixé la spatule sur une platine de déplacement micrométrique actionnée par un petit moteur à courant continu fortement démultiplié. Ce montage permet d'obtenir des vitesses de l'ordre de quelques $\mu\text{m/s}$.

Après avoir étiré le film, son épaisseur n'est pas uniforme en général. Nous attendons donc le temps nécessaire pour qu'il s'homogénéise en épaisseur, puis nous mesurons cette

dernière à l'aide de la même technique que celle développée dans la partie II.

Gonflage de la bulle

Le gonflage de la bulle est une étape délicate de sa préparation. Si la bulle est gonflée trop rapidement, on risque d'amincir le film et de ne pas obtenir une bulle d'épaisseur uniforme. C'est en fait le problème inverse au problème d'effondrement d'une bulle. Lorsqu'on gonfle la bulle, de la matière doit être prise dans le ménisque pour augmenter la surface du film. Le ménisque résistant fortement à une telle action, la pression à l'intérieur du film chute. La différence de pression entre le film et le ménisque ΔP_{film} est d'autant plus importante que la vitesse de gonflage est importante d'après le modèle quasi-statique (partie II). Or, le rayon de nucléation d'une boucle de dislocation est inversement proportionnel à la différence de pression entre le film et l'extérieur. Ainsi, plus on gonfle vite, plus le rayon de nucléation des pores est petit, ce qui peut conduire à l'amincissement du film. En effet, les poussières contenues dans le film peuvent jouer le rôle de centre de nucléation si le rayon de nucléation devient inférieur à leurs rayons.

Pour ne pas amincir le film, il est donc nécessaire de gonfler la bulle très lentement. Pour cela on utilise une seringue montée sur un pousse-seringue. La vitesse de poussée du piston de la seringue est très faible (et contrôlable), ce qui permet de gonfler la bulle très lentement, de façon régulière, à des vitesses n'excédant pas quelques ml/h.

7.1.3 Visualisation

Le dispositif expérimental est équipé de deux systèmes d'observation du film, l'un vertical et l'autre horizontal, que nous allons décrire. Une photo du montage est visible sur la figure 7.3.

Banc optique vertical

Le système de visualisation verticale est réalisé avec un objectif zoom $\times 6$ de microscope Leica M420 de très bonne qualité optique. Associé à un système de bagues, il permet de visualiser le film avec une caméra de vidéo surveillance standard ayant un champ de taille variable allant de 1 cm à 0,5 mm, ce dernier correspondant à une résolution de l'ordre du $\mu\text{m}/\text{pixel}$. Ce dispositif est très intéressant car il permet de facilement visualiser le film dans son ensemble afin de compter le nombre d'îlots éventuels après un effondrement de la bulle, de vérifier si son épaisseur est uniforme... ou encore d'observer des menus détails du système comme la structure du ménisque, la taille des îlots et des poussières, etc.

Nous avons en plus la possibilité avec ce système d'observer le film en réflexion ou en transmission. La visualisation en transmission est simplement réalisée en plaçant un boîtier d'éclairage sous le support. En revanche, la visualisation en réflexion est plus complexe à réaliser puisque l'éclairage doit se faire par le haut à l'aide d'une lame semi-réfléchissante.



FIG. 7.3 – Photo du dispositif expérimental.

Pour cela nous avons adapté au système la tête du microscope en réflexion que nous avons utilisé dans les expériences décrites dans la partie II. Comme cette tête peut pivoter autour d'un axe vertical, il devient possible (voir sur la photo 7.3 le plateau en haut à droite) :

- soit d'observer le film avec un boîtier d'éclairage en lumière blanche auquel on peut ajouter différents filtres interférentiels qui sont importants pour discerner des variations d'épaisseur dans les films épais.
- soit de déterminer son épaisseur en mesurant grâce à un monochromateur l'intensité qu'il réfléchit à différentes longueurs d'onde λ . Nous avons là aussi adapté le système de mesure d'épaisseur développé par Jean-Christophe Géminard sur le banc expérimental précédent (partie II). Le spectre d'intensité réfléchié obtenu avec un film d'épaisseur

$h = 8510$ nm est donné en exemple sur la figure 7.4.

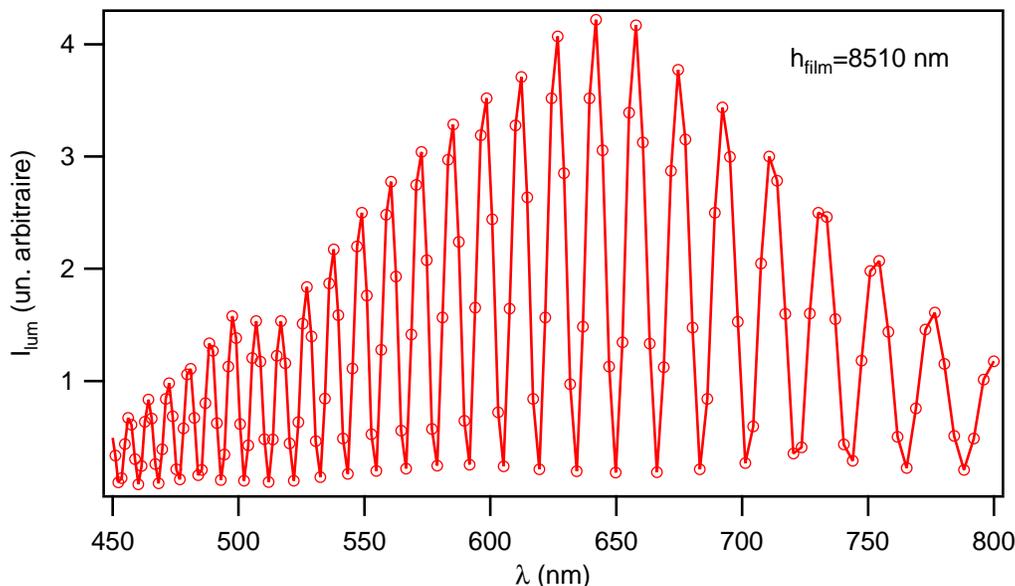


FIG. 7.4 – Intensité lumineuse I_{lum} (en unité arbitraire) réfléchie par un film en fonction de la longueur d’onde λ lors de la mesure d’épaisseur (chaque cercle correspond à une mesure). On en déduit que l’épaisseur du film est $h = 8510$ nm.

Enfin, précisons que le support du film est fixé sur un banc que l’on peut déplacer dans les 3 directions à l’aide de platines micrométriques. Le déplacement dans la direction verticale permet de réaliser la mise au point et ceux dans les autres directions, de sélectionner les différentes zones d’intérêt du film.

Banc optique horizontal

Le système de visualisation horizontale est réalisé avec le même type d’objectif de microscope. Il permet d’observer l’évolution de la bulle dans son ensemble ou celle d’un détail, comme le ménisque par exemple. L’effondrement de la bulle est filmé avec une caméra rapide Photron Fastcam Ultima 1024 qui permet de réaliser jusqu’à 4000 images/s tout en observant la bulle complète avec une résolution de $512 \text{ pixels} \times 128 \text{ pixels}$.

Le système de visualisation de la bulle en transmission est à gauche de la bulle, le boîtier d’éclairage en lumière blanche à rayons parallèles se trouvant à sa droite. Un filtre interférentiel peut être interposé entre la bulle et le boîtier ; avec cet éclairage monochromatique, des franges circulaires concentriques rappelant les franges de ”Newton” décorent la bulle quand les films sont épais ($h > \lambda/n_0$) (voir la photo 7.5 que nous avons réalisée avec un filtre rouge de longueur d’onde $\lambda = 633$ nm ; dans ce cas le film a pour épaisseur $h = 8510$ nm). L’analyse du profil de l’intensité transmise dans un plan équatorial de la bulle fournit une autre façon de mesurer l’épaisseur du film. Cette technique, développée par Stannarius dans la référence [51], est bien adaptée aux films épais et demande, pour

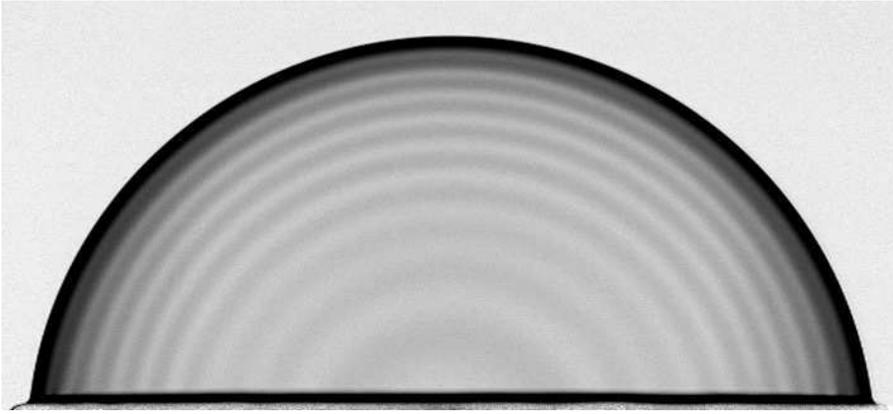


FIG. 7.5 – Observation en transmission avec un filtre interférentiel rouge $\lambda = 633$ nm, d’une bulle d’épaisseur uniforme. L’analyse [51] des franges circulaires permet de mesurer l’épaisseur du film, ici très épais : $h = 8510$ nm. L’image est obtenue en soustrayant l’intensité lumineuse transmise sans bulle à celle avec bulle.

être précise, d’utiliser une caméra performante ayant une bonne résolution et une bonne dynamique en niveaux de gris. En pratique, néanmoins, nous n’avons pas employé cette méthode pour mesurer l’épaisseur du film, mais seulement la technique d’analyse du spectre cannelé décrite auparavant. Nous tenions par contre à mentionner cette technique originale de Stannarius que nous avons testée et qui peut être intéressante puisqu’elle est seulement basée sur une analyse d’images et qu’elle ne nécessite pas de posséder un monochromateur.

Mesure de la pression capillaire ΔP_l

La pression capillaire $\Delta P_l = 4\gamma/R$ est mesurée en déterminant la courbure de la bulle observée horizontalement. Un programme de traitement d’image permet de réaliser cette mesure automatiquement sur toutes les images réalisées lors de l’effondrement de la bulle. Les différentes étapes de cette analyse sont illustrées sur l’image 7.6 d’une bulle d’épaisseur $H = 1555$ nm, gonflée à 206 dyn/cm². Après avoir défini la zone d’intérêt où se trouve la bulle (tracé en pointillé), l’analyse consiste d’abord à détecter le contour de la bulle. Le long de chaque ligne verticale dans la zone d’intérêt, la position du bord de la bulle correspond à l’endroit où la dérivée seconde du profil d’intensité de cette ligne s’annule. Puis, le contour obtenu est ajusté par un cercle. Les paramètres du cercle, à savoir la position (x_O, y_O) de son centre O (x étant la coordonnée horizontale) et son rayon R (égal au rayon de courbure de la bulle), sont ainsi déterminés avec une grande précision.

Remarquons qu’une mesure directe de la hauteur x de la bulle sur l’image est peu précise (à 1 pixel près), en comparaison de la mesure du rayon R qui permet de déduire x avec une précision supérieure au 1/10 de pixel grâce à la formule géométrique suivante :

$$x = R - \sqrt{R^2 - r^2} \quad (7.1)$$

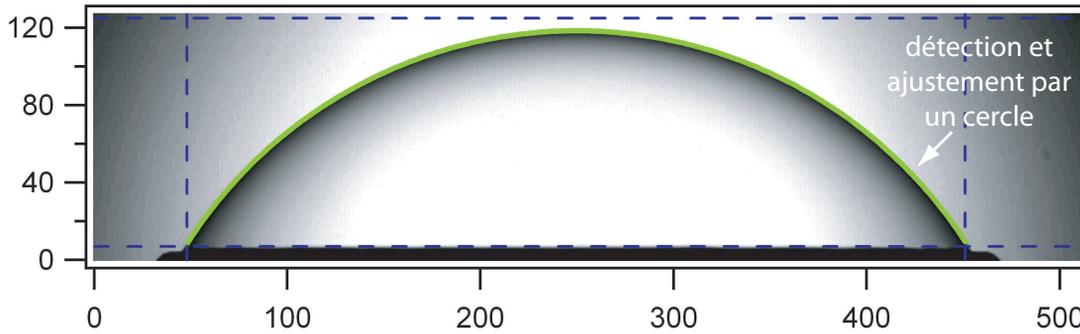


FIG. 7.6 – Photo d’une bulle d’épaisseur $h = 1555$ nm, gonflée à 206 dyn/cm². Le programme de traitement d’image, après avoir défini la zone d’intérêt à l’intérieur du cadre en pointillé, détecte le contour de la bulle. Ce dernier est ajusté par un cercle dont les coordonnées du centre (en pixels) sont $x_O = 249.9$, $y_O = -121.8$ et le rayon $R = 240.2$ (le rayon du cadre valant $r = 205$).

Il faut toutefois noter que cette méthode de détermination de la hauteur de la bulle a ses limitations et devient très peu précise lorsque $x \sim r$ ou $R \sim r$ ce qui correspond à une surpression maximale à l’intérieur de la bulle ($\Delta P_{max} = 4\gamma/r$). En effet, dérivons l’expression précédente. On remarque que dx/x diverge pour $R = r$, même si la mesure de R est très précise :

$$\frac{dx}{x} \sim \frac{dR}{\sqrt{R^2 - r^2}} \quad (7.2)$$

Pour cette raison, en particulier, et même si nous avons montré dans le chapitre précédent que l’effet de dissipation dans le smectique est maximal lorsque $x = r$, nous avons choisi de partir d’une bulle moins gonflée pour étudier son effondrement dans nos expériences. Plus précisément, nous avons pris $\Delta P \sim 0.8$, soit $X = x/r \sim 1/2$, comme condition initiale à l’instant $T = 0$. Une autre raison justifiant ce choix est que lorsque la bulle est trop gonflée ($x \sim r$), sa base a tendance à s’élargir (le ménisque glissant sur le support), ce qui crée une incertitude de mesure sur le rayon du cadre r et, par conséquent, aussi sur le volume, la surface et la hauteur de la bulle.

7.1.4 Mesure de la pression à l’intérieur de la bulle

Pour mesurer la surpression à l’intérieur de la bulle ΔP_i , il a fallu trouver un capteur de pression qui réponde au deux critères suivants :

- un capteur de pression suffisamment sensible pour mesurer de très faibles différences de pression. En effet, puisque la tension de surface d’un film de $8CB$ vaut 30 dyn/cm, la surpression maximale à l’intérieur de la bulle $\Delta P_{max} = 4\gamma/r$ vaut, avec un cadre de rayon $r = 0,5$ cm, seulement 240 dyn/cm² en unité CGS, ce qui correspond à 24 Pa dans le système international.

- un capteur de pression suffisamment rapide, capable de mesurer de façon fiable l'évolution de ΔP_i lors de l'effondrement. Il faut donc que son temps de réponse soit toujours très petit devant tous les temps caractéristiques importants du problème. C'est le cas s'il est inférieur au temps t_a lié à la compressibilité de l'air (voir tableau 6.2). Ce critère fixe le temps de réponse du capteur à une dizaine de ms.

En pratique, ces critères (précision et rapidité) ne sont pas très compatibles, d'où la difficulté de trouver un capteur de pression convenant aux expériences. Par exemple, les petits capteurs piézo-résistifs, réputés pour leur rapidité sont trop peu sensibles, la gamme minimale de différence de pression qui leur est accessible étant de quelques centaines de Pa.

Le capteur de pression que nous avons choisi, et qui répond le mieux à ces critères, est le capteur de pression LPM5480 de chez Druck. Le LPM5480 est un capteur différentiel, mesurant des pressions entre ± 50 Pa avec une précision de $\pm 0,1$ Pa et un temps de réponse de l'ordre de 10 ms. Son principe de fonctionnement est basé sur la déflexion d'un fin diaphragme métallique dont le très faible déplacement est mesuré à l'aide d'un capteur magnéto-inductif qui donne en sortie un signal de tension étalonné, 1 V correspondant à 100 dyn/cm², soit 10 Pa.

Lors de l'effondrement de la bulle, l'évolution du signal de pression est enregistrée à l'aide d'un oscilloscope à mémoire Agilent.

7.1.5 Déclenchement : vanne smectique

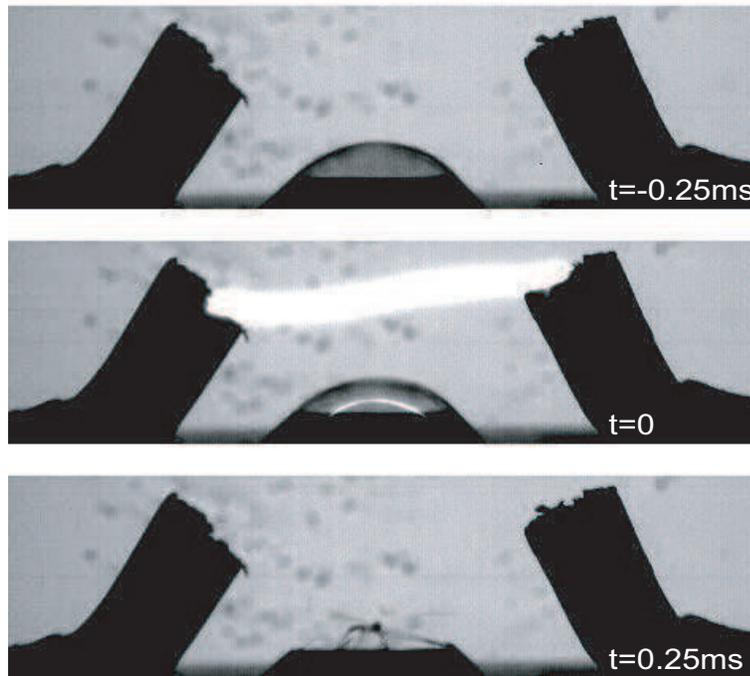


FIG. 7.7 – Séquence de photos prise avec la caméra rapide à 4000 images/s, montrant que l'ouverture de la vanne smectique dure environ 1/4 ms lorsque l'étincelle est produite.

Le dispositif expérimental que l'on vient de présenter, permet ainsi de mesurer la pression capillaire et la pression à l'intérieur de la bulle lors de son effondrement. Pour pouvoir calculer l'écart à la loi de Laplace, il faut que ces deux mesures soient parfaitement synchronisées et que le temps $t = 0$ correspondant à l'ouverture de la vanne soit bien défini.

Pour y parvenir, nous avons réalisé une vanne smectique dont l'ouverture déclenche la mesure de pression. Plus précisément, la vanne est constituée d'une petite boîte avec deux ouvertures (voir figure 7.1). La fin du capillaire est reliée à la première ouverture tandis que sur la deuxième on étire un film smectique. Le système est ainsi fermé et peut être mis sous pression en actionnant la seringue pour gonfler la bulle. On réalise ensuite l'effondrement de la bulle en cassant le film sur cette boîte. Pour cela, nous avons placé deux électrodes au-dessus de ce dernier, qui sont connectées à un allume-gaz piézoélectrique. En actionnant celui-ci, une tension de plusieurs kilovolts est créée aux extrémités des électrodes, ce qui génère une étincelle qui casse le film et ouvre le système. À cause du fort champ électromagnétique qu'elle émet, l'étincelle peut être facilement détectée à l'aide d'une antenne reliée à l'entrée "trigger" de l'oscilloscope. L'expérience montre que la tension aux bornes de l'antenne varie de quelques volts sur moins d'une microseconde, ce qui permet de déclencher l'enregistrement du signal de pression à l'intérieur de la bulle. Parallèlement, la caméra rapide est déclenchée par le signal de sortie du trigger de l'oscilloscope. Ce système de vanne smectique permet donc de déclencher et de synchroniser, avec une grande précision, les mesures de ΔP_i et ΔP_l . Comparé à des électro-vannes commerciales, ce système a l'avantage d'être très rapide, de ne pas provoquer d'appel d'air (sur cette échelle de temps le film de la vanne n'est pas déformé par le fort champ électromagnétique) et aussi d'être très peu coûteux.

Pour homologuer le fonctionnement de cette vanne smectique, il suffit de filmer son ouverture avec la caméra rapide en la déclenchant par la vanne. Les trois photos consécutives d'un film pris avec la caméra rapide avec une fréquence d'acquisition de 4000 images/s sont montrées sur la figure 7.7. Le système de déclenchement fonctionne donc parfaitement puisque l'étincelle apparaît bien sur la photo du centre correspondant au temps $t = 0$ de la caméra. Nous pouvons de plus remarquer que l'ouverture de la vanne est très rapide puisque le film casse en moins de $1/4$ de ms.

7.2 Première approche : évolution de ΔP_i

L'étude théorique présentée dans le chapitre précédent met clairement en évidence l'importance de l'évolution de la surpression ΔP_i à l'intérieur de la bulle pour caractériser la dissipation dans le système. En effet, d'après les calculs et les simulations que nous avons réalisés, une simple mesure du saut de pression au début de l'effondrement permet d'évaluer le rapport $\xi = t_{sm}/t_c$ entre le temps smectique et le temps capillaire. Pour ces raisons, nous avons, dans un premier temps, mesuré ΔP_i , sans nous intéresser à l'évolution de la pression

capillaire. Cette première approche est importante, car elle permet d'aborder simplement le problème de la dynamique d'effondrement d'une bulle et de révéler, en particulier, l'effet du capteur de pression et surtout les insuffisances du modèle linéaire développé en régime quasi-statique.

7.2.1 Données expérimentales

Ces expériences préliminaires ont été réalisées avec un même film très épais : $N = 2830$ couches. Pendant toute la durée des expériences et malgré les nombreux gonflages et dégonflages du film, son épaisseur a été conservée. Cette observation suggère donc que cette dernière reste uniforme au cours de l'effondrement de la bulle et que, par conséquent, toute la matière contenue dans l'excès de surface de la bulle est échangée avec le ménisque, en accord avec l'hypothèse faite dans la partie théorique.

Pour étudier l'influence sur la dissipation de la vitesse à l'entrée du ménisque, nous avons effectué des effondrements plus ou moins rapides en utilisant des capillaires de différentes longueurs. Nous avons utilisé huit capillaires de rayon $a = 0,04$ cm. Rappelons (voir section 6.2.3) que cette valeur du rayon a est optimale pour un cadre de rayon $r = 0,5$ cm, car elle permet de réaliser les effondrements les plus rapides possible tout en respectant la loi de Poiseuille (effets inertiels et effets de bords négligeables). La longueur minimale du capillaire (voir tableau 6.1) permettant de réaliser l'effondrement le plus rapide est $L^{min} \sim 6$ cm. En partant de cette longueur minimale, nous avons choisi des capillaires de plus en plus longs en doublant au fur et à mesure leur longueur. Pour réaliser des effondrements encore plus rapides, nous avons fabriqué deux autres capillaires : l'un est constitué de 2 capillaires de 6 cm de longueur en parallèle et l'autre de 4 capillaires identiques en parallèle. De cette façon, les vitesses dans les capillaires restent du même ordre de grandeur que dans un seul capillaire lors de l'effondrement. Pour cette raison, le critère inertiel et celui sur les effets de bords sont encore vérifiés. Enfin, rappelons que le temps capillaire t_c correspondant à ces différents montages, est donné en théorie par la relation :

$$t_c = \frac{\eta_a L r^4}{2\gamma a^4 n} \quad (7.3)$$

où n est le nombre de capillaires en parallèle. Leurs valeurs, mesurées expérimentalement, sont données dans le tableau 7.1 où nous avons numéroté les capillaires de 1 à 8 par ordre décroissant en longueur L . La technique de mesure de ces temps capillaires sera discutée ultérieurement.

En utilisant ces capillaires, nous avons ainsi réalisé des expériences d'effondrement de bulle plus ou moins rapides en enregistrant le signal de surpression à l'intérieur de la bulle ΔP_i . Les bulles sont ici gonflées à moitié au début de l'effondrement ($X = 1/2$ à $T = 0$) pour les raisons invoquées dans le paragraphe précédent 7.1.3. Les évolutions de la surpression normalisée ΔP en fonction du temps normalisé par le temps capillaire correspon-

	$\sim L$ (cm)	t_c (s)
1	192	19,4
2	96	10,7
3	48	4,98
4	24	1,95
5	12	0,995
6	6	0,498
7	$2 \times 6 \parallel$	0,285
8	$4 \times 6 \parallel$	0,148

TAB. 7.1 – Tableau des valeurs des temps capillaire t_c correspondant aux différents capillaires utilisés expérimentalement. Nous les avons numérotés de 1 à 8 par ordre décroissant en longueur L .

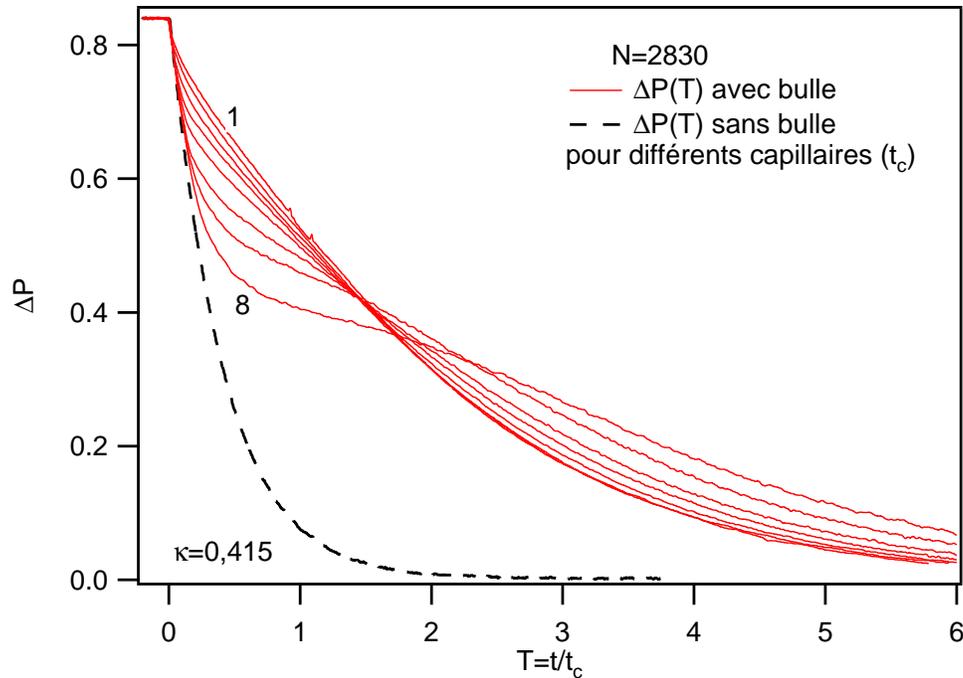


FIG. 7.8 – Données expérimentales de l'évolution de la surpression normalisée $\Delta P = \Delta P_i / \Delta P_{max}$ en fonction du temps normalisé $T = t/t_c$ lors de l'effondrement de la bulle. Les huit expériences ont été réalisées avec les capillaires décrits dans le tableau 7.1 ; plus le capillaire est court, plus la chute de pression au début est grande. La courbe en pointillé représente l'évolution de ΔP en fonction du temps normalisé, lors des expériences de détente du système réalisée sans bulle.

nant, $T = t/t_c$, sont tracées sur la figure 7.8. Nous remarquons que plus le capillaire est court, plus la chute de pression au début de l'effondrement est grande. Soulignons que ces évolutions sont semblables à celles obtenues lors des simulations numériques présentées dans le chapitre précédent. On remarquera que toutes les courbes $\Delta P(T)$ chutent au début de

l'effondrement plus ou moins fortement et possèdent la même tangente à l'origine, ce qui nous fait immédiatement penser à l'effet de compressibilité de l'air discuté dans la section 6.5.1. Précisons ce point.

7.2.2 Effet volumique du capteur de pression

Nous avons montré dans le chapitre précédent que l'effet de compressibilité de l'air est lié à la détente à travers le capillaire de l'air contenu dans le système. En effet la diminution de la pression du gaz s'accompagne d'une augmentation de son volume qui doit s'écouler à travers le capillaire. D'après la loi de Poiseuille corrigée 6.51, et si l'expérience est réalisée sans bulle ($dV/dt = 0$), la pression doit relaxer de manière exponentielle avec le temps caractéristique t_a , d'expression (éq. 6.52) :

$$t_a = \frac{8\eta_a L V_{mort}}{\pi a^4 P_a} = \frac{8}{3} \frac{\Delta P_{max}}{P_a} \frac{V_{mort}}{V_{max}} t_c \quad (7.4)$$

où les constantes $\Delta P_{max} = 4\gamma/r$ et $V_{max} = \frac{2}{3}\pi r^3$ sont respectivement la surpression et le volume typique correspondant à une bulle de hauteur égale au rayon du cadre $x = r$. Rappelons que cette formule n'est valable que si le volume mort V_{mort} du système est beaucoup plus grand que le volume de la bulle. t_a est proportionnel au temps capillaire et il est d'autant plus grand que le volume d'air V_{mort} est grand.

L'expérience sans bulle est facilement réalisable et permet de vérifier et de caractériser expérimentalement cet effet de compressibilité de l'air. Plus précisément, cette expérience consiste simplement à fermer le trou du support sur lequel le film est étiré, à fermer la vanne de l'autre côté, à comprimer l'air contenu dans le même volume mort V_{mort} à la même surpression qu'avec la bulle, et à réaliser la détente à travers le capillaire en ouvrant la vanne et en enregistrant l'évolution de la pression ΔP à l'intérieur du système. Après avoir réalisé cette expérience avec chaque capillaire, l'analyse des courbes de pression révèle deux propriétés importantes caractéristiques d'un effet de compressibilité de l'air. La première est qu'après normalisation du temps par le temps capillaire : $T = t/t_c$, les courbes se recouvrent toutes. La courbe normalisée $\Delta P(T)$ ainsi obtenue est tracée en pointillé sur la figure 7.8. La seconde propriété est que cette courbe est parfaitement ajustée par une loi exponentielle :

$$\Delta P_{sans}(T) = \Delta P_0 e^{-T/\kappa} \quad (7.5)$$

ce qui permet de déterminer le rapport, important expérimentalement, entre les temps t_a et t_c : $\kappa = t_a/t_c = 0,415$. D'après l'expression 7.4, il faudrait pour que cet effet soit uniquement dû à la compressibilité de l'air, que le rapport entre le volume mort du système V_{mort} et le volume typique de la bulle V_{max} soit énorme, de l'ordre de 650. Or, expérimentalement on peut évaluer ces deux volumes : $V_{max} \sim 0,26 \text{ cm}^3$ et $V_{mort} \sim 15 \text{ cm}^3$, ce qui donne un rapport de l'ordre de 60, dix fois plus faible. Ainsi, la relaxation de la pression à l'intérieur

du système n'est pas dû au seul effet de la compressibilité de l'air, bien que le comportement soit strictement identique.

Puisque cet effet est normalisé par le temps capillaire, il s'agit nécessairement d'un effet volumique lié au capteur de pression. Le principe de fonctionnement du capteur permet d'expliquer cet effet volumique puisqu'il est basé sur la déflexion d'un fin diaphragme métallique dont le très faible déplacement est mesuré à l'aide d'un capteur magnéto-inductif. Ainsi à une surpression ΔP_i correspond une certaine déformation de la membrane à laquelle est associée un volume d'air supplémentaire ΔV_c . Pour que la pression change, il faut que la variation de volume correspondante passe à travers le capillaire, ce qui s'écrit d'après la loi de Poiseuille :

$$\Delta P_i = -\frac{8\eta_a L}{\pi a^4} \frac{d\Delta V_c}{dt} \quad (7.6)$$

Essayons de quantifier cet effet et de déterminer l'ordre de grandeur du déplacement de la membrane à partir de nos données expérimentales en sachant que la membrane du capteur a un rayon r_c de l'ordre de 3 cm. Puisque que le capteur est linéaire, la déformation de la membrane doit être faible pour que le déplacement du sommet de la membrane δ soit proportionnel à la surpression. Par conséquent, on doit aussi avoir une relation linéaire entre la surpression ΔP et le volume supplémentaire ΔV_c dû à la déformation. Par exemple, en modélisant la membrane par une calotte sphérique, si la déformation est faible, $\delta \ll r_c$, d'après l'équation 6.2, le volume contenu dans cette calotte s'écrit $\Delta V_c \simeq \frac{\pi}{2} r_c^2 \delta$, ce qui montre que δ est proportionnel à ΔP_i d'après la loi des gaz parfaits. Posons alors la relation de proportionnalité suivante :

$$\Delta V_c = \alpha \frac{V_{max}}{\Delta P_{max}} \Delta P_i \quad (7.7)$$

où α représente le rapport du volume du capteur ΔV_c sur celui de la bulle V_{max} lorsque le rayon de la bulle est égal au rayon du cadre $x = r$. En effet, quand $\Delta P_i = \Delta P_{max} = 4\gamma/r$, la relation s'écrit $\Delta V_c = \alpha V_{max}$ avec $V_{max} = \frac{2}{3}\pi r^3$. En remplaçant ΔV_c par son expression 7.7 dans la loi de Poiseuille 7.6, on obtient :

$$\Delta P_i = -\frac{8}{3}\alpha t_c \frac{d\Delta P_i}{dt} \quad (7.8)$$

ce qui donne

$$\kappa = \frac{8}{3}\alpha \quad (7.9)$$

On retrouve ainsi une équation différentielle du premier ordre, la pression relaxant bien de manière exponentielle. Les données expérimentales (qui donnent κ) permettent donc d'évaluer α qui est de l'ordre de 0,16. Évaluons maintenant le déplacement de la membrane lorsque $\Delta P_i = 4\gamma/r \sim 24$ Pa ; on obtient en modélisant la membrane par une calotte sphérique :

$$\delta = \frac{\kappa r^3}{2 r_c^2} \sim 29 \mu\text{m} \quad (7.10)$$

Ce déplacement est dans une plage de mesure très raisonnable pour un capteur magnéto-inductif, ce qui valide indirectement notre analyse. Notons que nous n'avons pas pu obtenir ces données du constructeur du capteur, ce qui aurait été encore plus convainquant.

En conclusion, la relaxation de la pression est trop lente pour être entièrement associée à un effet de compressibilité de l'air contenu dans le volume mort qui se détend à travers le capillaire; c'est en fait essentiellement un effet instrumental lié aux déformations de la membrane du capteur de pression qui, par chance, se modélise exactement de la même manière qu'un pur effet de compressibilité de l'air dans l'équation de Poiseuille (voir équation 6.51).

Pour terminer cette section, soulignons que nous avons utilisé cette propriété du capteur de pression et la relaxation exponentielle de la pression à travers un capillaire pour mesurer très précisément le temps capillaire t_c qui lui est associé. En effet, la donnée du constructeur sur le rayon a du capillaire en plastique étant très peu précise, l'évaluation de t_c à l'aide de la relation 7.3 l'est encore moins puisque t_c varie comme $1/a^4$. En fait, le rapport L/a^4 de chaque capillaire a été déterminé précisément en comparant le temps de relaxation de la pression déduit du "fit" de la courbe de pression (sans bulle) en fonction du temps par une loi exponentielle, avec ceux obtenus avec des capillaires en verre calibrés.

7.2.3 Dissipation en fonction de la vitesse d'effondrement

Maintenant que nous comprenons mieux notre système et l'effet du capteur de pression, analysons l'évolution de $\Delta P(T)$ enregistrée avec chaque capillaire lors de l'effondrement d'une bulle. Notre but sera de caractériser la dissipation dans le ménisque en fonction de la vitesse d'entrée de la matière dans le ménisque, de valeur typique r/t_c . L'analyse est réalisée en ajustant le saut de pression au début de l'effondrement avec le modèle théorique développé dans le chapitre précédent. Ce modèle dépend seulement de deux paramètres : le rapport $\kappa = t_a/t_c$ traduisant l'effet du capteur et le rapport $\xi = t_{Sm}/t_c$ permettant de comparer la dissipation dans le smectique à la dissipation dans le capillaire. D'après ce qui précède, $\kappa = 0,415$. Le seul paramètre ajustable est donc le rapport ξ . Les valeurs de ξ obtenues pour chacune des 8 expériences décrites sur la figure 7.8 sont tracées en fonction de la vitesse typique r/t_c sur la figure 7.9a.

Rappelons que dans le cadre du modèle hydrodynamique linéaire développé dans le régime quasi-statique, nous avons trouvé que (équation 6.31) :

$$t_{Sm} = \frac{CHr}{2\gamma m} \quad \text{où par définition} \quad \Delta P_{film} = \frac{C}{m} v_{men} \quad (7.11)$$

Dans ce régime (voir partie II), la constante de dissipation pour un film de 2830 couches vaut $C(2830) \sim 1,9$, ce qui correspond à un temps caractéristique de la dissipation dans le

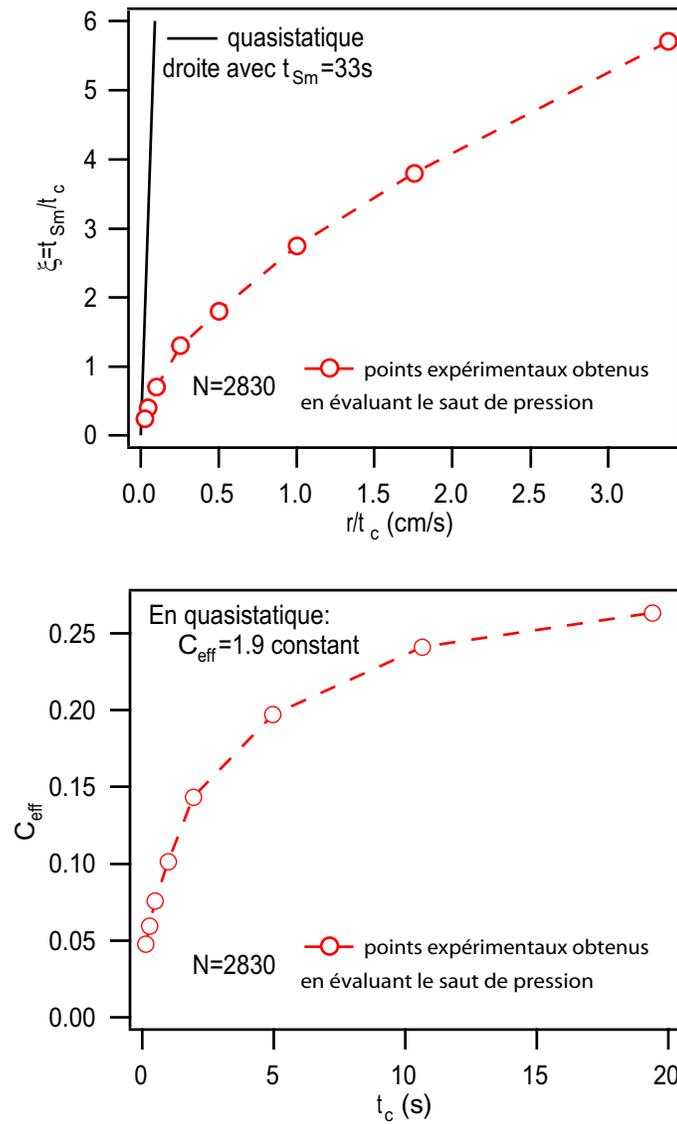


FIG. 7.9 – Résultats obtenus en évaluant le saut de pression des différentes expériences montrées sur la figure 7.8 avec le modèle développé dans le chapitre précédent : (a) évolution du rapport $\xi = t_{sm}/t_c$ en fonction de la vitesse typique de l'expérience r/t_c ; (b) évolution de C_{eff} en fonction du temps capillaire t_c .

ménisque très grand, $t_{sm}(q.s.) \sim 33$ s. De plus, puisque t_{sm} est constant, ce modèle prévoit que le rapport $\xi = t_{sm}/t_c$ doit être une fonction linéaire de la vitesse caractéristique r/t_c . Cette droite est tracée sur la figure 7.9a. Sur ce graphique, nous remarquons alors deux points essentiels :

1. que les points expérimentaux sont très en-dessous de la droite, ce qui met en évidence que la dissipation dans le ménisque est beaucoup moins importante que celle attendue en régime quasi-statique.
2. que les points expérimentaux ne suivent pas une loi linéaire caractéristique d'une constante de dissipation C constante, c'est-à-dire indépendante de la vitesse à l'entrée

du ménisque, comme le montre le modèle quasi-statique (équation 7.11).

En revanche, on peut, pour chaque expérience, déterminer la constante de dissipation effective C_{eff} qui permet d'ajuster le modèle à l'expérience. Cette valeur, déduite via l'équation 7.11 de la valeur de ξ mesurée, est représentée en fonction du temps capillaire t_c sur le graphique 7.9b. Nous remarquons à nouveau que la constante de dissipation est plus de dix fois inférieure à la constante $C(2830) \sim 1,9$ trouvée en régime quasi-statique et surtout qu'elle dépend fortement de la vitesse de l'effondrement. En effet, plus la vitesse à l'entrée du ménisque est grande, moins la dissipation à l'entrée du ménisque est importante, en terme de constante de dissipation. Ainsi, ces expériences montrent que le modèle linéaire (équation 7.11) développé en régime quasi-statique ne permet pas de décrire la dissipation dans le ménisque, quand les échanges de matière avec le film sont rapides.

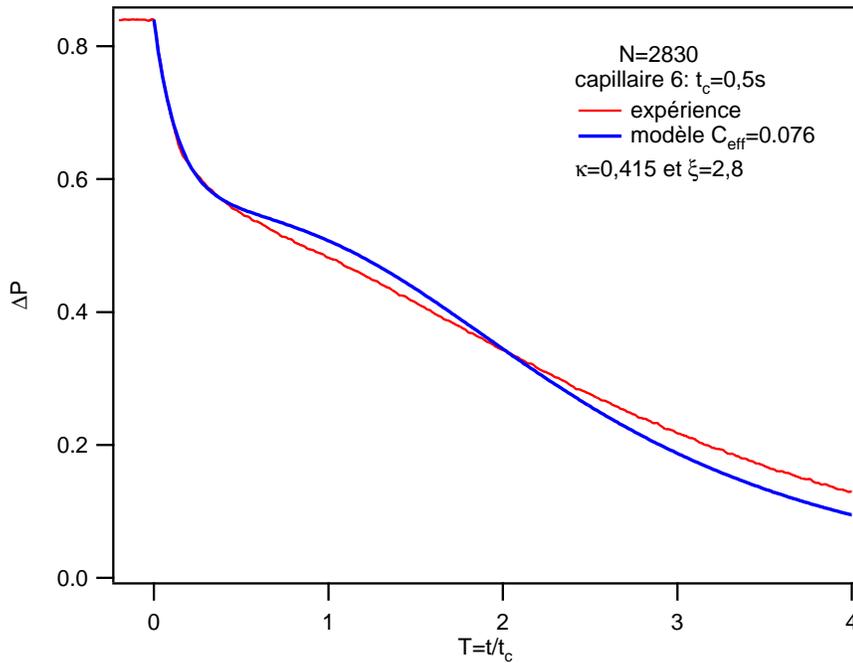


FIG. 7.10 – Exemple de la courbe théorique obtenue en ajustant le saut de pression pour l'expérience réalisée avec le capillaire 6 ($t_c = 0,5s$) avec les paramètres suivant : $\kappa = 0,415$ et $\xi = 2,8$.

Sur la figure 7.10, en prenant comme exemple l'expérience d'effondrement réalisée avec le capillaire 6 qui correspond à un temps capillaire $t_c = 0,5s$, nous avons tracé la courbe expérimentale de l'évolution de la pression $\Delta P(T)$ et la courbe théorique obtenue en ajustant le saut de pression au début de l'effondrement. Les paramètres d'ajustement sont ici $\kappa = 0,415$ et $\xi = 2,8$. La comparaison des deux courbes met clairement en évidence que ΔP_{film} n'est pas proportionnel à v_{men} au cours de l'effondrement, puisque la courbe théorique, après avoir ajusté correctement le saut de pression, passe au-dessus de la courbe expérimentale, puis en-dessous. Le modèle linéaire permet donc seulement d'évaluer la dissipation dans le

ménisque au début de l'effondrement en reproduisant le saut de pression.

En conclusion, cette première approche expérimentale de l'effondrement d'une bulle, où nous nous sommes limités à mesurer la pression à l'intérieur de la bulle, a permis de mieux comprendre son évolution et de mettre en évidence un effet volumique important du capteur de pression. La comparaison des données expérimentales avec la théorie linéaire a aussi permis de montrer que la dissipation dans le ménisque est beaucoup moins importante que prévue par le modèle en régime quasi-statique lorsque le flux de matière à l'entrée du ménisque devient important, et qu'il n'est plus possible dans ces conditions d'écrire une relation linéaire entre ΔP_{film} et v_{men} . Dans la section suivante, une visualisation de la bulle et une mesure de l'écart à la loi de Laplace va nous permettre de mieux comprendre et de caractériser plus finement ces deux derniers points.

7.3 Deux étapes dans la dynamique d'effondrement

La dynamique d'effondrement d'une bulle smectique (partiellement gonflée) se décompose en deux étapes : une première étape conduisant à la déstructuration du ménisque qui le rend plus perméable, suivie d'une étape où la matière peut s'engouffrer dans le ménisque et où la bulle s'effondre. Nous allons mettre en évidence et caractériser ces deux étapes à l'aide d'observations optiques et de mesures de l'écart à la loi de Laplace.

7.3.1 Première étape : déstructuration du ménisque

Recul du ménisque

Après l'ouverture de la vanne, au début de l'effondrement de la bulle, les observations de la bulle dans son ensemble donnent l'impression que la bulle ne change pas de forme, résistant fortement à l'effondrement. Les mesures de l'évolution de la pression à l'intérieur de la bulle confirment ce point puisqu'au début, la pression chute comme si la bulle était solide (courbe en pointillé sur la figure 7.8), c'est-à-dire comme si son volume restait constant, seul le capteur de pression se déformant lors des changements de pression.

Cependant, des observations, plus précises utilisant la forte capacité de grossissement du système optique, mettent clairement en évidence un recul du ménisque lors de cette phase. Pour étudier ce recul initial, nous avons filmé avec la caméra rapide, en observation horizontale avec un fort grossissement, l'évolution du ménisque. Deux photos prises au début ($t = 0$) et à la fin ($t=100$ ms) de cette phase, extraites d'un tel film, sont montrées sur la figure 7.11. Elles ont été réalisées lors de l'effondrement d'une bulle de 1840 couches à travers un capillaire de 6 cm.

L'analyse de ces images permet de détecter la limite film-ménisque et de déterminer l'évolution au cours du temps de la hauteur du ménisque h_{men} (figure 7.12). Après l'ouverture de la vanne, nous remarquons que la hauteur du ménisque h_{men} diminue de plus en plus

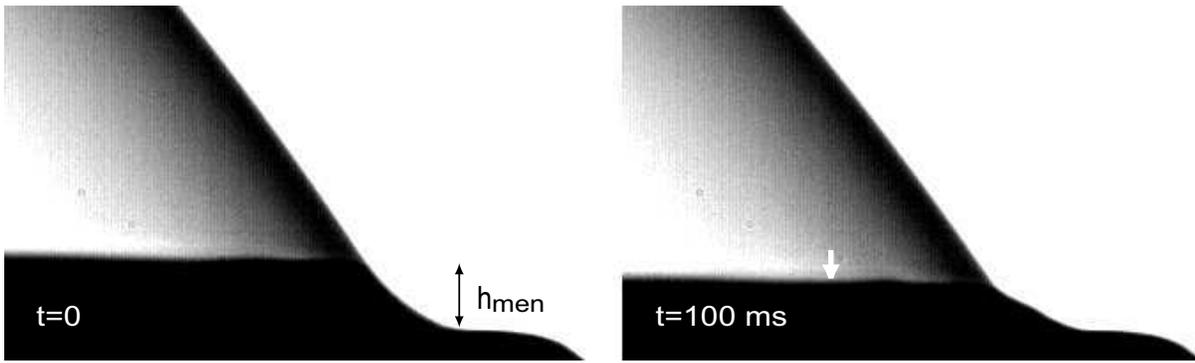


FIG. 7.11 – Deux photos prises au début ($t = 0$) et à la fin ($t=100$ ms) de la phase de recul du ménisque, au début de l’effondrement. Elles sont tirées du film de l’effondrement d’une bulle de 1840 couches à travers un capillaire de 6 cm, réalisées avec la caméra rapide, en observation horizontale avec un fort grossissement.

rapidement d’une trentaine de micromètres sur une période de 100 ms, puis le recul s’arrête brutalement. Parallèlement la mesure sur les images de l’angle d’inclinaison du film avec l’horizontale permet d’évaluer le rayon de courbure de la bulle connaissant le rayon du support r et d’en déduire l’évolution au cours du temps de la pression capillaire ΔP_l . Cette dernière est tracée sur la figure 7.12 où est aussi représentée la pression à l’intérieur de la bulle ΔP enregistrée avec le capteur de pression. On constate qu’avant l’ouverture de la vanne, les deux pressions sont égales, la bulle étant à l’équilibre et vérifiant la loi de Laplace ; puis, la pression à l’intérieur de la bulle chute sur une période de temps correspondant exactement à la phase de recul du ménisque. Pendant cette phase, la pression capillaire est quasiment constante, ce qui veut dire que la surface du film ne change pas. Ensuite, la deuxième étape commence ; la surface du film diminue et la bulle s’effondre, ce qui se traduit par une diminution lente et comparable des deux pressions.

Déstructuration du ménisque

Les observations précédentes montrent que pendant la première étape de l’effondrement de la bulle qui correspond au saut de pression à l’intérieur de la bulle, le bord supérieur du ménisque recule brutalement alors que la surface du film ne varie quasiment pas. Elles donnent donc l’impression que cet affaissement de la bulle est nécessaire pour que le ménisque puisse échanger de la matière avec le film et que la bulle s’effondre ensuite. Les observations de la structure du ménisque pendant cette première étape primordiale permettent de mieux comprendre ce point.

L’évolution de la structure du ménisque est réalisée à l’aide du système de visualisation verticale en transmission en utilisant la forte capacité de grossissement de l’objectif. Par exemple, deux photos prises au début ($t = 0$) et après la phase de recul du ménisque ($t=100$ ms) sont montrées sur la figure 7.13. Elles ont été réalisées lors de l’effondrement d’une

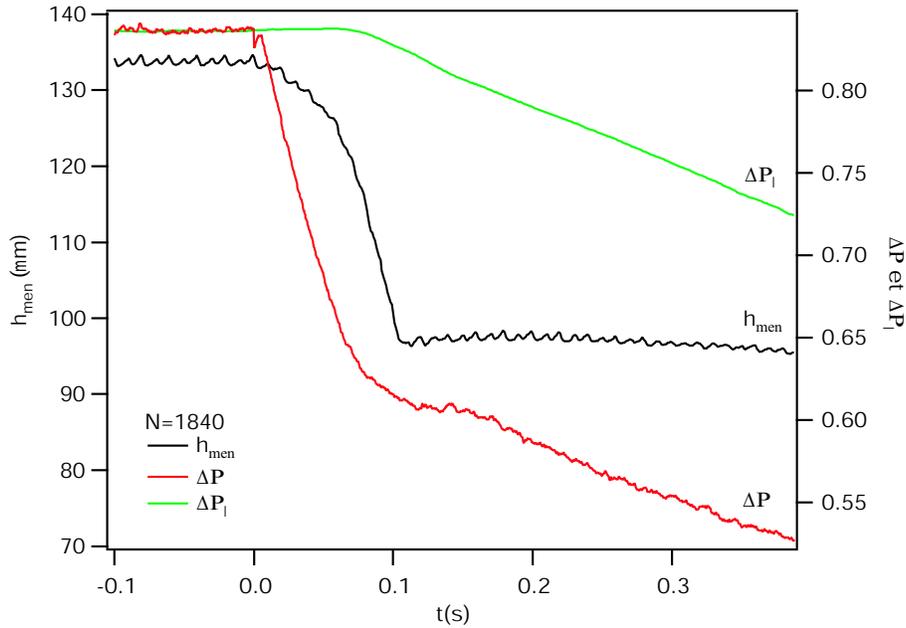


FIG. 7.12 – Analyse du recul du ménisque : Évolutions en fonction du temps de la hauteur du ménisque h_{men} et des deux pressions ΔP et ΔP_l . Elles sont tirées de l'enregistrement du signal de pression et du traitement des images du film en observation horizontale avec un fort grossissement. Expérience réalisée lors de l'effondrement d'une bulle de 1840 couches à travers un capillaire de 6 cm.

bulle de 1840 couches à travers un capillaire de 6 cm. Notons ici, une fois encore, que la bulle est gonflée à moitié au début de l'effondrement ($X = 1/2$), ce qui permet d'observer le ménisque avec le microscope d'axe vertical. Au début, avant l'effondrement, le ménisque est composé à son entrée d'une partie bien orientée transparente, suivie d'une partie sombre remplie de gros défauts topologiques du type coniques focales. Nous avons montré dans la partie II, que la partie bien orientée est fortement dissipative lors d'échange de matière, en régime quasi-statique, à cause des écoulements de perméation autour des dislocations élémentaires qu'elle contient. À la fin de la phase de recul du ménisque, la partie bien orientée est complètement déstructurées, n'étant plus du tout transparente à cause de la présence d'un réseau de coniques focales.

Ainsi, lors de l'ouverture de la vanne, la partie bien orientée agit comme un bouchon hydrodynamique empêchant un échange rapide de matière entre le film et le ménisque. Comme nous l'avons souligné dans le chapitre théorique (section 6.4.1), La pression dans le film devient alors très grande sous l'effet de la résistance du ménisque et les couches dans le film ainsi que la partie bien orientée du ménisque sont fortement dilatées. Dans la partie bien orientée plus épaisse, le seuil d'instabilité d'ondulation est largement dépassé ; la structure lamellaire se brise alors et se remplit de coniques focales.

Cette observation permet de mieux comprendre pourquoi la bulle commence seulement à s'effondrer après cette étape de déstructuration du ménisque. En effet, le caractère fortement

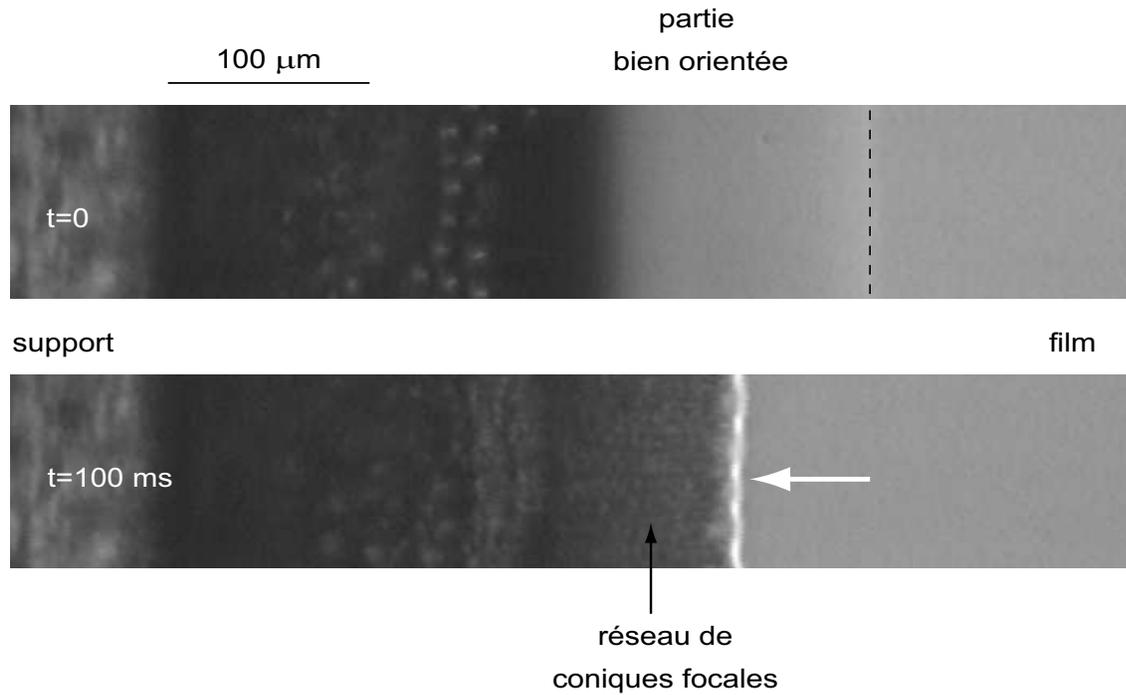


FIG. 7.13 – Déstructuration du ménisque : Deux photos prises au début ($t = 0$) et à la fin ($t=100$ ms) de la phase de recul du ménisque, avec le système de visualisation verticale (transmission) en utilisant un fort grossissement, lors de l’effondrement d’une bulle de 1840 couches à travers un capillaire de 6 cm.

dissipatif du ménisque en régime quasi-statique est dû aux écoulements de perméation dans la partie bien orientée. En revanche, les couches smectiques sont beaucoup plus connectées dans le ménisque déstructuré du fait du réseau de coniques focales ; il devient alors beaucoup plus perméable, ce qui facilite les échanges de matière avec le film durant l’effondrement de la bulle. La déstructuration du ménisque explique donc pourquoi les constantes de dissipation du ménisque C_{eff} , évaluées en ajustant le saut de pression initial, sont beaucoup plus faibles que la constante $C(N)$ mesurée en régime quasi-statique.

Remarquons encore que plus l’effondrement de la bulle est rapide, plus le réseau de coniques focales est dense et plus longue est sa réorganisation après la fin de l’effondrement lorsque le film est de nouveau plan. Notons aussi que le nouveau réseau de coniques focales lorsqu’il est plus dense semble s’entremêler avec celui qui existait déjà à l’arrière du ménisque. Cet effet est beaucoup moins marqué lors des effondrements les plus lents, le ménisque ayant tendance dans ce cas à se réorganiser avant même la fin de l’effondrement de la bulle.

Après la déstructuration du ménisque, la bulle s’effondre. Nous allons maintenant étudier cette seconde étape de la dynamique.

7.3.2 Seconde étape : effondrement de la bulle

Mesure de l'écart à la loi de Laplace

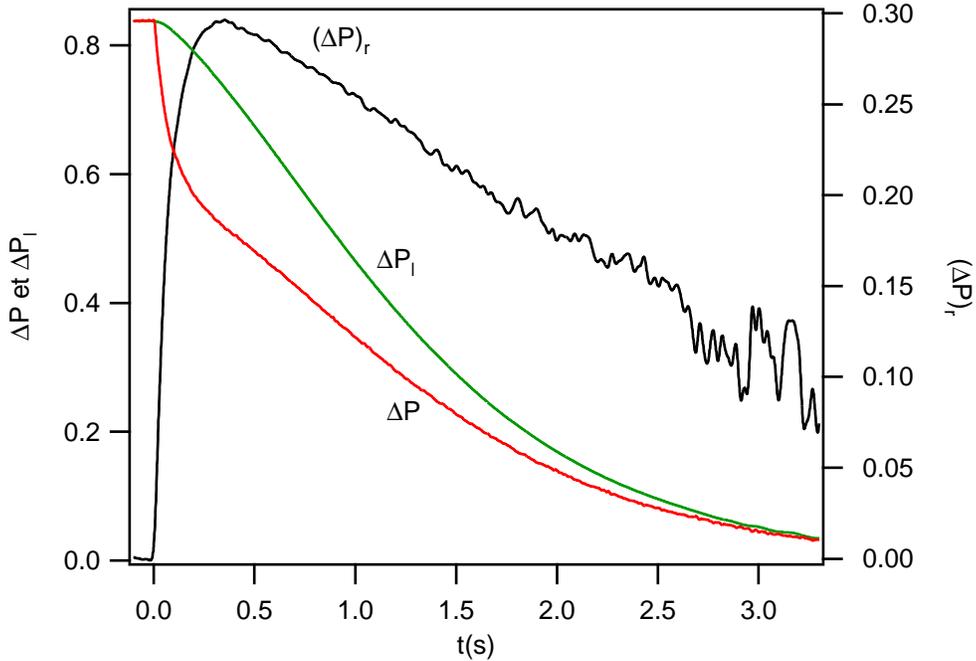


FIG. 7.14 – Évolutions de la pression à l'intérieur de la bulle normalisée ΔP et de la pression capillaire normalisée ΔP_l en fonction du temps, lors de l'effondrement d'une bulle de 520 couches à travers le capillaire de 6 cm. L'évolution de l'écart relatif à la loi de Laplace $(\Delta P)_r$ est déduite de ces mesures.

Après la déstructuration du ménisque, la bulle peut enfin s'effondrer. Pour étudier cette seconde étape de la dynamique, nous avons mesuré simultanément au cours du temps la pression capillaire ΔP_l , donnée par le rayon de courbure du film, et la pression à l'intérieur de la bulle ΔP , mesurée par le capteur de pression. Un exemple de leurs évolutions en fonction du temps est montré sur la figure 7.14, lors de l'effondrement d'une bulle de 520 couches à travers le capillaire de 6 cm ($t_c = 0,5$ s). Avant l'ouverture de la vanne, la bulle est à l'équilibre et ces deux pressions sont égales ; à l'ouverture de la vanne, la pression ΔP chute pendant l'étape de déstructuration du ménisque tandis que la pression capillaire ΔP_l reste quasiment constante, la surface du film ne variant pas ; puis la bulle commence de s'effondrer. Les deux pressions diminuent alors progressivement en se rapprochant au cours du temps pour finalement s'annuler à la fin de l'effondrement. De ces mesures, l'évolution temporelle de l'écart relatif à la loi de Laplace $(\Delta P)_r$ est déduite ; elle est montrée sur le même graphique 7.14. Cet écart relatif, maximum après l'étape de déstructuration, diminue progressivement tout en restant important, même dans la dernière partie de l'effondrement.

Nous avons montré dans le chapitre théorique 6 que la mesure de l'écart relatif à la loi de Laplace représente, d'après l'équation 6.10, le taux d'énergie dissipée dans le smectique

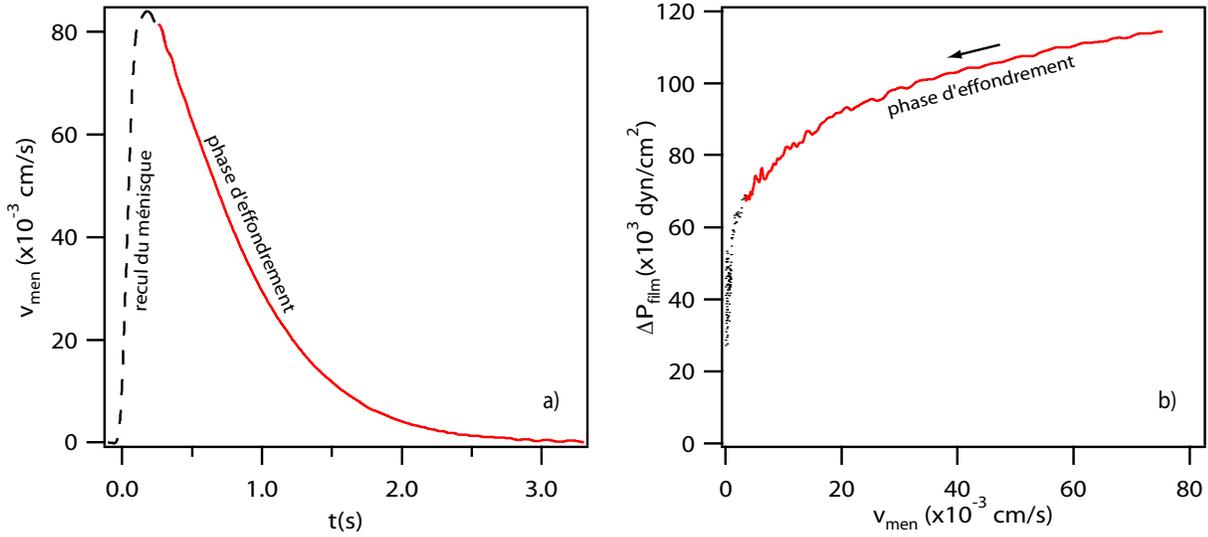


FIG. 7.15 – (a) : évolution de la vitesse à l'entrée du ménisque v_{men} en fonction du temps. b) : évolution de la différence de pression ΔP_{film} en fonction de la vitesse à l'entrée du ménisque v_{men} , lors de l'effondrement d'une bulle de 520 couches à travers le capillaire de 6 cm.

(Φ_{Sm}) par rapport au gain d'énergie de surface ($2\gamma dS/dt$). De plus, si le film garde une épaisseur uniforme au cours de l'effondrement, la dissipation est localisée dans le ménisque et cet écart est proportionnel à la différence de pression entre le film et le ménisque ΔP_{film} (équation 6.23) :

$$\Delta P_{film} = (\Delta P)_r \frac{2\gamma}{H} \quad (7.12)$$

La mesure de $(\Delta P)_r$ permet donc de connaître la différence de pression ΔP_{film} nécessaire pour générer un écoulement de vitesse v_{men} à l'entrée du ménisque.

Expérimentalement, la vitesse à l'entrée du ménisque au cours de l'effondrement est évaluée grâce à la mesure de la hauteur normalisée de la bulle $X = x/r$ réalisée par traitement d'image (voir section 7.1.3, équation 7.1). Elle vaut, en effet, d'après les propriétés géométriques de la bulle :

$$v_{men} = r_b X \frac{dX}{dt} \quad (7.13)$$

L'évolution en fonction du temps de la vitesse v_{men} correspondant à l'expérience décrite précédemment est tracée sur la figure 7.15a. Notons que dans la formule précédente, le rayon de la base de la bulle r_b n'est pas strictement égal au rayon du cadre r , mais doit être très légèrement modifié pour tenir compte d'effets de bord qui sont décrits dans l'annexe A.

Nous avons ainsi tous les éléments pour caractériser la rhéologie du ménisque, puisqu'il suffit de tracer l'évolution de la différence de pression ΔP_{film} en fonction de la vitesse à l'entrée du ménisque. Une telle courbe, correspondant à l'expérience précédente, est tracée sur la figure 7.15b. Nous remarquons que la différence de pression entre le film et le ménisque

est gigantesque (plus de cent fois la différence de pression entre le ménisque et l'air), expliquant à nouveau la déstructuration du ménisque ; au cours de l'effondrement, cette différence diminue progressivement avec la vitesse v_{men} , mais elle ne suit pas du tout une loi linéaire ce que nous discuterons dans la section suivante. À la fin de l'effondrement, la courbe est tracée en pointillé car la mesure de l'écart relatif à la loi de Laplace devient très imprécise puisque les deux pressions tendent simultanément vers 0, la différence entre celles-ci finissant par être en dessous de la résolution de l'expérience (figure 7.14). Notons aussi pour conclure ce paragraphe que nous n'avons pas tracé sur la figure 7.15b la partie de la courbe correspondant au recul initial du ménisque. Ce point est justifié dans l'annexe A.

7.3.3 Comportement rhéologique du ménisque

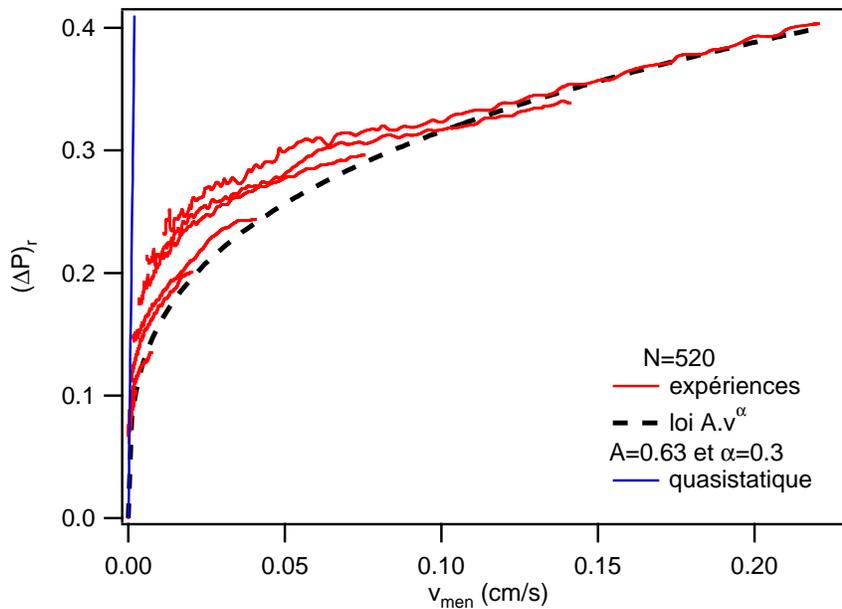


FIG. 7.16 – Écart à la loi de Laplace $(\Delta P)_r$ en fonction de la vitesse à l'entrée du ménisque v_{men} . Mesures réalisées avec un même film de 520 couches lors d'effondrements successifs à travers des capillaires de différentes longueurs. Une loi en puissance 0,3 est tracée en pointillé. La loi linéaire prévue en régime quasi-statique est montrée en trait fin (droite quasi verticale).

Pour étudier le comportement rhéologique du ménisque, nous avons réalisé l'expérience décrite précédemment avec des capillaires de longueurs différentes. Cela nous a permis d'évaluer l'évolution de la différence de pression entre le film et le ménisque ΔP_{film} en fonction de la vitesse à l'entrée du ménisque v_{men} sur une gamme assez large de vitesse. Cette évolution est représentée sur la figure 7.16 pour un film de 520 couches. L'écart à la loi de Laplace $(\Delta P)_r$ y est tracé en fonction de v_{men} pour les différentes expériences. Remarquons que la différence de pression entre le film et le ménisque, proportionnelle à $(\Delta P)_r$, est directement obtenue à partir de l'équation 7.12 en prenant $2\gamma/H \sim 3,8 \cdot 10^5 \text{ dyn/cm}^2$.

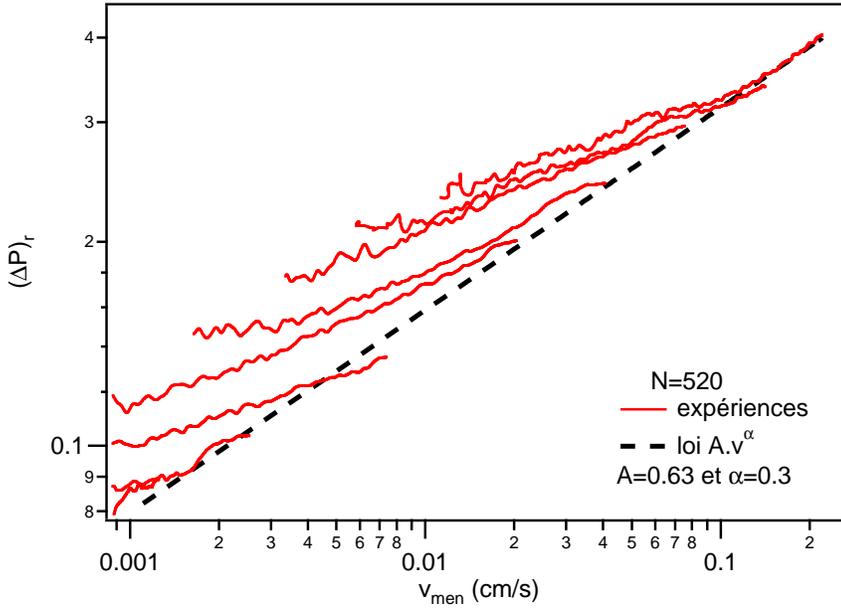


FIG. 7.17 – Mêmes données que sur la figure 7.16) tracées en représentation log-log. La loi de puissance ajustant les maximums de $(\Delta P)_r$ pour les différentes expériences est tracée en pointillé.

Ces mesures confirment les deux points soulignés lors de la première approche : le comportement rhéologique du ménisque $\Delta P_{film}(v_{men})$ n'est plus linéaire comme dans le régime quasi-statique où la dissipation est beaucoup plus importante. La droite correspondante à ce régime est tracée en trait fin. En effet, lorsque les vitesses à l'entrée du ménisque deviennent importantes, ce qui entraîne sa déstructuration, le ménisque a un comportement rhéofluidifiant caractéristique d'une phase smectique remplie de coniques focales [26]. Autrement dit, plus la contrainte est grande (ici, la différence de pression entre le film et le ménisque), plus le fluide s'écoule facilement. Sur la figure 7.17 où la courbe $(\Delta P)_r(v_{men})$ est tracée en représentation log-log, nous remarquons que les maximums de $(\Delta P)_r$ (ou de $\Delta P_{film} = (\Delta P)_r 2\gamma/H$) atteints dans les différentes expériences, suivent relativement bien une loi puissance en fonction de v_{men} du type :

$$\Delta P_{film} = av_{men}^{0,3} \quad (7.14)$$

avec pour coefficient $a \sim A \frac{2\gamma}{H}$ et $A \sim 0.63$. Ces maximums de pression dans le film sont atteints à la fin de la déstructuration du ménisque. Ces courbes montrent ensuite qu'au cours de l'effondrement d'une bulle, la pression dans le film décroît moins rapidement que ne le prévoit cette loi et qu'elle s'en éloigne d'autant plus que l'effondrement est lent. Cette propriété est sûrement liée aux observations expérimentales qui mettent en évidence une restructuration du ménisque au cours de l'effondrement d'autant plus prononcée que les expériences sont lentes. Cette restructuration se traduit par une augmentation de la dissipation (à même vitesse donnée). Il en découle une décroissance plus lente que celle attendue

pour un ménisque complètement déstructuré, lors de l'effondrement, de la différence de pression ΔP_{film} , nécessaire à l'écoulement.

7.4 Nucléation et croissance d'îlots

Nous avons seulement présenté, pour le moment, des expériences réalisées avec des films très épais. En régime quasi-statique, nous avons montré dans la partie II que la dissipation à l'entrée du ménisque dépendait fortement de l'épaisseur du film. Est-ce toujours le cas lors des régimes plus rapides ? De plus, Nous avons souligné dans le chapitre théorique que la nucléation des îlots devait être plus facile dans les films fins. Est-ce que la croissance d'îlots lors de l'effondrement d'une bulle change son comportement rhéologique ? Ce toutes ces questions qui ont motivé l'étude expérimentale suivante.

7.4.1 Étude en fonction de l'épaisseur du film

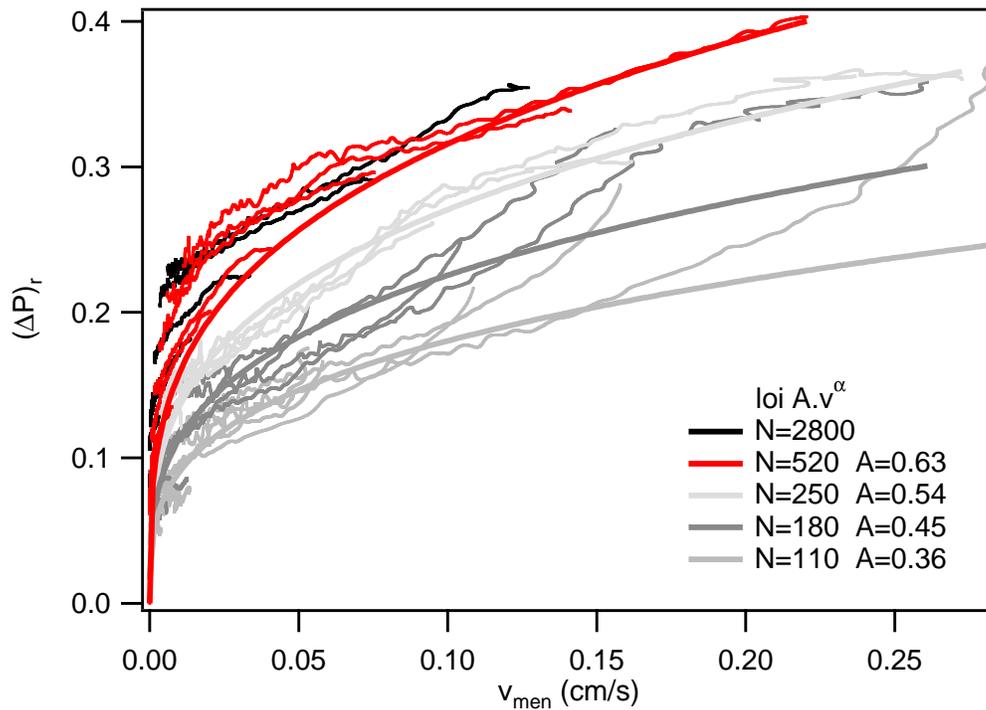


FIG. 7.18 – Influence de l'épaisseur du film sur le comportement rhéologique du smectique. Écart à la loi de Laplace $(\Delta P)_r$ en fonction de la vitesse effective à l'entrée du ménisque v_{men} tracé pour des films d'épaisseur différentes. Chaque ensemble de courbes correspondant à un film d'épaisseur N est ajusté par une loi de puissance 0,3. On remarquera que les courbes expérimentales obtenues pour les films d'épaisseurs $N = 2800$ et $N = 520$ se mélangent.

Afin d'étudier l'influence de l'épaisseur des films sur le comportement rhéologique du système, nous avons reproduit les mêmes expériences d'effondrement que précédemment

avec des films de différentes épaisseurs, allant de 2800 couches à 110 couches. L'écart de pression $(\Delta P)_r$ mesuré dans ces expériences est représentée, sur la figure 7.18, en fonction de la vitesse effective à l'entrée du ménisque v_{men} . Cette étude met en évidence deux familles de films :

- Les films épais, d'épaisseur supérieure à 500 couches, pour lesquels le comportement rhéologique du système ne semble pas dépendre de l'épaisseur. En effet, les courbes $(\Delta P)_r$ en fonction de v_{men} sont quasiment identiques pour tous les films d'épaisseur comprise entre 520 et 2800 couches. Pour plus de clarté, nous avons seulement tracé sur la figure 7.18, les deux courbes correspondant à ces deux valeurs extrêmes en épaisseur.
- Les films fins, d'épaisseur inférieure à 500 couches, où la dissipation dans le système dépend de l'épaisseur du film. En effet, plus le film est fin, moins il dissipe puisque l'écart à la loi de Laplace se réduit d'autant plus (figure 7.18). Le comportement global reste néanmoins celui d'un fluide rhéofluidifiant.

Dans les sections suivantes, nous allons montrer que ce comportement en fonction de l'épaisseur est fortement lié à la nucléation et à la croissance d'îlots lors de l'effondrement d'une bulle. La bulle, pour diminuer sa surface, peut en effet créer des îlots et par conséquent s'épaissir, au lieu de "s'enfoncer" dans le ménisque tout en gardant une épaisseur uniforme, comme nous l'avons déjà souligné dans le chapitre théorique 6.4.2. Cela tend à prouver que le système choisit le processus le moins dissipatif, bien que ce principe ne soit pas vrai en général.

7.4.2 Dans les films épais : $N > 500$

Effondrement sans îlot (cas des films propres)

L'observation en réflexion du film plan juste après l'effondrement, à l'aide du banc optique vertical en lumière monochromatique, est très utile pour savoir si le film a gardé une épaisseur uniforme comme sur la photo 7.19a ou s'est au contraire épaissi localement comme sur la photo 7.19b, où les points noirs correspondent à des îlots.

Dans les films épais de plus de 500 couches préalablement nettoyés, les observations au microscope montrent que ceux-ci gardent, en général, une épaisseur uniforme au cours de l'effondrement de la bulle, même dans le cas des expériences les plus rapides (photo 7.19a). En fait, dans les films épais, l'épaississement du film par nucléation d'îlots n'est pas du tout favorable du point de vue dissipatif ce que nous détaillerons par la suite. Dans ce cas, il est donc clair que l'évolution de l'écart à la loi de Laplace $(\Delta P)_r$ en fonction de la vitesse à l'entrée du ménisque v_{men} traduit uniquement le comportement rhéologique du ménisque.

Les expériences d'effondrement réalisées avec des films épais de plus de 500 couches montrent aussi que le ménisque a un comportement dissipatif indépendant de l'épaisseur du film, contrairement à ce qui se passe en régime quasi-statique. En effet, dans ce dernier

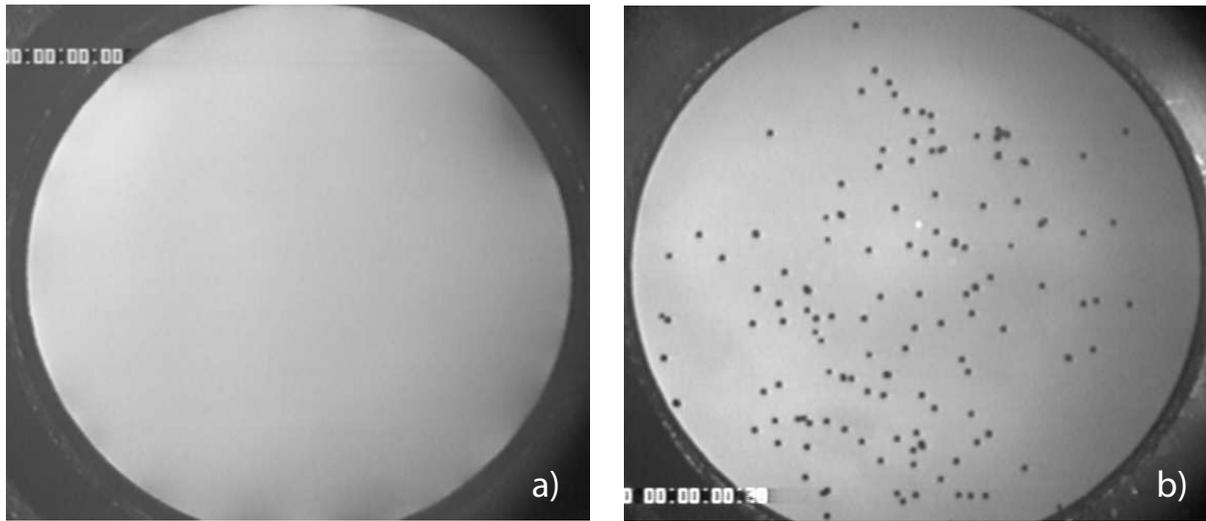


FIG. 7.19 – Observations en réflexion avec un filtre interférentiel ($\lambda = 633$ nm) de deux films épais, juste après l'effondrement d'une bulle. En général, l'épaisseur des films épais reste uniforme comme sur la photo (a) prise avec un film de 2800 couches après une expérience avec un capillaire de 6 cm. Lorsque le film est sale et que l'effondrement est rapide, des îlots nucléent autour des poussières. C'est le cas sur la photo (b) prise avec un film de 520 couches après une expérience avec 4 capillaires de 6 cm en parallèle.

régime, la dissipation dans le ménisque est proportionnelle à $NC(N)$ et décroît donc en $1/N$ (partie II). Cette différence de comportement pourrait s'expliquer par le fait qu'en régime quasi-statique, la dissipation est liée aux écoulements autour d'une dislocation géante, eux-mêmes sensibles au confinement, alors qu'en régime rapide, le ménisque est complètement déstructuré et rempli de coniques focales. Notre étude montre également que dans les films épais en régime rapide, la pression dans le film dépend de l'épaisseur du film pour une même vitesse d'entrée v_{men} . En effet, la différence de pression ΔP_{film} est d'autant moins grande que le film est épais et varie en $1/N$ d'après la relation 7.12 sachant que $(\Delta P)_r$ est indépendant de N expérimentalement¹. Notons néanmoins que ΔP_{film} est tout de même toujours très important (plusieurs milliers de dyn/cm²). Pour cette raison, comme nous l'avons expliqué dans le chapitre théorique 6.4.2, les poussières dans le film peuvent devenir des centres de nucléation d'îlots, le rayon critique de nucléation r_c étant tout de même petit (submicronique, équation 6.43).

Étude des îlots dans les films épais (cas des films sales)

Dans nos expériences, une condition nécessaire pour ne pas avoir de nucléation d'îlot dans les films épais est que ceux-ci soient très propres. Dès que le film est sale, des îlots se forment autour des poussières, comme illustré sur la photo 7.21b. Ces îlots sont opaques et apparaissent comme des points noirs sur la bulle. En fait, dans les films épais, ces îlots ont

¹Elle varie en $1/N^2$ en régime quasi-statique.

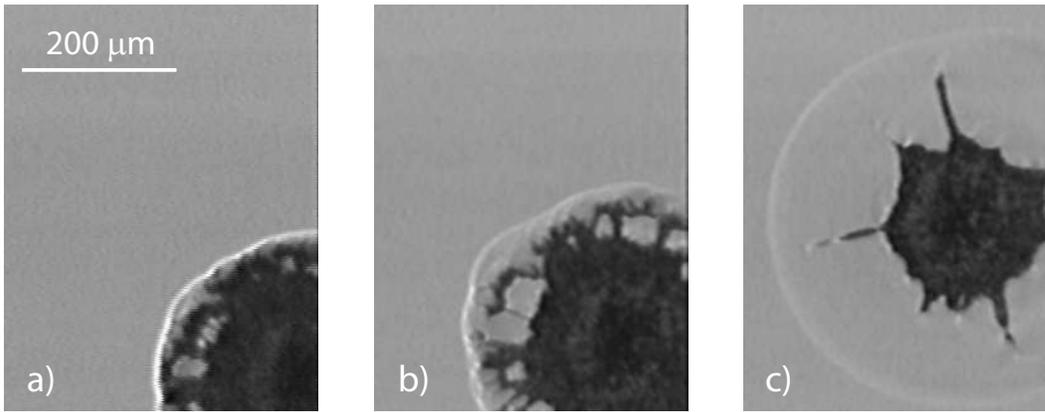


FIG. 7.20 – Photos d’îlots en train de se stabiliser dans un film épais après l’effondrement d’une bulle. Les îlots qui se forment lors de l’effondrement sont remplis de coniques focales (a), puis une structure en couches parallèles au plan du film (transparente) se forme progressivement (b) et (c).

une structure bien particulière. Juste après l’effondrement, des observations plus précises en transmission avec un fort grossissement montrent qu’ils sont remplis de coniques focales, ce qui est bien visible sur la photo 7.20a.

Les photos suivantes 7.20b et c montrent qu’après l’effondrement, les coniques focales disparaissent progressivement, puis complètement après quelques dizaines de secondes. Les îlots ont alors une structure en couches transparente. Ces îlots sont métastables car ils représentent un excès d’énergie de surface pour le film et ils se vident dans le ménisque. Si un îlot entre en contact avec le ménisque, il s’y vide très rapidement. Dans le cas contraire, la vidange d’un îlot est très lente et se fait sur une échelle de temps de plusieurs dizaines de minutes, ce que nous étudierons plus précisément dans l’annexe B.

Revenons maintenant sur la formation de ces îlots remplis de coniques focales. Comme nous l’avons vu dans le chapitre théorique, des îlots peuvent se former lors de l’effondrement car la pression dans le film devient très grande, faisant chuter le rayon critique de nucléation (équation 6.43). Des poussières de rayon comparable peuvent alors jouer ainsi le rôle de centre de nucléation. De plus, nous avons précisé que la structure lamellaire du film restait stable puisque que l’épaisseur critique pour la briser sous l’effet de la dilatation des couches était de l’ordre de deux fois l’épaisseur du film (voir section 6.4.1). En revanche, le seuil peut être dépassé, au niveau d’une poussière suffisamment grosse, expliquant la formation de coniques focales à l’intérieur des îlots.

En général, après nucléation, ces îlots se remplissent peu lors de l’effondrement de la bulle en comparaison du volume de matière à échanger correspondant à la diminution de surface du film, et leur formation a donc peu d’influence sur la dynamique de la bulle. Cette observation met en évidence que dans les films épais, la croissance des îlots est un processus dissipatif moins avantageux que l’échange de matière avec le ménisque. Ce n’est seulement

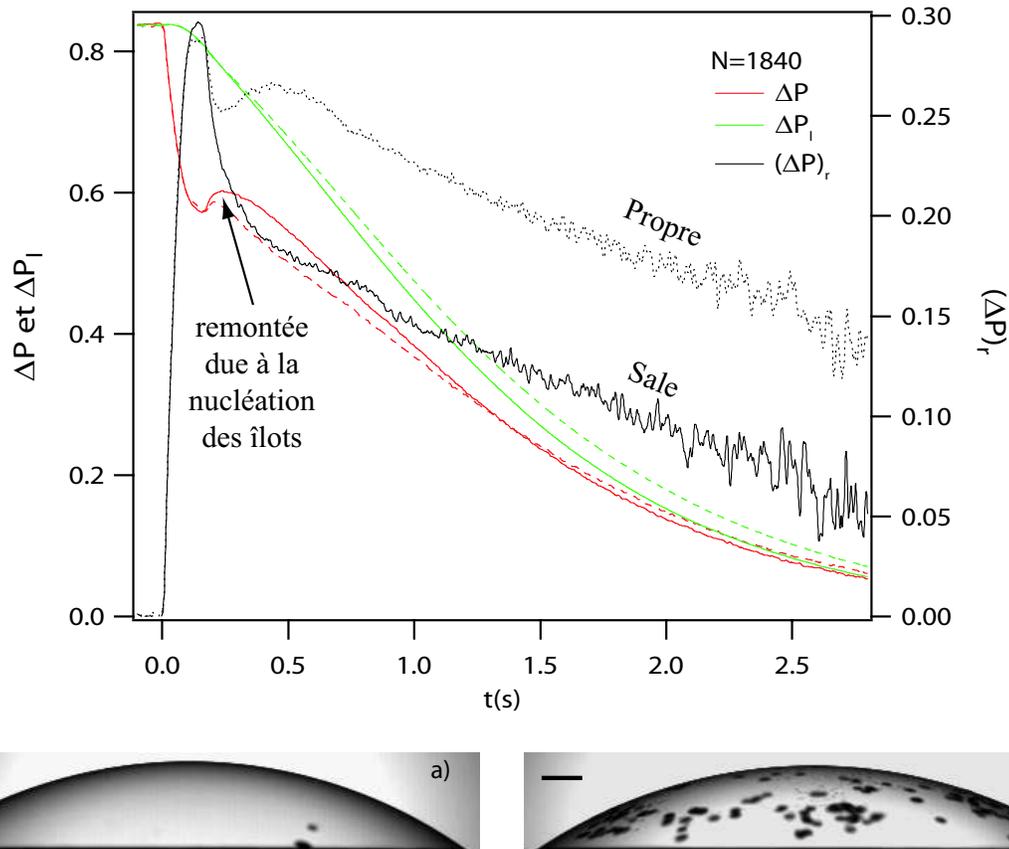


FIG. 7.21 – Évolutions de ΔP , ΔP_l et $(\Delta P)_r$ en fonction du temps, lors de deux effondrements consécutifs d'une même bulle de 1840 couches à travers le capillaire de 6 cm. Dans la première expérience, en trait plein, le film est très sale. La nucléation d'îlots permet de nettoyer le film et de réaliser la deuxième, en trait pointillé.

que pour des films très sales contenant de grosses poussières et pour des effondrements rapides, que la formation des îlots commence à être importante en volume et modifie la dynamique d'effondrement. L'exemple de l'expérience représentée sur la figure 7.21 illustre ces différences de comportement entre un film propre et un film très sale. Cette expérience a été réalisée avec un film de 1840 couches, particulièrement sale au départ. Nous avons effectué deux effondrements successifs à travers le capillaire de 6 cm. Lors du premier, le film contenait beaucoup de grosses poussières et plus d'une centaine d'îlots volumineux se sont formés (voir la photo de droite sur la figure 7.21). Juste après l'effondrement, nous avons gonflé la bulle légèrement de sorte que tous les îlots descendent par gravité et se voient directement dans le ménisque en emportant avec eux les poussières qu'ils contenaient. Après cette phase de nettoyage très efficace du film, nous avons réalisé le deuxième effondrement ; cette fois, trois îlots seulement se sont formés, le film étant beaucoup plus propre. Les résultats obtenus sont comparés sur le graphique de la figure 7.21 où les évolutions de ΔP , ΔP_l et $(\Delta P)_r$ sont tracées en fonction du temps, en trait plein pour le film sale et en pointillé pour l'autre. Au début, les deux bulles ont le même comportement, correspondant à la déstructuration du

ménisque. Après avoir monté brutalement, l'écart à la loi de Laplace $(\Delta P)_r$ diminue assez progressivement pour le film propre (on remarquera la bosse), alors que pour le film sale, il chute brutalement de 40% lors de la nucléation des îlots pour diminuer ensuite progressivement en gardant un écart quasiment constant par rapport au film propre. Ces résultats montrent clairement que l'effondrement est moins dissipatif lorsqu'il s'accompagne de la nucléation de gros îlots volumineux. Cela se manifeste aussi lors de leur nucléation par une remontée de la pression à l'intérieur de la bulle indiquant une moins grande résistance de la bulle à l'effondrement. Le remplissage de ces îlots est assez similaire du point de vue rhéologique à celui du ménisque puisque ceux-ci sont aussi remplis de coniques focales. Leur formation revient donc à allonger la longueur du ménisque, pour une variation de surface identique. Tout se passe donc comme si v_{men} diminuait, ce qui explique un écart à la loi de Laplace $(\Delta P)_r$ (ou un ΔP_{film}) moins important dans le cas sale que dans le cas propre.

En conclusion, dans les films épais, la nucléation d'îlots n'est observée que s'ils sont sales. Il faut souligner que ce mécanisme nous a servi à les nettoyer, ce qui a permis ensuite de réaliser une étude systématique de leur effondrement sans nucléation en fonction de leur épaisseur.

7.4.3 Dans les films fins : $N < 500$

Observations : épaissement du film

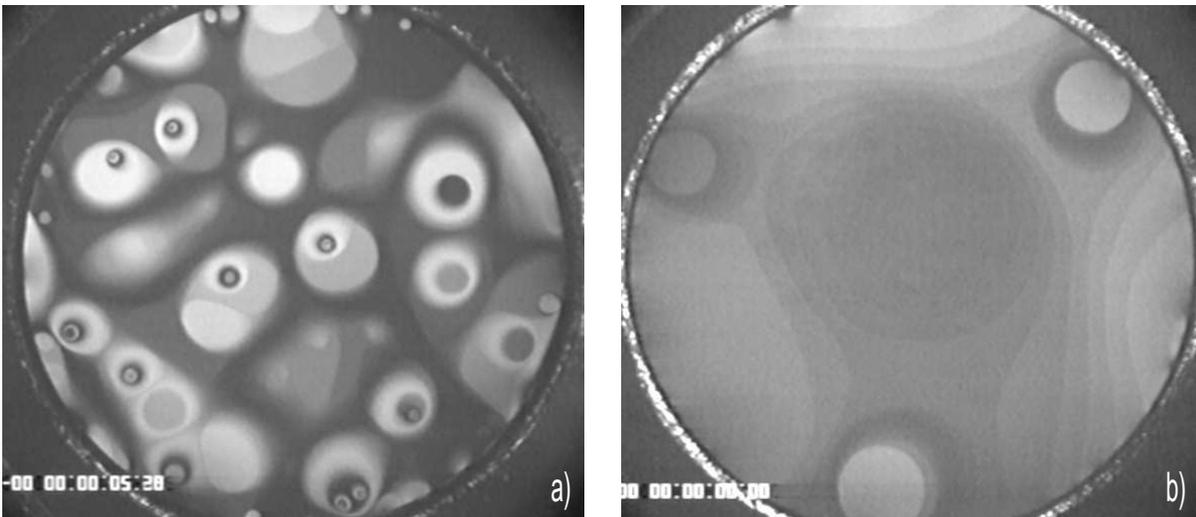


FIG. 7.22 – Observations en réflexion avec un filtre interférentiel ($\lambda = 633$ nm), de films fins, juste après l'effondrement d'une bulle. Épaississement des films : (a) film de 180 couches après une expérience avec un capillaire de 6 cm ; (b) film de 110 couches après une expérience avec un capillaire de 192 cm.

Dans les films fins d'épaisseur inférieure à 500 couches, les observations expérimentales montrent qu'ils s'épaississent au cours de l'effondrement de la bulle, même s'ils ont été

préalablement nettoyés. Les observations en réflexion, juste après l'effondrement, illustrées sur la figure 7.22, montrent en effet que le film n'a plus une épaisseur uniforme, mais contient de nombreuses boucles de dislocations. L'épaississement du film ne se fait pas comme dans les films sales avec des îlots remplis de coniques focales (points noir sur la photo 7.21b), mais avec des îlots gardant une structure lamellaire plane qui s'étalent beaucoup plus que ces derniers au cours de l'effondrement puisqu'ils finissent même par couvrir toute la surface du film. Même si le film est nettoyé par la méthode décrite précédemment, ces îlots parviennent à nucléer dans le film, car il reste toujours des poussières de petites tailles qui peuvent jouer le rôle de centres de nucléation. La raison est que le rayon critique de nucléation est très petit dans les films fins lors de l'effondrement puisqu'il varie approximativement comme l'épaisseur du film (de l'ordre du dixième de μm , équation 6.43). De plus, nous observons que plus le film est fin, plus l'épaississement devient important en terme de volume par rapport à celui correspondant à la diminution de surface de la bulle et il intervient même lors des effondrements les plus lents. Par exemple, la photo 7.22b montre un film fin de 110 couches qui s'est épaissi lors d'un effondrement très lent à travers un capillaire de 192 μm (de l'ordre de la minute). Cet épaississement correspond à environ une demi frange sur toute la surface du film, ce qui représente environ le tiers de l'épaisseur initiale du film.

Croissance des îlots lors de l'effondrement

Dans les films fins d'épaisseur inférieure à 500 couches, l'épaississement du film par nucléation et croissance d'îlots commence à être favorable du point de vue dissipatif par

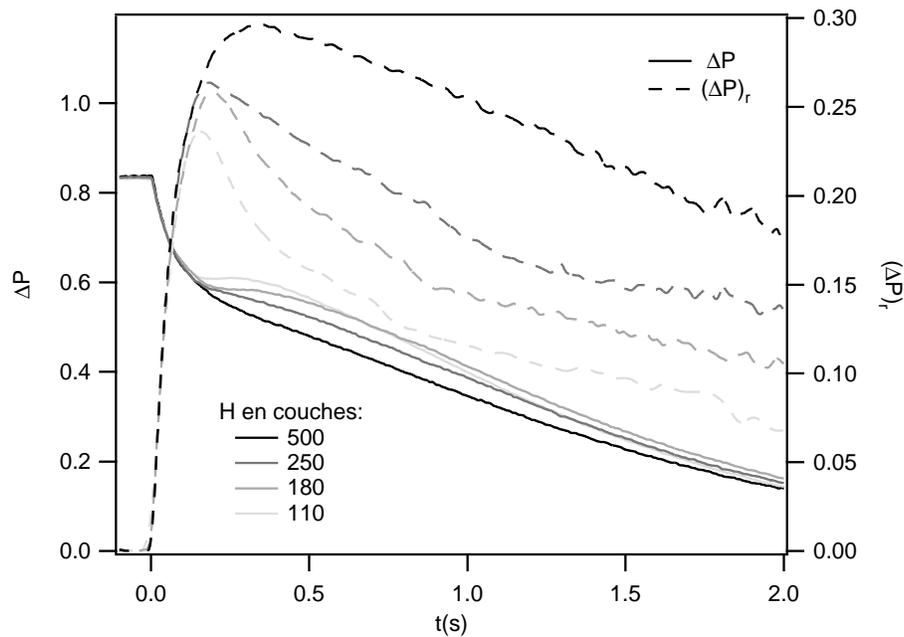


FIG. 7.23 – Évolution de ΔP (trait plein) et $(\Delta P)_r$ (trait pointillé) en fonction du temps, lors de l'effondrement d'une bulle à travers le capillaire de 6 cm pour différentes épaisseurs de film fin.

rapport au remplissage du ménisque (déstructuré). La dissipation liée à la croissance de ces îlots est due aux écoulements de perméation autour des boucles de dislocations lorsqu'elles grandissent. Or, nous avons vu dans le chapitre théorique 6.4.2 que pour connaître le processus le plus avantageux pour diminuer la surface du film entre la croissance d'îlots et l'échange de matière avec le ménisque, il faut comparer les deux temps caractéristiques associés t_i (éq 6.48) et t_{Sm} (éq 6.45), ce qui revient à comparer $2N/\sqrt{n_i}$ (où n_i est le nombre d'îlots de N couches qui se forme) à NC_{eff} . La croissance d'îlots peut être favorable dans les films fins car le temps t_i est proportionnel à l'épaisseur du film N . De plus, nous savons maintenant que le processus dissipatif d'échange de matière avec le ménisque caractérisé par le produit NC_{eff} lors de l'effondrement de la bulle est indépendant de l'épaisseur du film, mais qu'il dépend de la vitesse. Cela implique, selon l'expression de t_{Sm} (éq 6.45), que NC_{eff} ne doit pas dépendre de l'épaisseur du film pour une vitesse d'effondrement donnée. Ainsi, lorsque $2N/\sqrt{n_i} < NC_{eff} \sim cst$, la croissance d'îlots commence à être favorable. Évidemment, ce critère est d'autant mieux vérifié que N est petit, donc que le film est fin. D'après les mesures de la section 7.2.3, $C_{eff} \sim 0,1$ pour un film de 2830 couches (et le capillaire de 6 cm). NC_{eff} est alors de l'ordre de 300 ce qui permet d'en déduire l'épaisseur critique en dessous de laquelle la croissance d'îlots devient favorable, de l'ordre de 500 couches (pour une dizaine d'îlots). Ce raisonnement permet donc d'expliquer assez bien les observations expérimentales. Il est, par contre, très simplifié par rapport à la réalité, généralement beaucoup plus complexe. En effet, les deux processus interviennent toujours en même temps et les îlots ne sont pas nécessairement deux fois plus épais que le film. Il arrive aussi parfois que les boucles de nucléation grandissent une à une (effondrement très lent)... Mais, il permet tout de même de retrouver la tendance expérimentale qui montre que plus le film est fin ($N < 500$), plus l'épaississement du film est important et moins l'effondrement est dissipatif (écart à la loi de Laplace moins important, voir le graphique 7.18). La figure 7.23 présente justement les différences de comportement observées pour des films de plus en plus fins, lors de l'effondrement à travers un capillaire de 6 cm. Nous remarquons à nouveau que l'écart à la loi de Laplace $(\Delta P)_r$ est d'autant plus faible que le film est fin, ce qui traduit bien une dissipation moins importante lors de la formation d'îlots. Mais, nous remarquons aussi qu'au début de l'effondrement, $(\Delta P)_r$ atteint de valeurs importantes, même pour les films fins, montrant que l'effondrement s'accompagne toujours de la déstructuration du ménisque. Au niveau de la pression à l'intérieur de la bulle ΔP , la nucléation d'îlots se manifeste par l'apparition d'un plateau (voire d'une bosse) d'autant plus large que le film est fin.

Conclusion

Dans ce manuscrit, nous venons de décrire plusieurs expériences réalisées afin de mieux comprendre les propriétés dynamiques des films librement suspendus de cristal liquide $8CB$ en phase smectique A. À la différence des films de savon, ces films sont très stables du fait de leur structure lamellaire. En effet, l'épaisseur d'un film smectique est homogène à l'équilibre et l'élasticité des couches en volume compense la pression capillaire imposée par le ménisque qui le borde et qui joue le rôle de réservoir de matière. Dans ces films dont l'épaisseur varie de quelques nanomètres à quelques micromètres, l'effet du confinement a beaucoup d'influence sur leurs propriétés et il est important de traiter le système "film + ménisque" dans son ensemble. Nous avons effectué ce travail en deux temps qui s'intéressent chacun à des régimes d'écoulements différents, où nous montrons que le ménisque se comporte comme un réservoir plus ou moins fortement dissipatif selon sa structure.

Nous nous sommes d'abord intéressés au régime quasi-statique, lorsque les échanges de matière entre le film et le ménisque sont lents. C'est alors les écoulements de perméation autour des dislocations coin composant le ménisque qui sont à l'origine de sa perméabilité finie. Une différence de pression entre l'intérieur du film et le volume du ménisque est nécessaire pour générer ces échanges. Un modèle hydrodynamique montre que la dissipation est localisée à son entrée, dans la zone bien orientée, et qu'elle est très sensible au confinement. Dans les films fins, le ralentissement des boucles de dislocation et dans les films épais, la dynamique de relaxation de deux ménisques reliés par un même film ont permis de confirmer expérimentalement ce modèle et de quantifier la perméabilité du ménisque en fonction de l'épaisseur du film.

Puis, nous avons montré que la dynamique d'effondrement d'une bulle permet de caractériser les mécanismes dissipatifs pour des régimes d'écoulements plus rapides en mesurant directement un écart à la loi de Laplace (statique). Les observations expérimentales montrent que l'effondrement se décompose en deux étapes. Pendant la première, très rapide, le ménisque résiste énormément à échanger de la matière avec le film permettant de diminuer la surface du film ; la pression dans le smectique augmente alors fortement et conduit à une déstructuration complète du ménisque : la zone bien orientée est détruite sous l'effet de la dilatation des couches, ce qui rend le ménisque beaucoup plus perméable. La bulle peut alors s'effondrer tout en gardant une épaisseur constante, la matière s'engouffrant dans le ménisque avec un comportement rhéofluidifiant, caractéristique d'une phase smectique

remplie de coniques focales. Enfin, la dilatation du smectique est telle que des îlots peuvent nucléer dans le film. Leur croissance rend en général le processus d'effondrement moins dissipatif, ce qui est surtout observé dans les films fins.

Perspectives

En ce qui concerne les perspectives, il serait intéressant d'étendre ces travaux à l'étude d'une mousse smectique. En effet, dans le domaine de recherche sur les mousses, un des enjeux important est de pouvoir produire des mousses très stables. Les mousses aqueuses sont fortement sujettes au phénomène de drainage, inhérent aux systèmes riches en eau, conduisant à l'amincissement des films jusqu'à leurs ruptures et à celui du mûrissement d'Ostwald lié au phénomène de diffusion du gaz au travers les films conduisant les petites bulles à se vider dans les grosses [55]. Ces deux phénomènes entraînent le vieillissement des mousses. Or, les films smectiques qui présentent une structure multi-lamellaire y sont très peu sensibles d'où l'intérêt de fabriquer des mousses smectiques. Dans ce cadre, deux approches expérimentales pourraient être envisagées.

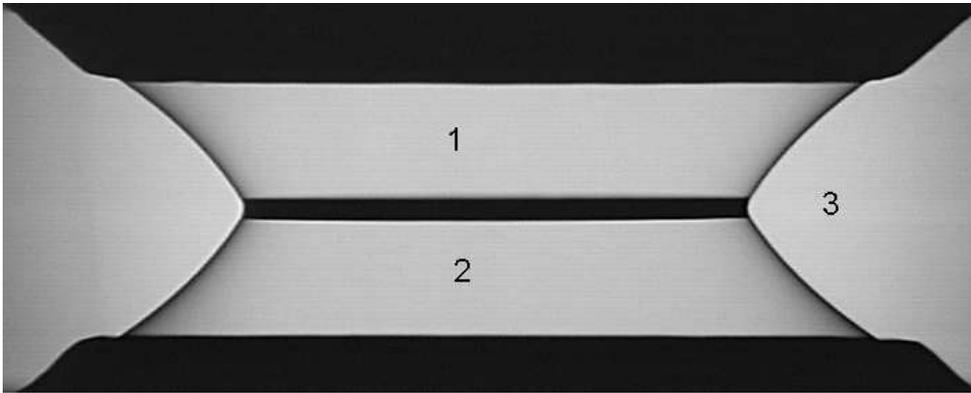


FIG. 7.24 – Maille élémentaire d'une mousse : film plan relié à deux troncs de caténoïdes par le bord de Plateau (ménisque) [16].

Une première approche consisterait à étudier une maille élémentaire de mousse constituée d'un film plan suspendu par deux troncs de caténoïdes reliés à deux cadres circulaires (photo 7.24). Une étude statique de cette structure a déjà été réalisée, à la suite de mes travaux de DEA, en collaboration avec Jean-Christophe Géminard, Andrzej Zywockinski et Patrick Oswald. Elle nous a permis de montrer un effet de tension de ligne négative du bord de Plateau qui modifie les angles de jonction entre les trois films qu'il relie [16]. La mise en évidence de cet effet important pour la physique des mousses nous incite à réaliser une étude dynamique de cette maille élémentaire afin d'aborder le plus simplement possible les mécanismes complexes liés à la stabilisation et à la rhéologie d'une vraie mousse. La réponse rhéologique de cette maille élémentaire pourrait être étudiée soit en imposant des pressions

différentes dans les différents milieux 1-2-3 du système (figure 7.24), soit en bougeant les cadres pour comprimer ou cisailer la structure.

Une deuxième étape serait de fabriquer une mousse smectique. Toute la difficulté consiste à obtenir une mousse suffisamment sèche. En effet, la structure multi-lamellaire des smectiques, qui est un réel avantage pour la stabilité de la mousse, complique le procédé de fabrication d'une mousse car les bords de Plateau présentent une grande résistance à l'écoulement et se vident difficilement. Le problème pourrait être contourné en utilisant les propriétés des films présmectiques observés au-dessus de la transition volumique smectique-nématique. En effet, ces derniers gardent une structure lamellaire à cause d'une augmentation de l'ordre smectique en surface alors que le ménisque fond [36]. Ainsi, en faisant buller de l'air en phase nématique, on devrait pouvoir former une mousse composée de films présmectiques stables, drainant comme une mousse ordinaire. Il suffirait ensuite de baisser la température pour obtenir une mousse smectique très stable. Sachant que la température d'amincissement d'un film présmectique dépend de son épaisseur, ce procédé présenterait un autre avantage, celui de permettre le contrôle de l'épaisseur des films contenus dans la mousse en changeant seulement la température de fabrication. Enfin, les propriétés physiques de cette mousse pourraient être comparées à celles obtenues à partir de l'étude dynamique d'une maille élémentaire.

Annexe A

Effets de bord

Détermination d'un rayon de cadre effectif r_b

Dans cette annexe, nous détaillons la technique de mesure et détaillons les problèmes liés aux effets de bord du cadre. Cette discussion est importante car la caractérisation rhéologique du ménisque repose sur la relation 7.12 avec la mesure de l'écart à la loi de Laplace et la relation 7.13 avec la mesure de la vitesse à l'entrée du ménisque. Or, pour pouvoir utiliser la première relation, il faut que la variation de surface dS/dt du film et de son ménisque soit reliée, pendant l'effondrement, à la variation dV/dt du volume d'air qui doit passer à travers le capillaire par la relation suivante (voir section 6.2.2 dans le chapitre théorique) :

$$\frac{dS}{dt} = \frac{2}{R} \frac{dV}{dt} \quad (\text{A.1})$$

où R est le rayon de courbure de la bulle. Si le smectique formait simplement une calotte sphérique attachée ponctuellement à un support de rayon r fixe, cette relation géométrique serait exacte. En revanche, dans le cas expérimental, le système est moins bien défini et des problèmes de bord apparaissent au niveau du ménisque. En effet, le film, qui a la forme d'une calotte sphérique, est relié au support par l'intermédiaire du ménisque qui lui-même pivote autour du bord arrondi du cadre lorsque la bulle s'effondre.

Plus précisément, si le bord du cadre est supposé de profil circulaire, de rayon l_c , le ménisque de longueur l_m glisse sur celui-ci au cours de l'effondrement comme indiqué sur la figure A.1. L'angle θ entre le film et l'horizontale est alors donné par la courbure de la bulle :

$$\theta = \arcsin \left(\frac{r + l_c}{R} \right) \cong \arcsin \frac{r}{R} \quad (\text{A.2})$$

Quant à la limite entre le film et le ménisque, elle se trouve à une hauteur $h_F \sim (l_c + l_m)r/R$ par rapport au film plan (bulle dégonflée).

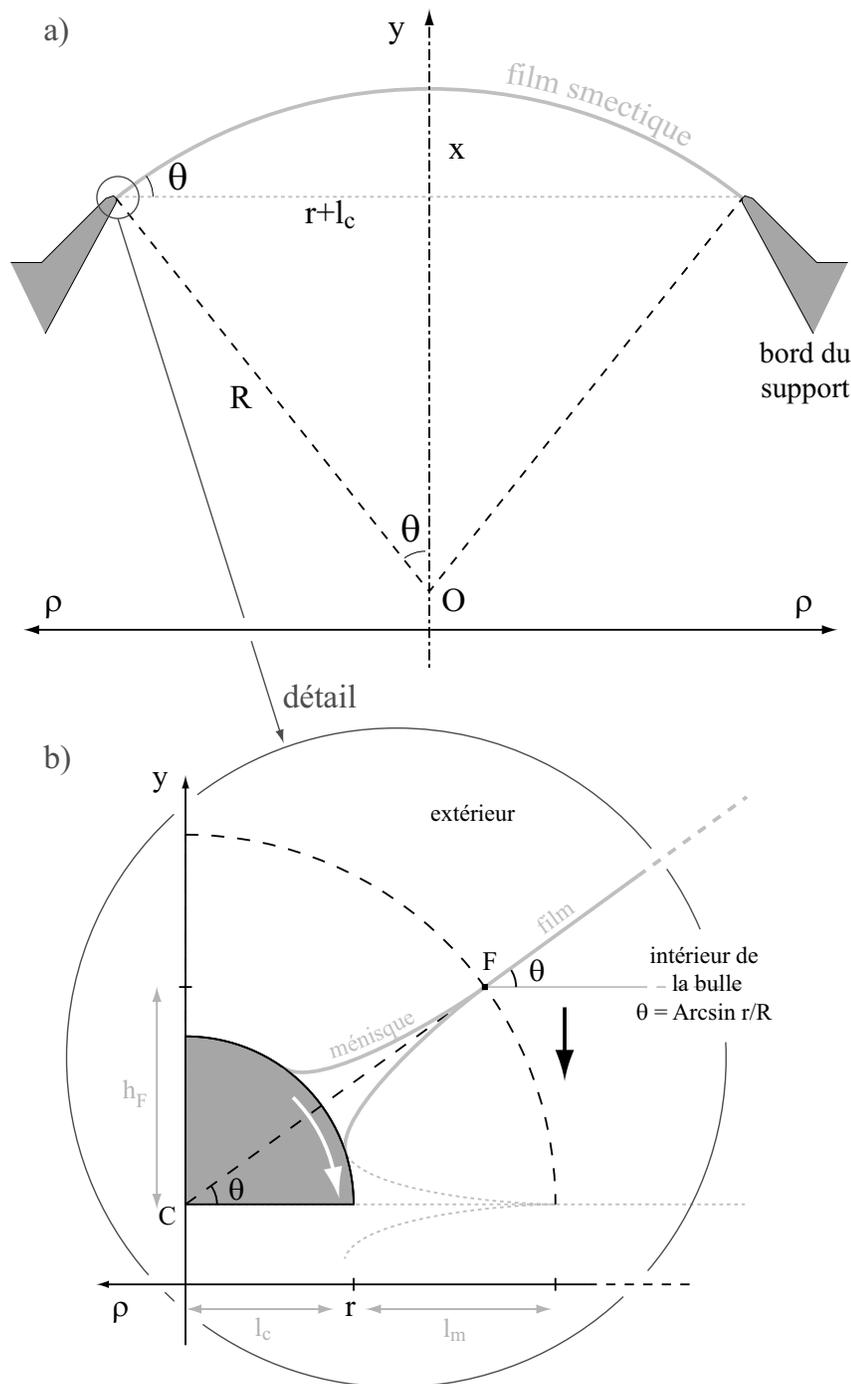


FIG. A.1 – Schéma du ménisque qui pivote autour du bord circulaire du cylindre conique lors de l'effondrement d'une bulle. a) Schéma d'ensemble ; b) détail du bord du cylindre.

Il nous faut maintenant déterminer précisément les variations de la surface et du volume de la bulle connaissant le rayon du cadre r . Pour cela, nous devons mesurer précisément la hauteur de la bulle x (équations 6.2 et 6.3). Or, puisque l'ordonnée du sommet de la bulle est déterminée avec une grande précision par l'analyse d'image (voir section 7.1.3), pour déduire la hauteur x , il suffit de déterminer l'ordonnée de la base de la bulle. C'est lors de

cette seconde étape que se posent les problèmes d'effets de bord :

- Une manière propre d'évaluer les variations de surface du film, serait de prendre pour base la limite entre le film et le ménisque (point F). C'est dans ce cas que nous cernons le mieux les problèmes. Comme le ménisque pivote autour du bord arrondi du cadre, cette limite descend au cours de l'effondrement de la bulle. Le problème est qu'alors le volume d'air contenu dans la galette de surface πr^2 et de hauteur h_F n'est pas pris en compte dans le volume de la bulle. Il vient qu'en utilisant la relation fondamentale 7.12, on omet le travail des forces de pression nécessaires pour évacuer ce volume, ce qui introduit une erreur non négligeable dans le calcul de l'énergie dissipée. En effet, comparons le rapport entre le volume de cette galette et le volume initial de la bulle en prenant pour condition initiale ($\Delta P_0 = 0,8$, $X_0 = 0,5$); il est de l'ordre de $3(l_c + l_m)/r$ et peut atteindre 15% dans le cas le plus désavantageux d'un gros ménisque $(l_c + l_m) \sim 500 \mu\text{m}$. Qui plus est, l'erreur commise sur la mesure de la différence de pression entre le film et le ménisque est encore plus importante car il s'agit d'une mesure relative $((\Delta P)_r)$. Cette manière de procéder est donc mauvaise.
- Une autre manière de définir la base de la bulle est d'imposer constant le rayon de la base r_b de la bulle, ce qui est une condition nécessaire pour pouvoir utiliser la relation A.1 (d'ailleurs non vérifiée dans le cas précédent). L'ordonnée de cette base est définie comme étant l'intersection de la verticale $\rho = r_b$ (pour l'instant inconnu) avec le profil circulaire de la bulle qui, lui, est très précisément déterminé. La hauteur x de la bulle est ainsi directement défini par la relation 7.1 donnée dans la section 7.1.3 :

$$x = R - \sqrt{R^2 - r_b^2} \quad (\text{A.3})$$

Si, comme dans la section 7.1.3, r_b est choisi égal au rayon intérieur du cadre r , nous remarquons sur le schéma A.1 que dans ce cas nous commettons le même type d'erreur que précédemment, mais de façon moins prononcée, puisque l'ordonnée y_b diminue au cours de l'effondrement. Cette dernière est, en effet, simplement donnée par :

$$y_b = y_O + R - x \quad (\text{A.4})$$

où y_O est l'ordonnée du centre du cercle. En revanche, nous voyons qu'il est possible de ne pas commettre d'erreur en choisissant le rayon de la base r_b de sorte que y_b soit constant. Cette situation est représentée sur le schéma A.1 où y_b correspond à la position du film au repos : point C . Dans ce cas $r_b = r + l_c$. Pour déterminer r_b en pratique, nous calculons l'évolution au cours de l'expérience de $y_b(t)$ à l'aide des relations A.4 et A.3, en prenant différentes valeurs du rayon r_b proche du rayon du cadre r , et nous choisissons la valeur r_b (au 1/10 de pixel) pour laquelle $y_b(t)$ varie le moins possible au cours de la phase d'effondrement. Comme sur le schéma A.1, le rayon r_b obtenu est un peu plus grand que le rayon intérieur du cadre r (d'environ 1%). Le film au repos est alors un peu à l'intérieur du cadre (légèrement plus bas que

le sommet du cadre). La courbe de $y_b(t)$ obtenue pour l'expérience présentée dans la section 7.3.2 (fig. 7.15b) est représentée sur la figure A.2.

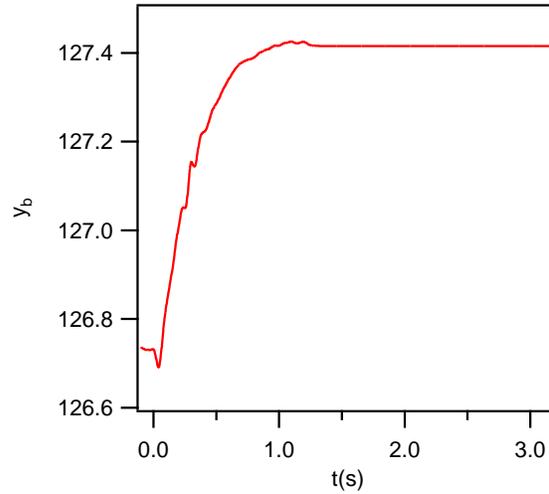


FIG. A.2 – Évolution de y_b en fonction du temps obtenue pour l'expérience présentée dans la section 7.3.2 (fig. 7.15b).

Remarquons enfin que la quantité $y_b(t)$ obtenue de cette façon augmente faiblement, mais brutalement (d'environ 1% de la hauteur x de la bulle), lors de la première étape de déstructuration du ménisque. Ce saut traduit bien ce phénomène pendant lequel la bulle ne s'effondre pas, mais s'affaisse à cause du recul du ménisque. C'est pour cette raison que la dissipation dans le smectique ne peut pas être évaluée directement à partir de l'écart à la loi de Laplace dans ce régime. En effet, la relation fondamentale 7.12 n'est alors plus valide et conduit à sous-évaluer la dissipation (voir figure 7.15) lors de cette étape. Nous pourrions corriger cet effet en ajoutant le travail dû au mouvement de la base de la bulle, mais la dynamique de $y_b(t)$ n'est pas mesurée avec suffisamment de précision pour obtenir un résultat fiable. Les ordres de grandeur montrent seulement que la dissipation est plus importante pendant l'étape de déstructuration du ménisque que pendant celle d'effondrement de la bulle, ce qui est physiquement raisonnable.

En conclusion, l'utilisation directe de la mesure de l'écart à la loi de Laplace pour caractériser finement la dissipation dans le smectique selon la relation fondamentale 7.12 n'est valable que pendant l'étape d'effondrement de la bulle et sous la seule condition d'avoir défini correctement le bord de la bulle. Cette procédure conduit à la courbe ΔP_{film} en fonction de v_{men} montrée sur la figure 7.15b.

Annexe B

Stabilité des îlots facettés

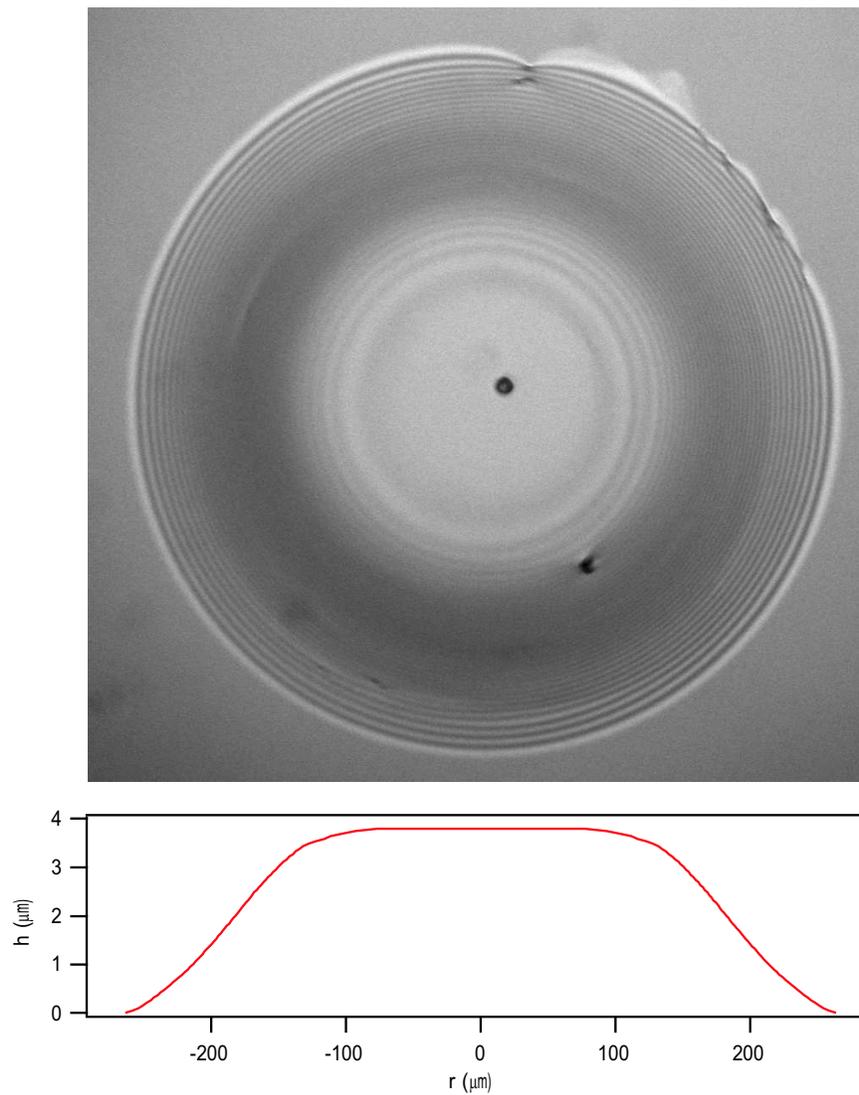


FIG. B.1 – Photo d'un gros îlot facetté après stabilisation dans un film épais ($N = 2800$), prise en réflexion avec un filtre interférentiel ($\lambda = 633$ nm). L'analyse des franges permet de déterminer le profil de l'îlot $h(r)$.

Dans cette annexe, nous allons regarder de plus près les gros îlots qui se forment dans les films sales épais (section 7.4.2), pour mieux comprendre leur étonnante "stabilité" après l'effondrement. En effet, nous avons remarqué :

1. que ces îlots sont remplis de coniques focales qui disparaissent rapidement (photos 7.20) après l'effondrement ;
2. qu'une fois structurés, ils sont relativement stables s'ils restent dans le film et se vident lentement sur une échelle de temps de plusieurs dizaines de minutes.

La photo B.1 d'un de ces îlots de grosse taille, obtenue avec un fort grossissement, en réflexion avec un filtre interférentiel ($\lambda = 633$ nm), montre que leur forme est particulière, leur sommet ayant tendance à se facetter. Nous voyons de plus quelques poussières de taille importante, à l'origine de sa nucléation. L'analyse des franges d'interférences permet de déterminer précisément le profil de l'îlot. La sur-épaisseur de cet îlot (correspondant à 35 franges sur la figure B.1) est quasiment égale à l'épaisseur du film ($N = 2800$). Plus précisément, sa structure est composée d'environ 2500 boucles de dislocations élémentaires concentriques. Deux parties de courbure opposée apparaissent sur ce profil : celle à l'intérieur se raccorde tangentiellement à la facette, de rayon $r_F \sim 60 \mu\text{m}$ et l'autre à l'extérieur fait penser au raccordement entre un ménisque et un film.

En fait, ce facettage des îlots, qui n'est pas observé sur les îlots en phase isotrope [46], est caractéristique de l'ordre lamellaire de la phase smectique A. Il est aussi observé sur les gouttes libres de smectique, de taille similaire, déposées sur une lame en verre traitée en ancrage homéotrope [2, 22] et qui ne forment pas une calotte hémisphérique comme le feraient un liquide isotrope ou nématique, du fait de la minimisation de leur énergie de surface. En phase smectique, l'énergie de ligne des boucles de dislocations intervient aussi. Ainsi en tenant compte de cette contribution, la minimisation de l'énergie d'une goutte à volume fixé donne de tel profil. Soit ΔP_i la différence de pression entre la goutte et l'extérieur. Si la goutte est à l'équilibre, le rayon de la facette correspondrait exactement au double du rayon critique de nucléation r_c déjà introduit dans le chapitre théorique (équation 6.43) :

$$r_F \sim 2r_c = \frac{2E}{b\Delta P_i} \quad (\text{B.1})$$

Pour être facettée, la goutte est nécessairement en surpression par rapport à l'extérieur.

La description des îlots dans un film est néanmoins plus complexe car ils ne sont pas vraiment à l'équilibre, puisqu'ils se vident lentement dans le ménisque. Leur stabilité est due au fait que la vidange d'un îlot facetté est très dissipative. En effet, pour se vider, la matière de l'îlot doit s'écouler autour de toutes les dislocations qui le constituent ce qui met en jeu des écoulements de perméation très dissipatif, comme ceux à l'entrée du ménisque en régime quasi-statique. Remarquons enfin que c'est la différence entre la pression à l'intérieur de l'îlot (fixée par sa géométrie au centre) et celle dans le film (fixée par le ménisque) qui est le moteur de la vidange très lente de ces îlots.

Notations

Liste non exhaustive.

b	vecteur de Burgers
d	épaisseur d'une couche smectique
N	nombre de couches
H	épaisseur du film : Nd
γ	tension de surface smectique-air
τ	tension du film
θ_m	angle de raccordement "macroscopique" entre le ménisque et le film
$h(x)$	épaisseur du ménisque
ΔP	différence de pression entre l'air et le volume du ménisque : $P_a - P_{men}$
$f(H)$	excès d'énergie surfacique due à l'épaisseur finie du film smectique
Π_d	pression de disjonction : $-df/dH$
$\sigma_N(H)$	contrainte élastique normale aux couches dans le film
l_g	longueur capillaire gravitationnelle
m	mobilité d'une dislocation (en milieu infini)
λ_p	coefficient de perméation du smectique
η	viscosité de cisaillement parallèle aux couches du smectique
l_p	longueur de perméation du smectique
$\delta(N)$	extension des couches limites de perméation dans le film
E	énergie de ligne d'une dislocation coin
r_c	rayon critique de nucléation
v_∞	vitesse asymptotique de croissance d'une boucle (dans les films épais)
v_{men}	vitesse de l'écoulement à l'entrée du ménisque
$C(N)$	constante caractérisant la dissipation dans le ménisque (saut de pression)
Φ_{men}	énergie dissipée par unité de temps dans le ménisque
w	extension spatiale de la zone bien orientée
N_G	taille de la dislocation géante effective en nombre de couches
$k^*(N)$	nombre des dislocations indépendantes du point de vue hydrodynamique

notations pour l'étude de la dynamique d'effondrement d'une bulle

R	rayon de courbure de la bulle
r	rayon du support de la bulle
x, X	hauteur de la bulle et hauteur normalisée x/r
S, V	surface et volume de la bulle
a, L	rayon et longueur du capillaire
ΔP_i	différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur de la bulle
ΔP_{max}	surpression maximale de la bulle obtenue pour $x = r$
V_{max}	volume maximale de la bulle obtenu pour $x = r$
ΔP	surpression de bulle normalisée : $\Delta P_i / \Delta P_{max}$
ΔP_l	surpression capillaire normalisée : $(4\gamma/R) / \Delta P_{max}$
$(\Delta P)_r$	écart relatif à la loi de Laplace statique : $(\Delta P_l - \Delta P) / \Delta P_l$
$X_0, \Delta P_0$	hauteur et surpression initiales au temps $T = 0$
Φ_{Sm}	énergie dissipée par unité de temps dans le smectique (film+ménisque)
Φ_{cap}	énergie dissipée par unité de temps dans le capillaire (écoulement de l'air)
$t_{vidange}$	temps de vidange de la bulle à travers le capillaire
ΔP_{film}	différence de pression entre le film et le ménisque $P_N - P_{men}$
R_m	rayon de courbure du ménisque
t_c	temps capillaire caractéristique
T	temps normalisé par le temps capillaire t_c
t_{Sm}, ξ	temps smectique caractéristique et rapport t_{Sm}/t_c
t_{ic}	temps caractéristique associé à l'inertie de l'air dans le capillaire
η_a, ρ_a	viscosité dynamique et masse volumique de l'air
L^{min}	longueur critique minimale du capillaire pour négliger les effets de bord
t_i	temps caractéristique associé à la croissance d'îlots
n_i	nombre d'îlots qui ont nucléé lors de l'effondrement
t_a	temps caractéristique associé à la compressibilité de l'air et du capteur
κ	rapport entre t_a et le temps capillaire t_c
V_{mort}	volume mort du système
V_{mort}^{eff}	volume mort effectif en tenant compte de l'effet du capteur
t_{ia}	temps caractéristique associé à l'inertie de l'air (dans le volume mort)
t_{if}	temps caractéristique associé à l'inertie du film
\overline{B}, K	module de compressibilité et de courbure du smectique
λ, δ_c	longueur de pénétration et épaisseur de dilatation critique
C_{eff}	constante de dissipation effective du ménisque déstabilisé
r_b	rayon de la base de la bulle déterminé expérimentalement

Bibliographie

- [1] Ch. Bahr. *Int. J. Mod. Phys.*, 8 :3051, 1993. [16](#)
- [2] J. Bechhoefer and P. Oswald. *Europhys. Lett.*, 15 :521, 1991. [150](#)
- [3] V. Bergeron. *J. Phys. Cond Matter*, 11 :R215, 1999. [16](#), [32](#)
- [4] P. Boltzenhagen, O. Lavrentovich, and M. Kléman. *J. Phys. II*, 1 :1233, 1991. [28](#)
- [5] Y. Bouligand. *J. Phys. (Paris)*, 33 :1972, 525. [28](#)
- [6] F. Caillier and P. Oswald. *Phys. Rev. E*, 70 :031704, 2004. [52](#), [62](#), [66](#)
- [7] Chih-Yu Chao, Chia-Fu Chou, J.T. Ho, S.W. Hui, A. Jin, and C.C. Huang. *Phys. Rev. Lett*, 77 :2750, 1996. [16](#)
- [8] N.A. Clark and R.B. Meyer. *Appl. Phys. Lett.*, 22 :10, 1973. [98](#)
- [9] P.G. de Gennes. *Physics of Fluids*, 17 :1645, 1974. [39](#)
- [10] P.G. de Gennes. *Langmuir*, 6 :1448, 1990. [17](#), [30](#), [35](#)
- [11] M. Delaye, R. Ribotta, and G. Durand. *Phys. Lett.*, 44A :139, 1973. [98](#)
- [12] E. Dubois-Violette, E; Guazzelli, and J. Prost. *Philos. Mag. A*, 44 :727, 1983. [74](#)
- [13] J. Friedel. *Dislocations*. Pergamon Press, 1967. [44](#)
- [14] J. C. Géminard, C. Laroche, and P. Oswald. *Phys. Rev. E*, 58 :5923, 1998. [19](#), [62](#), [99](#)
- [15] J.C. Géminard, R. Holyst, and P.Oswald. *Phys. Rev. Lett.*, 78 :1924, 1997. [19](#), [27](#), [30](#)
- [16] J.C. Géminard, A. Zywockinski, F. Caillier, and P. Oswald. *Phil. Mag. Lett.*, 84-n3 :199, 2004. [142](#)
- [17] R.G. Horn and M.Kléman. *Ann. Phys.*, 3 :229, 1978. [73](#)
- [18] C.C. Huang and T. Stoebe. *Adv. Phys.*, 42 :343, 1993. [16](#)
- [19] R. Jacquet and F. Schneider. *Phys. Rev. E*, 67 :021707, 2003. [36](#), [37](#)
- [20] I. Kraus. *Etudes des films librements suspendus de cristaux liquides thermotropes en phase smectique*. PhD thesis, Université Paris Sud, 1995. [18](#)
- [21] I. Kraus, C. Bahr, I.V. Chikina, and P. Pieranski. *Phys. Rev. E*, 58 :610, 1998. [18](#)
- [22] L. Lejcek, J. Bechhoefer, and P. Oswald. *J. Phys. II France*, 2 :1511, 1992. [150](#)
- [23] L. Lejcek and P. Oswald. *J. Phys. II*, 1 :931, 1991. [18](#)

- [24] P. Mach, S. Grantz, D.A. Debe, T. Stoebe, and C.C. Huang. *J. Phys. II(France)*, 5 :217, 1995. [18](#)
- [25] P. Mach, C.C. Huang, and H.T. Nguyen. *Phys. Rev. Lett.*, 80 :732, 1998. [18](#)
- [26] C. Meyer, S. Asnacios, C. Bourgaux, and M.Kléman. *Rheol. Acta*, 39 :223, 2000. [132](#)
- [27] K. Miyano. *Phys. Rev. A*, 26 :1820, 1982. [18](#)
- [28] P. Oswald. *J. Physique France*, 48 :897, 1987. [18](#), [80](#)
- [29] P. Oswald and M. Allain. *J. Phys. (Paris)*, 46 :831, 1985. [98](#)
- [30] P. Oswald, F. Picano, and F. Caillier. *Phys. Rev. E*, 68 :061701, 2003. [37](#), [44](#), [46](#), [62](#)
- [31] P. Oswald and P. Pieranski. *Les cristaux liquides. Concepts et propriétés physiques illustrés par des expériences. Vol. 2.* GB Science Publishers, Paris, 2002. [14](#), [40](#), [41](#), [42](#), [43](#), [44](#), [45](#), [52](#), [54](#), [60](#), [73](#), [74](#), [75](#), [98](#), [99](#)
- [32] P. Oswald, P. Pieranski, F. Picano, and R. Holyst. *Phys. Rev. Lett*, 88 :015503, 2002. [52](#), [54](#), [73](#)
- [33] P.S. Pershan. *Structure of Liquid Crystal Phases.* World Scientific, Singapore, 1988. [20](#)
- [34] F. Picano. *Dislocations coin et transition d'amincissement dans les films librement suspendus de cristal liquide smectique.* PhD thesis, École Normale Supérieure de Lyon, 2001. [15](#), [16](#), [18](#), [19](#), [20](#), [21](#), [22](#), [23](#), [24](#), [28](#), [29](#), [30](#), [31](#), [44](#), [46](#), [61](#), [63](#)
- [35] F. Picano, R. Holyst, and P. Oswald. *Phys. Rev. E*, 62 :3747, 2000. [27](#), [28](#), [46](#), [75](#)
- [36] F. Picano, P. Oswald, and E. Kats. *Phys. Rev. E*, 63 :21705, 2000. [17](#), [27](#), [29](#), [30](#), [31](#), [35](#), [143](#)
- [37] P. Pieranski, L. Beliard, J.Ph. Tournellec, X. leoncini, C. Furtlehner, H. Dumoulin, E. Riou, B. Jouvin, J.P. Fénérol, Ph. Palaric, J. Heuving, B. Cartier, and I. Krauss. *Physica A*, 194 :364, 1993. [16](#), [17](#), [80](#)
- [38] R. Pindak, D.J. Bishop, and W.O. Sprenger. *Phys. Rev. Lett*, 44 :1461, 1980. [16](#)
- [39] A. Poniewierski, R. Holyst, and P. Oswald. *Langmuir*, 2002. [17](#), [27](#)
- [40] J.E. Proust. *Cristaux liquides, interfaces et films minces.* PhD thesis, Université Paris Sud, 1977. [16](#)
- [41] J.E. Proust and E. Perez. *J. Physique Lettres*, 38 :91, 1977. [16](#)
- [42] P. Richetti, L. Moreau, P. Barois, and P. Kélicheff. *Phys. Rev. E*, 54 :1749, 1996. [17](#), [35](#)
- [43] Ch.S. Rosenblatt, R. Pindak, N.A. Clark, and R.B. Meyer. *J. Phys. (Paris)*, 38 :1105, 1977. [98](#)
- [44] S.A. Safran. *Statistical Thermodynamics of Surfaces, Interfaces and Membranes.* Addison-Wesley Publishing Compagny, Singapore, 1994. [32](#)
- [45] F. Schneider. *Rev. Sci. Instrum.*, 73 :114, 2002. [36](#)

- [46] H. Shüring and R. Stannarius. *Langmuir*, 18 :9735, 2002. [150](#)
- [47] H. Shüring, C. Thieme, and R. Stannarius. *Liq. Cryst.*, 28 :241, 2001. [80](#)
- [48] A.A. Sonin and D. Langevin. *Europhys. Lett.*, 22 :271, 1993. [61](#)
- [49] R. Stannarius and C. Cramer. *Liq. Cryst.*, 23 :371, 1997. [18](#), [80](#)
- [50] R. Stannarius and C. Cramer. *Mol. Cryst. Liq.*, 329 :1035, 1999. [80](#)
- [51] R. Stannarius, C. Cramer, and H. Shüring. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, 328 :533, 1999. [113](#), [114](#)
- [52] B.V. Toshev and D. Platikanov. *Adv. Coll. Int. Sci*, 40 :157, 1992. [30](#)
- [53] D.J. Tritton. *Physical Fluid Dynamics*. Van Nostrand Reinhold, UK, 1977. [86](#)
- [54] M.S. Turner, M. Maaloum, D. Ausserrée, J.F. Joanny, and M. Kunz. *J. Phys. II*, 4 :689, 1994. [18](#)
- [55] D. Weaire and S. Hutzler. *The physics of foams*. Clarendon Press, Oxford, 1999. [142](#)
- [56] C.Y. Young, R. Pindak, N.A. Clark, and R.B. Meyer. *Phys. Rev. Lett.*, 40 :773, 1978. [16](#)
- [57] A. Zywockinski, F. Picano, P. Oswald, and J.C. Géminard. *Phys. Rev. E*, 62 :8133, 2000. [19](#), [62](#), [98](#), [99](#)

Table des figures

1.1	Représentation schématique de la phase smectique A.	14
1.2	Molécule de 8CB.	14
1.3	Schéma d'un film librement suspendu.	15
1.4	Dispositif pour mesurer la tension d'un film.	17
1.5	Schéma d'une dislocation coin élémentaire dans un film.	18
1.6	Nucléation d'une boucle de dislocation avec une pointe chauffante.	19
1.7	Étirement d'un film sur un cadre.	20
1.8	Observation d'un film en réflexion : "texture en arches".	21
1.9	Dispositif expérimental : schéma du four.	22
1.10	Schéma du dispositif de mesure d'épaisseur du film.	23
1.11	Courbe de réflectivité : mesure de l'épaisseur d'un film.	24
2.1	Photo d'un ménisque.	28
2.2	Détection du profil du ménisque.	29
2.3	Schéma du ménisque et notations.	30
2.4	Schéma du ménisque et notations.	31
2.5	Schéma du ménisque et notations.	37
3.1	Modélisation hydrodynamique d'une dislocation par un ruban.	40
3.2	Écoulement autour d'un ruban dans un film : méthode des images.	41
3.3	Schéma d'une dislocation se déplaçant dans un film.	43
3.4	Dynamique d'une boucle de dislocation dans un film épais.	44
3.5	Courbes $r(t)$ dans les fins.	47
4.1	Modélisation du ménisque dans les films épais.	53
4.2	Modélisation du ménisque dans le cas général.	54
4.3	Nombre de dislocations isolées k^* dans le ménisque en fonction de N	55
5.1	Schéma de l'expérience de croissance d'une boucle de dislocations.	60
5.2	Points expérimentaux de $C(N)$ et ajustement par le modèle.	62
5.3	Schéma du dispositif expérimental de l'écoulement entre deux ménisques.	64
5.4	Photo d'un ménisque entourant l'aiguille.	65

5.5	Notations utilisées pour la résolution numérique.	66
5.6	$\delta P_1(x_1)$ et $V_1(x_1)$, calculés numériquement.	67
5.7	$\delta P_2(r_2)$ et $V_2(r_2)$, calculés numériquement.	69
5.8	$x_1(t), r_2(t)$; $\delta P_1(t), \delta P_2(t)$; et $V_1(t), V_2(t)$ pour $N = 633$	70
5.9	Mesure de C sur une séquence, pour $N = 633$	72
5.10	Mesure de C sur une séquence, pour $N = 633$	73
6.1	Schéma du système bulle-capillaire	81
6.2	Loi de Laplace : ΔP_i en fonction de la hauteur de la bulle	82
6.3	Description du système fermé choisi pour faire le bilan énergétique	83
6.4	$X(T)$ pour différents ξ avec $X(0) = 1$	92
6.5	$\Delta P(T)$ pour différents ξ avec $\Delta P(0) = 1$	93
6.6	$\Delta P_l(T)$, $\Delta P(T)$ et $(\Delta P)_r(T)$ pour $\xi = 1$ avec $\Delta P(0) = 1$	94
6.7	$(\Delta P)_r(\Delta P_l)$ pour différents $\xi = 1$	95
6.8	$\Delta P(T)$ pour différents ξ avec $\Delta P(0) = 0.8$	96
6.9	$\Delta P(T)$ pour différents ξ : effet de compressibilité	103
7.1	Fiche synoptique du dispositif expérimental.	109
7.2	Vue en coupe du support	110
7.3	Photo du dispositif expérimental	112
7.4	Mesure de l'épaisseur d'un film : $I_{lum}(\lambda)$	113
7.5	Photo d'une bulle en monochromatique : mesure de l'épaisseur du film.	114
7.6	Traitement d'image : mesure de ΔP_l	115
7.7	Déclenchement par la vanne smectique	116
7.8	Première approche : $\Delta P(T)$ pour différents capillaires.	119
7.9	Fiche synoptique du dispositif expérimental.	123
7.10	Fiche synoptique du dispositif expérimental.	124
7.11	Photos de la phase de recul du ménisque.	126
7.12	Analyse du recul du ménisque.	127
7.13	Déstructuration du ménisque.	128
7.14	Mesure de $(\Delta P)_r(t)$ à partir de l'évolution de ΔP et ΔP_l	129
7.15	$v_{men}(t)$ et $\Delta P_{film}(v_{men})$	130
7.16	$(\Delta P)_r(v_{men})$: comportement rhéologique en loi de puissance	131
7.17	$(\Delta P)_r(v_{men})$ en log-log	132
7.18	Influence de l'épaisseur du film sur le comportement rhéologique du smectique	133
7.19	Observations des films épais après effondrement.	135
7.20	Photos de la stabilisation des îlots dans les films épais.	136
7.21	Comparaison de l'effondrement entre un film propre et un sale.	137
7.22	Observations des films fins après effondrement.	138
7.23	$\Delta P(t)$ et $(\Delta P)_r(t)$ pour différentes épaisseurs de film fin.	139

7.24 Maille élémentaire d'une mousse.	142
A.1 Schématisation des effets de bord	146
A.2 effet de bord : $y_b(t)$	148
B.1 Photo et profil d'un gros îlot facetté.	149

Résumé : Les films librement suspendus de cristal liquide *8CB* en phase smectique A sont très stables du fait de leur structure lamellaire. En effet, l'élasticité des couches compense la pression capillaire imposée par le ménisque qui le borde et qui joue le rôle de réservoir de matière. Lors de ce travail, nous nous sommes intéressés à la dynamique de ces films. Nous avons mis en évidence que le ménisque se comporte comme un réservoir dissipatif.

En régime quasi-statique, lorsque les échanges de matière entre le film et le ménisque sont lents, les écoulements de perméation autour des dislocations coin qui le composent sont à l'origine de sa perméabilité finie. Un modèle hydrodynamique montre que la dissipation est localisée à son entrée, dans la zone bien orientée et qu'elle dépend fortement de l'épaisseur du film. Dans les films fins, le ralentissement des boucles de dislocation et dans les films épais, la dynamique de relaxation de deux ménisques reliés par un même film ont permis de confirmer expérimentalement ce modèle.

La dynamique d'effondrement d'une bulle a permis de caractériser la dissipation dans des régimes d'écoulements plus rapides en mettant en évidence un écart à la loi de Laplace (statique). Les expériences montrent qu'après une étape conduisant à la déstructuration du ménisque, ce qui le rend plus perméable, la bulle peut s'effondrer, la matière s'engouffrant dans le ménisque avec un comportement rhéofluidifiant. De plus, la nucléation et la croissance d'îlots peut rendre le processus moins dissipatif, ce qui est essentiellement observé dans les films fins.

Mots-clés : film smectique libre, *8CB*, ménisque, réservoir dissipatif, dislocation coin, pores, îlots, écoulement de perméation, bulle, instabilité d'ondulation, coniques focales.

Abstract : Free-standing liquid crystal (*8CB*) smectic-A films are very stable due to the elasticity of the lamellar structure and can support the capillary pressure imposed by the meniscus bordering the film. This meniscus acts as a reservoir that supplies material to the film. The subject of this thesis is to study the dynamics and the associated dissipative processes that occur in smectic films. Particular attention is focused on the finite permeability of the meniscus.

We find that when the exchange of matter between the film and the meniscus is slow, the dissipative behavior is controlled by the permeation flows around edge dislocations within the meniscus. Our hydrodynamic model shows that the dissipation takes place at the entrance of the meniscus, where the smectic layers are well-oriented, and it strongly depends on the film thickness. Complimentary experiments on the growth dynamics of dislocation loops observed in thin films, and the pressure equilibration of two menisci connected by thick films, have both confirmed experimentally this model.

Bubble collapse dynamics have allowed us to characterize the dissipation for faster flow regimes. Our experiments have showed that after a first step, wherein the lamellar structure of the meniscus is destroyed, there is an increase in the meniscus permeability. This increase leads to bubble collapse during which matter penetrates into the meniscus with shear thinning behavior. We also observe that the nucleation and growth of thick-film islands, within thin films, tend to make the dynamic processes less dissipative.

Keywords : free-standing films, *8CB*, meniscus, dissipative reservoir, edge dislocation, pores, islands, permeation flow, bubble, focal conics.